

TEXTE

43/2011

Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffein- trägen und ihren Wir- kungen in Deutschland

Anhänge 12 bis 16

UMWELTFORSCHUNGSPLAN DES
BUNDESMINISTERIUMS FÜR UMWELT,
NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT

Forschungskennzahl 3707 64 200
UBA-FB 001490/ANH,2

Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland

Anhänge 12 bis 16

von

Prof. Dr. Peter Bultjes
Elise Hendriks
Marielle Koenen
Dr. Martijn Schaap
TNO, Utrecht (Niederlande)

Sabine Banzhaf
Dr. Andreas Kerschbaumer
FU-Berlin, Berlin

Thomas Gauger
INS-Stuttgart, Stuttgart

Dr. Hans-Dieter Nagel
Thomas Scheuschner
Dr. Angela Schlutow
ÖKO-DATA, Strausberg

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

UMWELTBUNDESAMT

Diese Publikation ist ausschließlich als Download unter <http://www.uba.de/uba-info-medien/4142.html> verfügbar.
Hier finden Sie den Hauptbericht und weitere Anhänge.

Die in der Studie geäußerten Ansichten
und Meinungen müssen nicht mit denen des
Herausgebers übereinstimmen.

ISSN 1862-4804

Durchführung
der Studie: TNO, Niederlande
P.O. Box 80015
3508 TA Utrecht (The Netherlands)

Abschlussdatum: Juni 2009

Herausgeber: Umweltbundesamt
Wörlitzer Platz 1
06844 Dessau-Roßlau
Tel.: 0340/2103-0
Telefax: 0340/2103-0
E-Mail: info@umweltbundesamt.de
Internet: <http://www.umweltbundesamt.de>
<http://fuer-mensch-und-umwelt.de/>

Redaktion: Fachgebiet II 4.3 Wirkungen von Luftverunreinigungen auf terrestrische
Ökosysteme

Markus Geupel, Jakob Frommer

Dessau-Roßlau, Juli 2011

MAPESI-Bericht Anhang XII



Kartierung von Critical Level Überschreitungen

Umweltforschungsplan
des Bundesministeriums für Umwelt,
Naturschutz und Reaktorsicherheit

Luftreinhaltung

Förderkennzeichen 3707 64 200

**„Erfassung, Prognose und Bewertung von
Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in
Deutschland“**

MAPESI-Projekt
(Modelling of Air Pollutants and EcoSystem Impact)

Abschlussbericht,
Projektteil:

Kartierung von Critical Level Überschreitungen

Thomas Gauger

Institut für Navigation der Universität Stuttgart (INS)
Institutsleiter: Prof. Dr.-Ing. A. Kleusberg

IM AUFTRAG
DES UMWELTBUNDESAMTES

2009

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	I
Tabellenverzeichnis	I
Abbildungsverzeichnis	I
Kartenverzeichnis	II
1 Einführung	1
2 Datenbasis: Messungen der Monitoringnetze in Deutschland	3
3 Kartierung der Schadgasimmissionen	4
3.1 Kartierung der SO ₂ Konzentration	4
3.2 Kartierung der NO ₂ und NO Konzentration.....	8
3.3 Kartierung der O ₃ Konzentration	16
4 Kartierung der Überschreitung der Critical Levels	20
4.1 Überschreitung der Critical Levels für SO ₂	20
4.2 Überschreitung der Critical Levels für NO _x	21
4.3 Überschreitung der Critical Levels für O ₃	22
5 Zusammenfassung	29
6 Summary	30
7 Literatur	31

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2.1: Datenbestand der INS/UBA Luftqualitäts-Datenbank	3
Tabelle 3.1: Anzahl der zur Modellierung und Kartierung herangezogenen Messstationen.....	4
Tabelle 3.2: Grenz- und Richtwerte für die SO ₂ Konzentration in der Luft.....	5
Tabelle 3.3: Grenz- und Richtwerte für die NO ₂ Konzentration in der Luft	10
Tabelle 3.4: Grenz- und Richtwerte für die O ₃ Konzentration in der Luft.....	17

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Verfahrensablauf der Kartierung von Ozon AOT40	2
Abbildung 3.1: Entwicklung der SO ₂ Emissionen in Deutschland 1985-2007 (http://www.ceip.at/emission-data-webdab/emission-as-reported-by-parties/ , 10/2009).....	5
Abbildung 3.2: Statistische Kennwerte der SO ₂ -Konzentration 1985-2004 (Critical Levels: 30µg/m ³ ; 20µg/m ³ ; 10µg/m ³ , vgl. Tabelle 3.2)	6
Abbildung 3.3: Entwicklung der NO _x Emissionen in Deutschland 1985-2007 (http://www.ceip.at/emission-data-webdab/emission-as-reported-by-parties/ , 10/2009).....	9

Abbildung 3.5: Statistische Kennwerte der NO-Konzentration 2000-2007	11
Abbildung 3.7: Entwicklung der NMVOC Emissionen in Deutschland 1985-2007 (http://www.ceip.at/emission-data-webdab/emission-as-reported-by-parties/ , 10/2009)	16
Abbildung 3.8: Statistische Kennwerte der O ₃ -Konzentration 1990-2007.....	17
Abbildung 4.1: Statistische Kennwerte des AOT40forests 1990-2007 (Critical Level: 5000 ppb-h).....	22
Abbildung 4.2: Statistische Kennwerte des AOT40crops 1990-2007 (Critical Level: 3000 ppb-h).....	23
Abbildung 4.3: Statistische Kennwerte des AOT40seminatural Vegetation 2000-2007 (Critical Level: 3000 ppb-h)	23

Kartenverzeichnis

Karte 1: SO ₂ -Konzentrationen: Messpunkte 2005-2007	7
Karte 2: SO ₂ -Konzentration 2005-2007	7
Karte 3: SO ₂ -Konzentrationen: Kriging-Fehler 2005-2007	8
Karte 4: NO ₂ -Konzentration: Messpunkte 2005-2007	12
Karte 5: NO ₂ -Konzentration.....	13
Karte 6: NO ₂ -Konzentration: Kriging-Fehler 2005-2007	13
Karte 7: NO-Konzentration: Messpunkte 2005-2007	14
Karte 8: NO-Konzentration 2005-2007.....	14
Karte 9: NO-Konzentration: Kriging-Fehler 2005-2007.....	15
Karte 10: NO _x -Konzentration 2005-2007.....	15
Karte 11: O ₃ -Konzentration: Messpunkte 2005-2007	18
Karte 12: O ₃ -Konzentration 2005-2007	19
Karte 13: O ₃ -Konzentration: Kriging-Fehler 2005-2007	19
Karte 14: SO ₂ -Konzentrationen: Critical Level Überschreitungen 2005-2007	20
Karte 15: NO _x -Konzentrationen: Critical Level Überschreitungen 2005-2007.....	21
Karte 16: O ₃ -AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007	25
Karte 17: O ₃ -AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007	25
Karte 18: O ₃ -AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007	26
Karte 19: O ₃ -AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007	26
Karte 20: O ₃ -AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007	27
Karte 21: O ₃ -AOT40 Überschreitung des Critical Levels in Agrargebieten und Waldgebieten und Gebieten mit perennierender mehrjähriger Vegetation 2005-2007	27
Karte 22: O ₃ -AOT40 Überschreitung des Critical Levels in Agrargebieten, Waldgebieten und Gebieten mit perennierender mehrjähriger Vegetation 2005-2007	28

1 Einführung

Critical Levels sind definiert als Konzentrationen von Luftinhaltsstoffen in der Atmosphäre oberhalb derer direkte Schadeffekte an Rezeptoren nach derzeitigem Wissen zu erwarten sind (UN ECE 2004, Nagel & Gregor 1999). Rezeptoren können Wälder, natürliche Ökosysteme, landwirtschaftliche Nutzpflanzen, Flechten oder aber auch Menschen, Tiere oder Materialien sein. Die zu beobachtenden Schadeffekte können sich in Form von Wachstumsstörungen oder verminderter Vitalität einzelner Individuen, Veränderungen in der Artenzusammensetzung eines Ökosystems oder frühzeitig auftretender Materialschäden bemerkbar machen.

Im Rahmen der UN ECE Konvention über weit reichende, grenzüberschreitende Luftverschmutzung (Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution - CLRTAP) wurden Critical Levels für verschiedene Schadgase vereinbart (UN ECE 2004).

Die Kartierung von Überschreitungen von Critical Levels ist eine der Aufgaben des Forschungsprojekts „Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland“ (Forschungsvorhaben BMU/UBA 3707 64 200, Projekt MAPESI, Modelling of Air Pollutants and EcoSystem Impact, www.mapesi.de). Grundlage für die in diesem Teil des Abschlussberichtes vorgestellte Kartierung sind Messdaten des Immissionsmonitoring, das an mehreren hundert Stationen der Bundesländer und des Umweltbundesamtes in Deutschland die Konzentrationen in der Atmosphäre erfasst. Zur flächenhaften Modellierung und Kartierung werden diese Daten einer Datenbank gehalten. Diese Datenbank wurde in den Jahren 1993-2002 im Institut für Navigation (INS) der Universität Stuttgart aus Datenlieferungen der UBA Datenbank für Luftinhaltsstoff-Konzentrationen (UBA Fachgebiet II 4.2, Beurteilung der Luftqualität) aufgebaut. Von Mitte 2003 bis Ende 2007 wurde die Datenbank am Institut für Agrarökologie in der FAL in Braunschweig (jetzt vTI-AK) um die Daten der Jahre 2000-2004 erweitert. Seit Ende des Jahres 2007 wird die Datenbank wieder am INS geführt. Innerhalb des Forschungsprojektes wurde die Datenbank am INS um die Daten der Jahre 2005-2007 aktualisiert.

In der Datenbank enthalten sind Konzentrationsdaten von Ozon (O_3), Schwefeldioxid (SO_2), Stickstoffmonoxid (NO), Stickstoffdioxid (NO_2) und die Summe der letzten beiden Gase, im Weiteren bezeichnet als oxidiertes Stickstoff (NO_x).

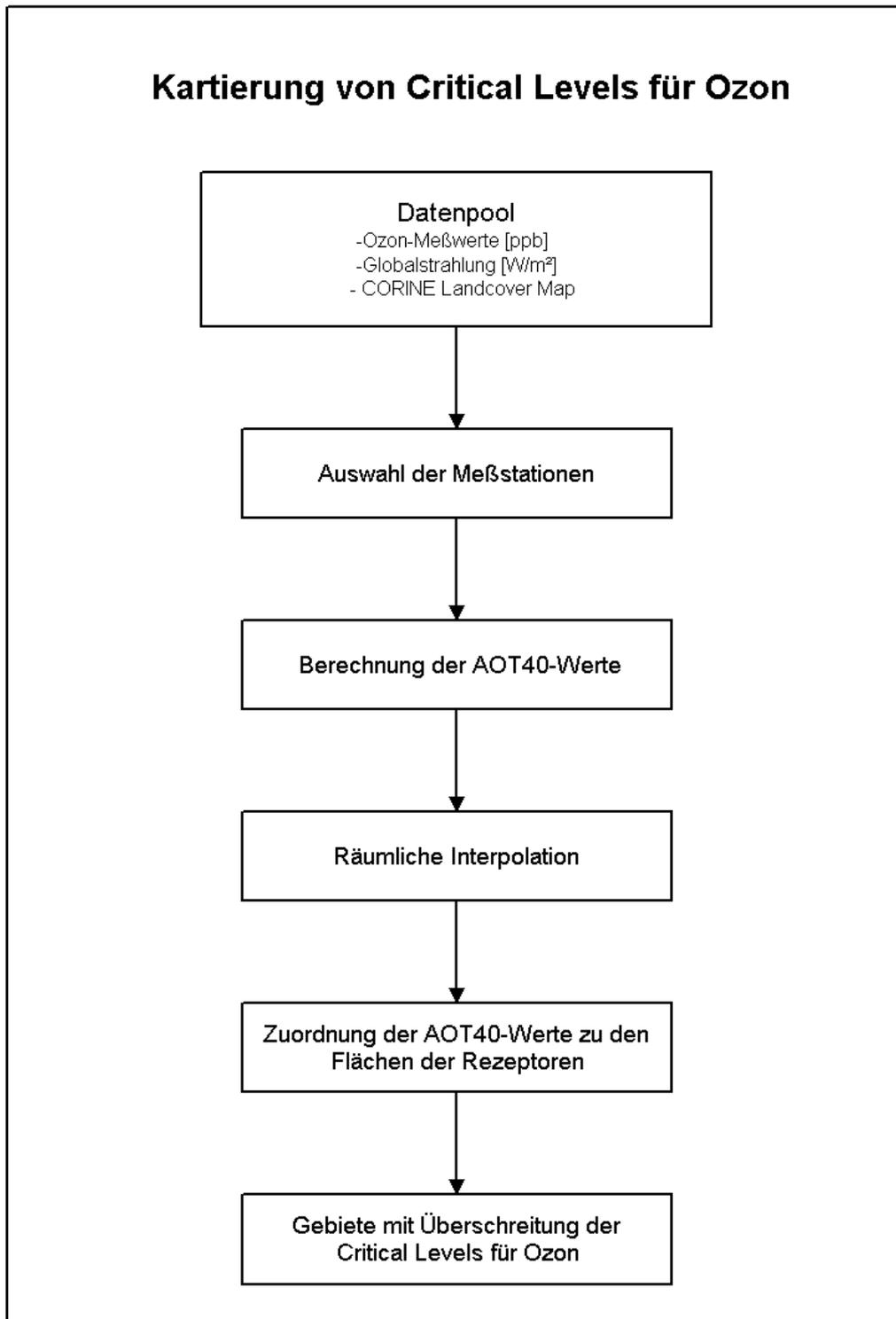


Abbildung 1: Verfahrensablauf der Kartierung von Ozon AOT40

In einem ersten Schritt werden die Luftqualitätsdaten der Monitoring-Stationen in Deutschland anhand der Lageparameter in der Stationenbeschreibung (Hintergrund/Verkehr/Industrie) gekennzeichnet und ausgewählt. Mithilfe der erfassten Georeferenz (Stationen-Koordinaten) werden die Daten in das GIS ArcInfo / ArcMap eingelesen. Die flächendeckende Modellierung in einer 1x1km² Rasterauflösung wird mit Hilfe der Kriging-Technik realisiert.

Die Kartierung der Konzentrationen wird in Kapitel 3 beschrieben. In Kapitel 4 werden die Ergebnisse dieser Kartierung mit den Critical Levels verglichen. Ergebnis dieses Vergleichs sind die Critical Level Überschreitungskarten.

2 Datenbasis: Messungen der Monitoringnetze in Deutschland

Die Konzentration von Schadgasen wird durch stationäre Monitoringstationen überwacht. Entsprechend dem Bundes-Immissionsschutzgesetz (BImSchG) sind die Länder dazu verpflichtet. Es bestehen 17 Messnetze in Deutschland, eines in jedem Bundesland und ein länderübergreifendes Messnetz der Umweltbundesamtes. Die Konzentrationsdaten der Stationen werden nach einem ersten Qualitätscheck in halbstündlicher Auflösung ans UBA Fg. II 4.2 übermittelt. Dort werden die Daten harmonisiert und in eine nationale Datenbank übernommen. Diese Daten dienen als Grundlage der Kartierung. Für die Datenhaltung in der Datenbank des INS werden Stunden- und Jahresmittelwerte eingelesen und für die weitere Bearbeitung bereitgehalten. Die zugehörigen Meta-Informationen jeder Station werden ebenfalls übernommen und bestehen u. a. in: ID und Name der Station, Koordinaten, Meereshöhe, Datum der In- und Außerbetriebnahme der Stationen, Typ der Station (Industrie, Verkehr, Hintergrund), Informationen zur Umgebung der Station (ländlich, städtisch, suburban, etc.). Diese werden zusammengeführt mit den Konzentrationsdaten von SO₂, O₃, NO₂, NO und NO_x.

In früheren Arbeiten ähnlicher Thematik (Köble et. al. 1997, Gauger et. al. 2000, Anshelm & Gauger 2002) war es notwendig eine aufwändige Reklassifizierung der Stationen durchzuführen, da Stationen die direkt durch Verkehrsemissionen beeinflusst sind aufgrund ihrer geringen Repräsentativität nicht bei der Kartierung von Ozon- und Stickstoff-Konzentrationen verwendet werden sollten und in der Datenbank diesbezügliche Informationen nicht für alle Stationen vorhanden waren. Diese Reklassifizierung entfällt, da mittlerweile (Gauger et al 2008) die Meta-Informationen aller Stationen in der UBA-Datenbank vorliegen. Diese Meta-Informationen können als Bericht der sogenannten EU-Meta-Stationen von der Webseite der UBA Stationsdatenbank (<http://www.env-it.de/stationen/public/downloadRequest.do>) herunter geladen werden.

Neben den mittleren jährlichen Konzentrationen werden zur Berechnung der AOT40-Werte (siehe Kap 4.3) die Ozonkonzentrationen zusätzlich auch in stündlicher Auflösung in der INS/UBA Luftqualitäts-Datenbank vorgehalten (Tabelle 2.1).

Tabelle 2.1: Datenbestand der INS/UBA Luftqualitäts-Datenbank

	Zeitbezug	K ⁽¹⁾	hPa ⁽²⁾	Jahre
NO ₂	Jahresmittelwerte	293	1013	1985-2007
NO	Jahresmittelwerte	293	1013	1992-2007
SO ₂	Jahresmittelwerte	273	1013	1985-2007
O ₃	Jahresmittelwerte	293	1013	1990-2007
O ₃	Stundenmittelwerte	293	1013	1990-2007

⁽¹⁾Bezugstemperatur, ⁽²⁾Bezugsluftdruck

3 Kartierung der Schadgasimmissionen

Die flächendeckende Kartierung von Luftschadstoffkonzentration in hoher räumlicher Auflösung ist eine der Hauptaufgaben des INS-MAPESE-Teilprojektes. Es werden so Informationen über die Konzentrationen von SO₂, NO, NO₂ und O₃ für ganz Deutschland bereitgestellt, die räumlich differenzierte Aussagen über den Zeitraum mehrerer Jahre ermöglichen. Zur flächendeckenden Berechnung werden geostatistische Methoden (Kriging-Modell) eingesetzt.

Die Qualität der interpolierten Karten wird bestimmt durch die Qualität der Messdaten und die räumliche Dichte der Monitoringstationen des gesamten verfügbaren Messnetzes im jeweils betrachteten Jahr. Eine hohe Dichte und gleichmäßige Verteilung von Messstationen liefert die belastbarsten Kartierungs-Resultate. Die Anzahl und Verteilung der verfügbaren Messungen kann von Jahr zu Jahr und von Schadgas zu Schadgas erheblich variieren.

Der Fehler der Interpolation lässt sich mit Hilfe der Krigingvarianz flächenhaft als Schätzfehler in den gleichen Einheiten wie in den Konzentrationskarten angeben:

$$\text{Schätzfehler} = 2 * (\text{Krigingvarianz})^{1/2}$$

Tabelle 3.1 zeigt die Anzahl der Datensätze, die pro Jahr für die Interpolation zur Verfügung stehen.

Im Fall von SO₂ wurden alle zur Verfügung stehenden Datensätze auch zur Interpolation herangezogen. Bei der Interpolation von NO₂, NO und O₃ wurden Daten von Messstationen nicht verwendet, die durch Verkehrsemissionen direkt beeinflusst sind. Die Zuordnung der Stationen geschieht anhand der Meta-Daten, die in der Liste „Bericht EU-Meta-Stationen“ des Umweltbundesamtes im Internet zum download verfügbar ist (<http://www.env-it.de/stationen/public/downloadRequest.do>).

Tabelle 3.1: Anzahl der zur Modellierung und Kartierung herangezogenen Messstationen

	Stationen	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007
SO ₂	alle	421	403	311	285	278	252	223	188
NO ₂	Hintergrund	322	320	326	295	281	246	236	236
NO	Hintergrund	321	320	323	294	281	247	236	236
O ₃	Hintergrund	297	299	301	283	275	237	239	237
AOT40 _c	Hintergrund	293	294	298	257	268	237	239	232
AOT40 _{asv}	Hintergrund	293	294	298	257	268	237	238	231
AOT40 _{f, psv}	Hintergrund	294	296	298	255	267	237	239	232

AOT = Accumulated exposure Over a Threshold of 40 ppb; Summe der Überschreitungen eines Stundenmittels von 40 ppb (entspricht etwa 80 µg m⁻³)
 Die AOT40-Berechnung unterscheidet sich für folgende drei Rezeptorengruppen:
 AOT40_c = AOT40 für landwirtschaftliche Nutzpflanzen (Crops)
 AOT40_{asv} = AOT40 für Annuelle Seminatürliche Vegetation
 AOT40_{f, psv} = AOT40 für Fwälder (Forest) und für Perennierende Seminatürliche Vegetation

Die Anzahl der Messstationen geht bei allen Komponenten im betrachteten Zeitraum zurück, besonders deutlich ist die Abnahme der Stationen bei SO₂ zu beobachten. Dies ist i.d.R. auf Messnetzkonsolidierungen zurückzuführen, bei SO₂ auf den starken Rückgang der Emissionen und damit der Immissionen, insbesondere im Verlauf der 1990er Jahre, dem eine sehr umfangreiche fortgesetzte Ausdünnung der Messstellendichte folgte.

3.1 Kartierung der SO₂ Konzentration

Anthropogenes Schwefeldioxid wird vor allem bei Verbrennungsprozessen freigesetzt. Der in fossilen Brennstoffen mit bis zu 4% vorhandene Schwefel wird oxidiert und gelangt so in die Atmosphäre. SO₂ Emissionen entstehen insbesondere bei der Aufbereitung von Rohöl oder Erdgas, der Metallproduktion und in der chemischen Industrie.

Schwefeldioxid ist seit langem als Schadgas bekannt. Es hat negative Effekte auf die menschliche Gesundheit, Pflanzen und Materialien. Pflanzen und Materialien werden vor allem durch die Bildung von Schwefelsäure

(„saurer Regen“) beeinträchtigt, beim Menschen wirkt es auf die Schleimhäute der Atmungsorgane und führt zu Atemproblemen.

Es existieren verschiedene nationale und internationale Richtlinien und Verordnungen unterschiedlicher Verbindlichkeit die Emission und Konzentration von SO₂ betreffend. Tabelle 3.2 gibt einen Überblick über die für Vegetation und Ökosysteme als Schutzgut relevanten und aktuell gültigen Grenz- und Richtwerte der SO₂ Konzentration in der Luft. Eine weitere, in der Tabelle nicht genannte, wichtige Verordnung ist die „Großfeuerungsanlagenverordnung vom 22. Juni 1983 (13. BImSchV), die durch eine Verschärfung der Emissionsgrenzwerte für Kraftwerke großen Einfluss auf den Rückgang der SO₂ Emissionen hatte. Abbildung 3.1 zeigt dass die verschiedenen Anstrengungen zur Reduzierung der SO₂ Emissionen tatsächlich zu einer raschen Abnahme der Emissionen von über 7700 kt/a 1985 auf 560 kt/a im Jahr 2004 (das entspricht einem Rückgang um 92,8%) führten, wobei sich die Emissionen seit 2000 allerdings nur noch in geringem Maße verringerten.

Tabelle 3.2: Grenz- und Richtwerte für die SO₂ Konzentration in der Luft

Quellen	Wert ($\mu\text{g m}^{-3}$)	gemittelt über	Schutzgut	Verbindlichkeit
22. BImSchV (2002); TA Luft (2002); 1. Daughter Directive (1999/30/EC) to Air Quality Framework Directive (96/62/EC)	20	1 Jahr oder 1.10.-31.3	Ökosysteme	Grenzwert
UN ECE „Gothenburg Protocol“; Mapping Manual* (2004)	10	1 Jahr	Flechten	Critical Level
	20		Wälder/natürliche Vegetation	Critical Level
	30		landwirtschaftliche Nutzpflanzen	Critical Level

* ICP Modelling & Mapping (2004): Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping Critical Loads & Levels and air pollution effects, risks and trends

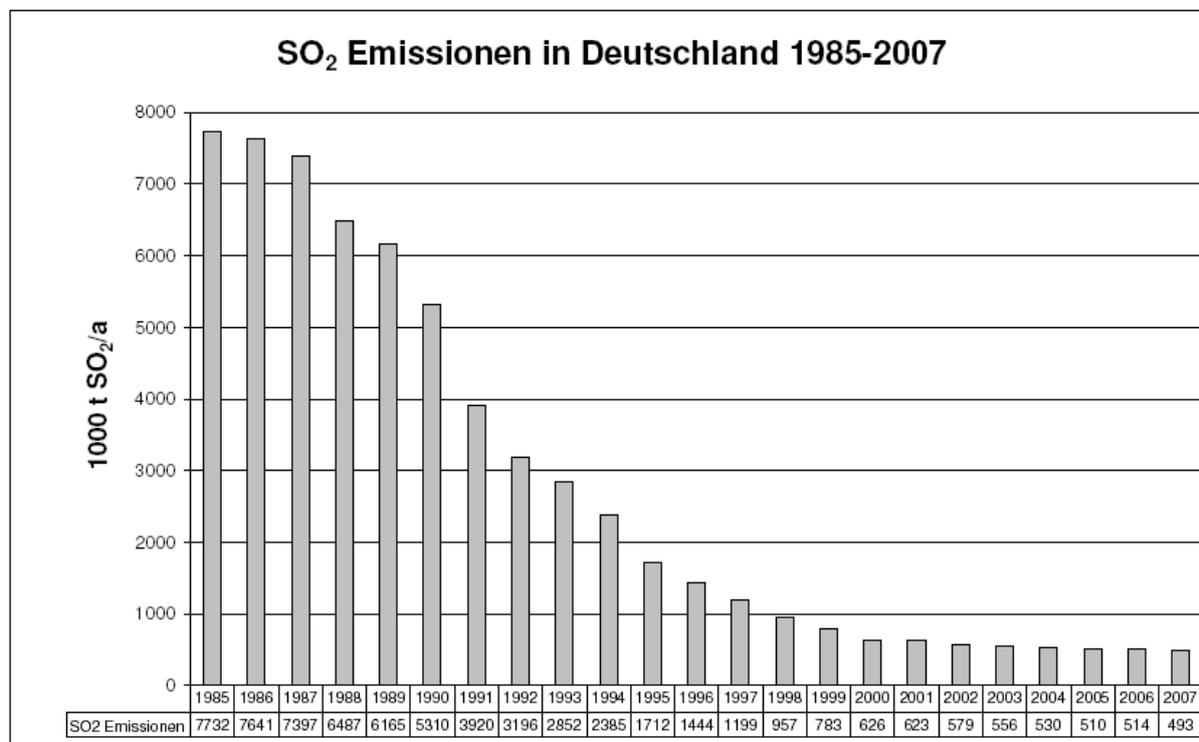


Abbildung 3.1: Entwicklung der SO₂ Emissionen in Deutschland 1985-2007

(<http://www.ceip.at/emission-data-webdab/emission-as-reported-by-parties/>, 10/2009)

Die Abnahme der SO₂ Emissionen wirkte sich unmittelbar auf die Konzentrationen aus. Abbildung 3.2 zeigt den Rückgang der SO₂ Konzentration seit 1985 als Auswertung der Statistiken aus den am INS vorliegenden

Kartierungen (man beachte die logarithmische Skalierung der Y-Achse). Seit 1985 (Mittelwert: 52 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Median 41 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ist die mittlere SO_2 Konzentration in Deutschland auf 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahr 2001 zurückgegangen. Das entspricht einem Rückgang um 93,3%. Seitdem bleiben die Werte in etwa konstant. Noch etwas stärker ist der Rückgang bei den Maximalwerten (über 96% Abnahme seit 1985, nimmt man 1987 als Bezugsjahr sogar 97,6%) und beim Wertebereich, der von 453 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zwischen Maximum und Minimum im Jahr 1987 auf 9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zurückgegangen ist.

Die Tatsache, dass die Immission nicht ebenso gleichmäßig wie die Emission zurückgegangen ist kann auf Witterungseinflüsse zurückgeführt werden, die den Effekt der Emissionsreduzierung maskieren. So ist das wieder Ansteigen der mittleren Konzentrationen in den Jahren 1987 und 1996 auf einen besonders kalten Winter mit einer längeren und intensiveren Heizperiode sowie häufig auftretenden Inversionswetterlagen zurückzuführen.

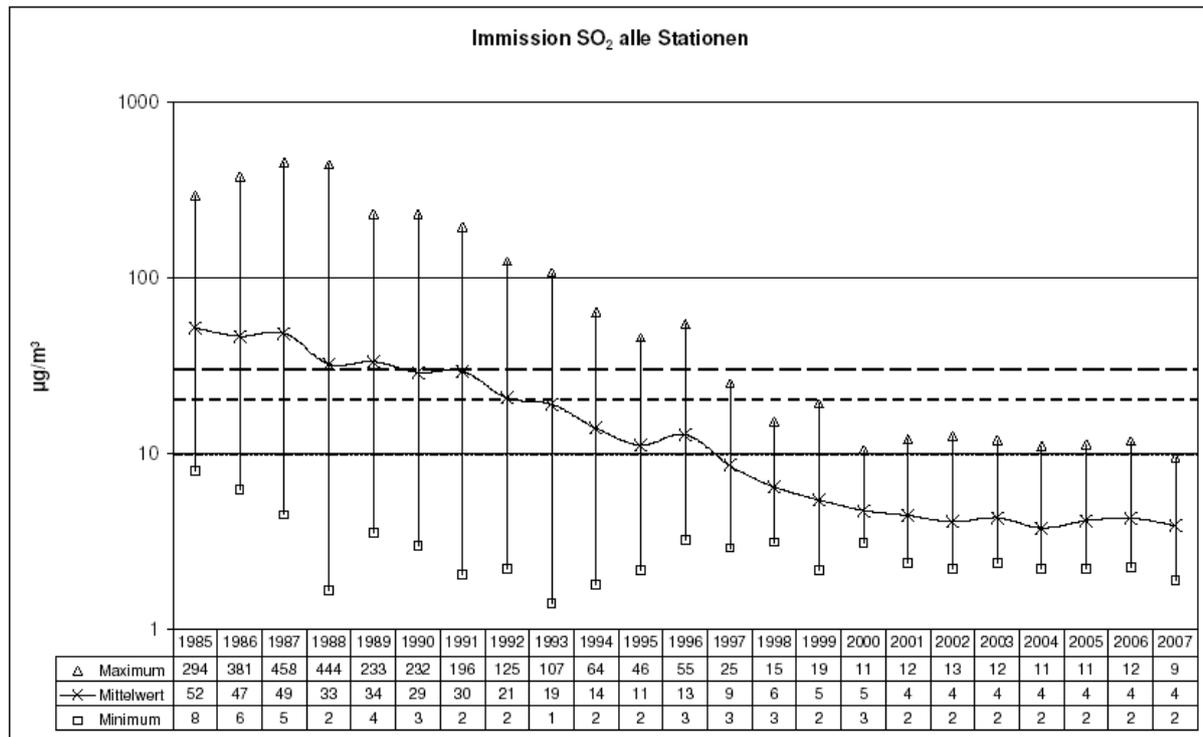
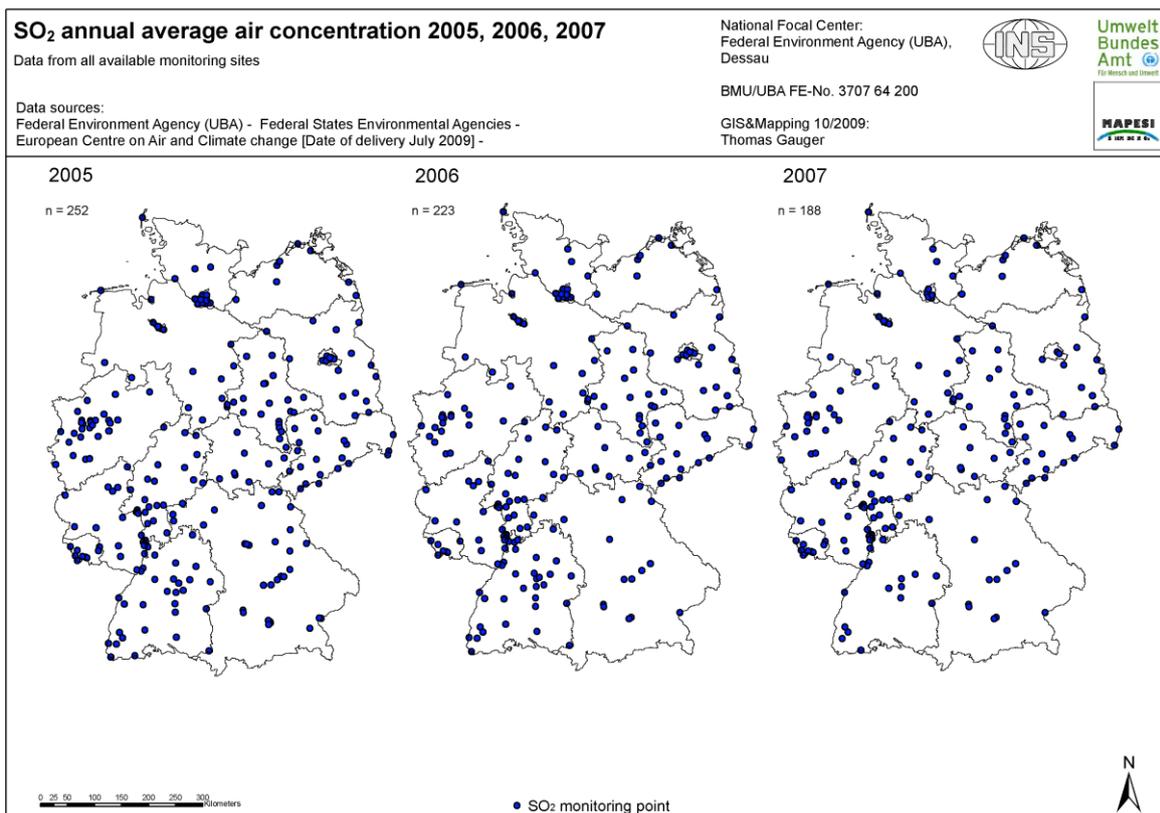
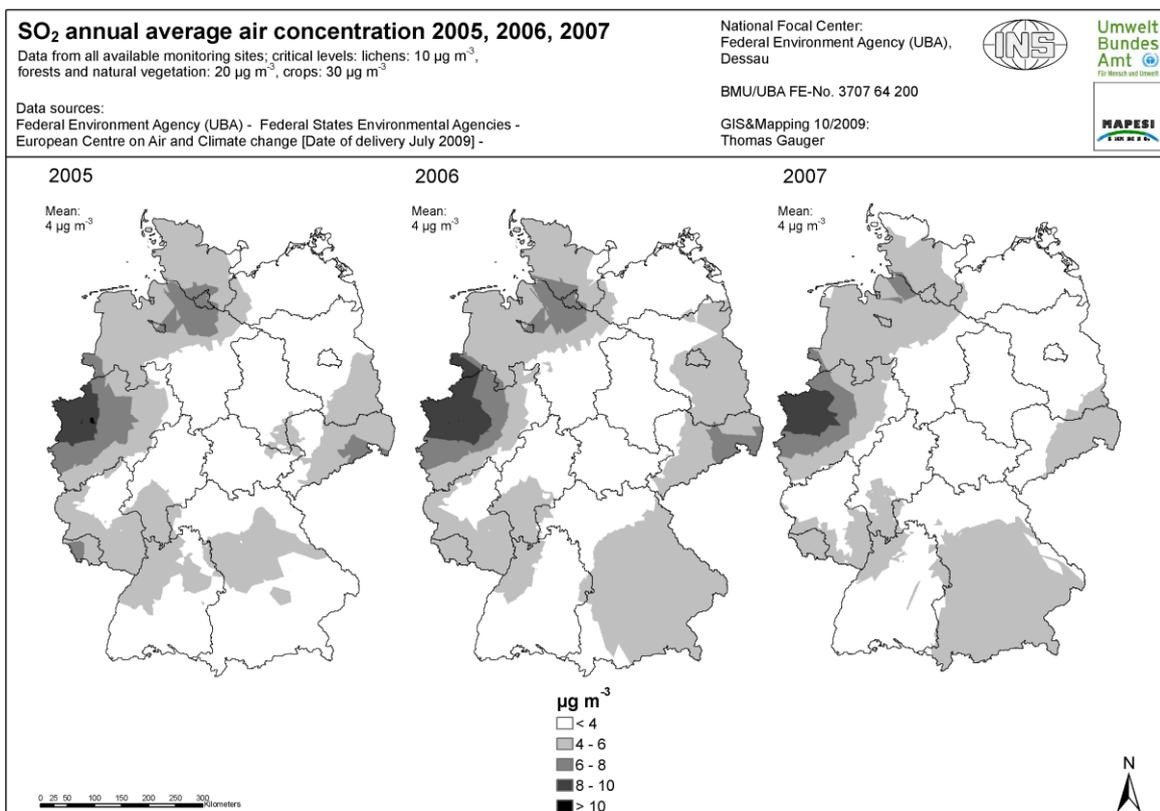


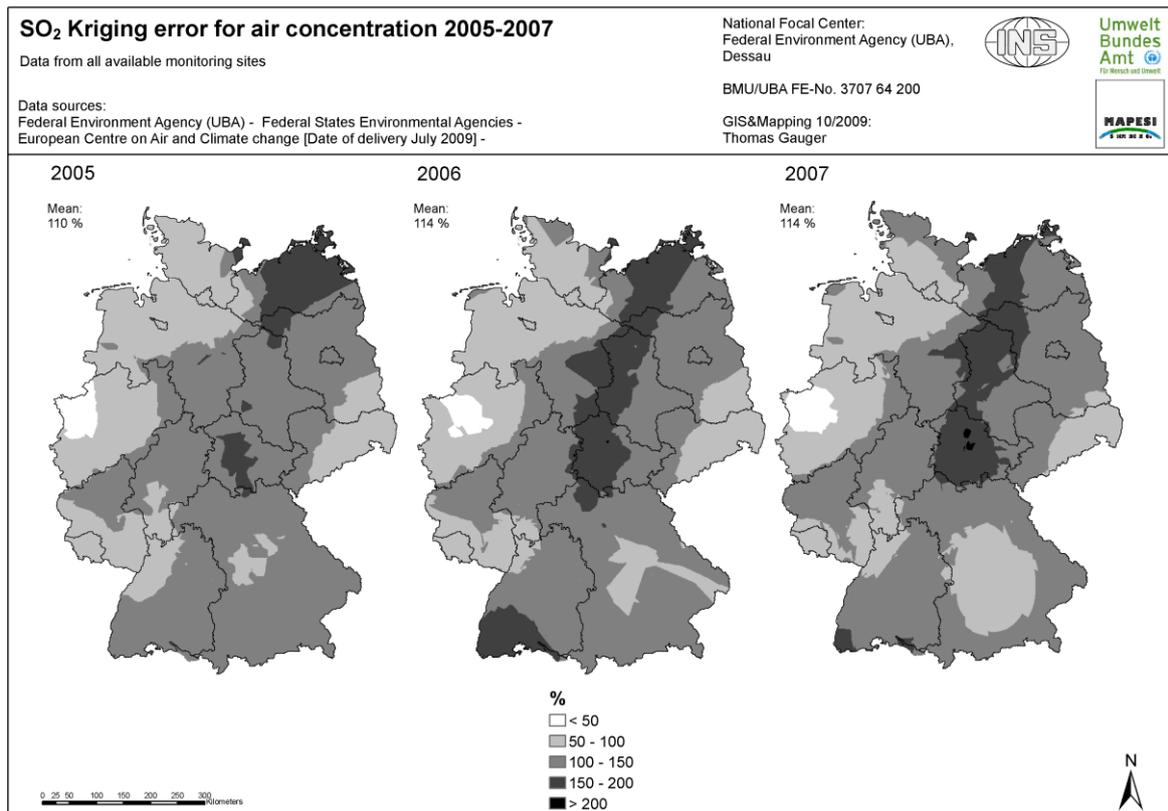
Abbildung 3.2: Statistische Kennwerte der SO_2 -Konzentration 1985-2004
(Critical Levels: 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, vgl. Tabelle 3.2)

Karten der SO_2 Konzentration liegen am INS als Modellberechnungen für die Zeitreihe der Jahre 1985-2007 vor. Im vorliegenden Bericht werden nur die neu im aktuellen Forschungsvorhaben (BMU/UBA 3707 64 200) modellierten Karten der Jahre 2005-2007 gezeigt (vgl. Karte 1), für frühere Jahre sei auf die entsprechenden Projekt-Abschlussberichte verwiesen (Gauger et al. 2002 und Gauger et al. 2008), die auf der Internet-Seite des Instituts für Navigation der Universität Stuttgart zur Forschung im Bereich Critical Loads zum download als pdf-files per Link bereitgestellt werden (http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/).

Die regionale Verteilung der SO_2 Konzentrationen ist in den Jahren 2000-2007 weitgehend ähnlich. Die höchsten Werte treten im Ruhrgebiet mit maximal 12,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahre 2002 auf. Gehalte bis knapp unter 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ gibt es sonst nur noch 2000 im Saarland. Leicht erhöhte Konzentrationen in 2005-2007 bis über 6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (s. Karte 2) finden sich in Nordwestdeutschland, dem Saarland und dem südlichen Rheinland-Pfalz, im Rhein-Main- und Rhein-Neckar-Gebiet, in Süd-Sachsen, über Südost-Brandenburg, entlang der Grenze zur Tschechischen Republik und Teilen Bayerns. In großen Teilen Deutschlands (Ostseeküste/Mecklenburg-Vorpommern, Berlin und weite Teile Brandenburgs, Sachsen-Anhalt, Thüringen, Nordhessen, Südost-Niedersachsen, weite Teile Baden-Württemberg und Bayerns) liegen die Schwefeldioxidkonzentrationen in den Jahren 2005-2007 (s. Karte 2) unterhalb von 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

Zusätzlich werden für jedes Jahr die Karten des Schätzfehlers dargestellt (siehe Karte 3). Der Fehler variiert in den einzelnen Jahren nur wenig, meist umfasst der Wertebereich weniger als 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Der maximale Schätzfehler liegt immer im Bereich oder unterhalb des Mittelwertes der Konzentration. Insgesamt spricht dies trotz des starken Rückgangs der Anzahl der Monitoring-Stationen für eine immer noch ausreichende Messnetzdicke, und der Schätzfehler ist als gering zu bewerten.

Karte 1: SO₂-Konzentrationen: Messpunkte 2005-2007Karte 2: SO₂-Konzentration 2005-2007



Karte 3: SO₂-Konzentrationen: Kriging-Fehler 2005-2007

3.2 *Kartierung der NO₂ und NO Konzentration*

Ähnlich wie Schwefeldioxid verursachen Stickstoffoxide (NO, NO₂ bzw. deren Summe NO_x) Schädigungen der Atmungsorgane und tragen durch die Bildung von Salpetersäure (HNO₃) zur Versauerung bei. Durch den so entstehenden „Saurer Regen“ werden Schäden an Pflanzen, Materialien und Bauwerken verursacht. Andererseits gibt es durch den Stickstoff auch einen Düngeneffekt für die Pflanzen, so dass der zusätzliche Stickstoff auch zu einer Überdüngung (Eutrophierung) der Ökosysteme führen kann.

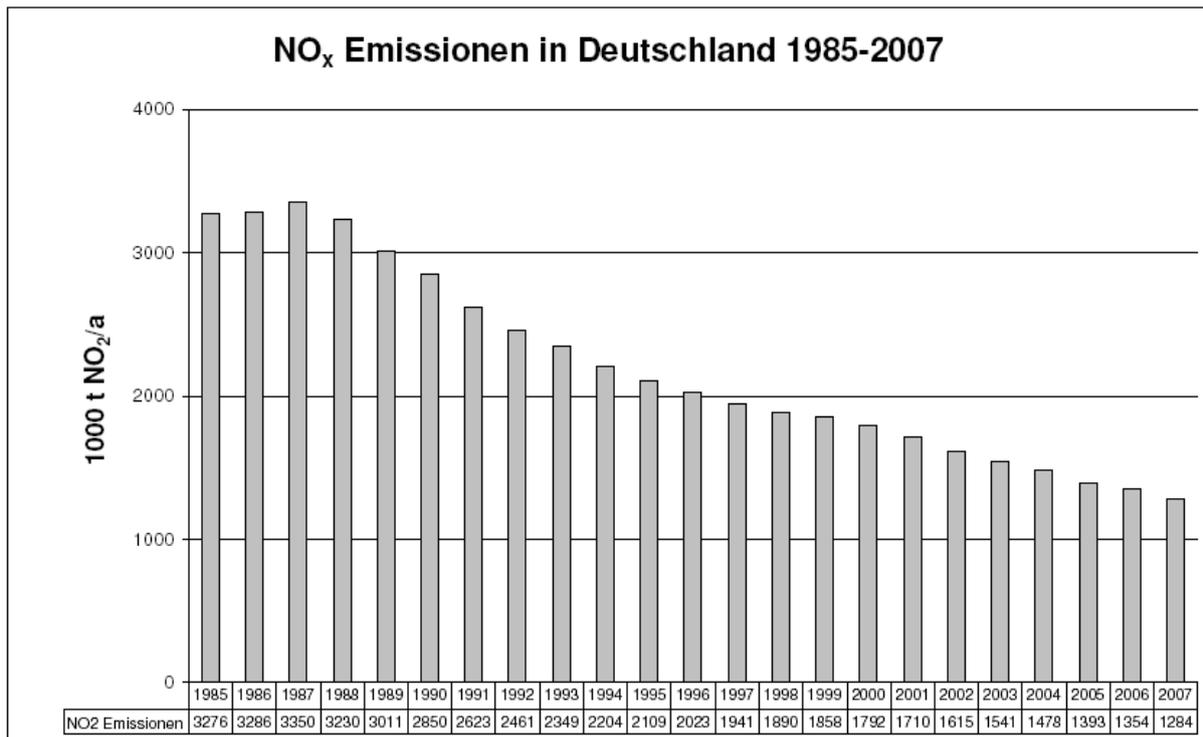


Abbildung 3.3: Entwicklung der NO_x Emissionen in Deutschland 1985-2007

(<http://www.ceip.at/emission-data-webdab/emission-as-reported-by-parties/>, 10/2009)

Stickstoffoxide (NO₂, NO) sind chemische Nebenprodukte von Hochtemperaturverbrennungsprozessen z.B. im Kraftfahrzeugverkehr oder in Feuerungsanlagen (Oxidation von Stickstoff in der Abluft). Die Chemische Industrie ist eine weitere wichtige Quelle von Stickoxiden (Düngemittelproduktion, Produktion von Salpetersäure (HNO₃)). Hauptsächlich werden Stickstoffoxide als NO emittiert, welches in der Atmosphäre mit Sauerstoff und besonders effektiv mit Ozon weiter zu NO₂ oxidiert wird. Innerhalb weniger Minuten stellt sich ein Gleichgewicht zwischen NO, NO₂ und O₃ ein. Der Anteil von NO₂ überwiegt meist den Anteil von NO wenn die Gesamtkonzentration von NO_x gering ist oder die O₃ Konzentration hoch, bzw. eine starke Sonneneinstrahlung vorherrscht. In der Nähe von Emissionsquellen kann dagegen der NO-Anteil höher als der NO₂-Anteil sein. Mit zunehmender Entfernung von diesen Emissionsquellen nimmt der NO-Anteil stark ab, bis er vernachlässigbar gering ist. Da nur Stationen, die nicht direkt vom Verkehr beeinflusst sind, in die Interpolation einfließen, sind die NO-Werte verglichen mit den NO₂-Werten sehr viel kleiner (im Durchschnitt erreichen sie ungefähr 1/3 der NO₂-Werte).

Abbildung 3.3 stellt die NO_x Emissionen im Verlauf der Jahre 1985-2007 dar. Sie sind im betrachteten Zeitraum um ca. 53% gesunken. Besonders stark ist der Rückgang zwischen Ende der 80er bis Anfang der 90er Jahre. Dies ist insbesondere auf die Umsetzung der Großfeuerungsanlagenverordnung und den wirtschaftlichen Wandel nach 1989 auf dem Gebiet der fünf neuen Bundesländer zurückzuführen.

Es existieren zahlreiche nationale und internationale Richtlinien und Verordnungen, die sich mit der Reduzierung der Konzentration von Stickstoffoxiden in der Atmosphäre befassen. Tabelle 3.3 gibt einen Überblick über die für Vegetation und Ökosysteme als Schutzgut relevanten und aktuell gültigen Grenz- und Richtwerte der NO_x Konzentrationen in der Luft.

Mit Hilfe der Formel

$$\text{NO}_x [\mu\text{g}/\text{m}^3] = (\text{NO}_2[\mu\text{g}/\text{m}^3] / 2,05 + \text{NO}[\mu\text{g}/\text{m}^3] / 1,34) * 2,05$$

wird NO_x als Summe von NO und NO_2 berechnet. Die Berechnung wird direkt mit den GIS-modellierten digitalen flächendeckenden Datensätzen durchgeführt.

Tabelle 3.3: Grenz- und Richtwerte für die NO_2 Konzentration in der Luft

Quellen	Wert ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	gemittelt über	Schutzgut	Verbindlichkeit
22. BImSchV (2002); TA Luft (2002); 1. Daughter Directive (1999/30/EC) to Air Quality Framework Directive (96/62/EC)	30	1 Jahr	Vegetation	Grenzwert
UN ECE „Gothenburg Protocol“; Mapping Manual* (2004)	30	1 Jahr	Vegetation	Critical Level

* NO_x angegeben als NO_2
 ** ICP Modelling & Mapping (2004): Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping Critical Loads & Levels and air pollution effects, risks and trends

Zwischen 1985 und 1999 ist anhand der Mittelwerte der am INS vorliegenden Kartierungsergebnisse ein leicht rückläufiger Trend der NO_2 -Immissionen festzustellen, der mehr oder weniger wellenförmig verläuft. Nach 1999 scheint der Rückgang gestoppt zu sein und sich die Konzentration im Mittel um $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu stabilisieren (Abbildung 3.4).

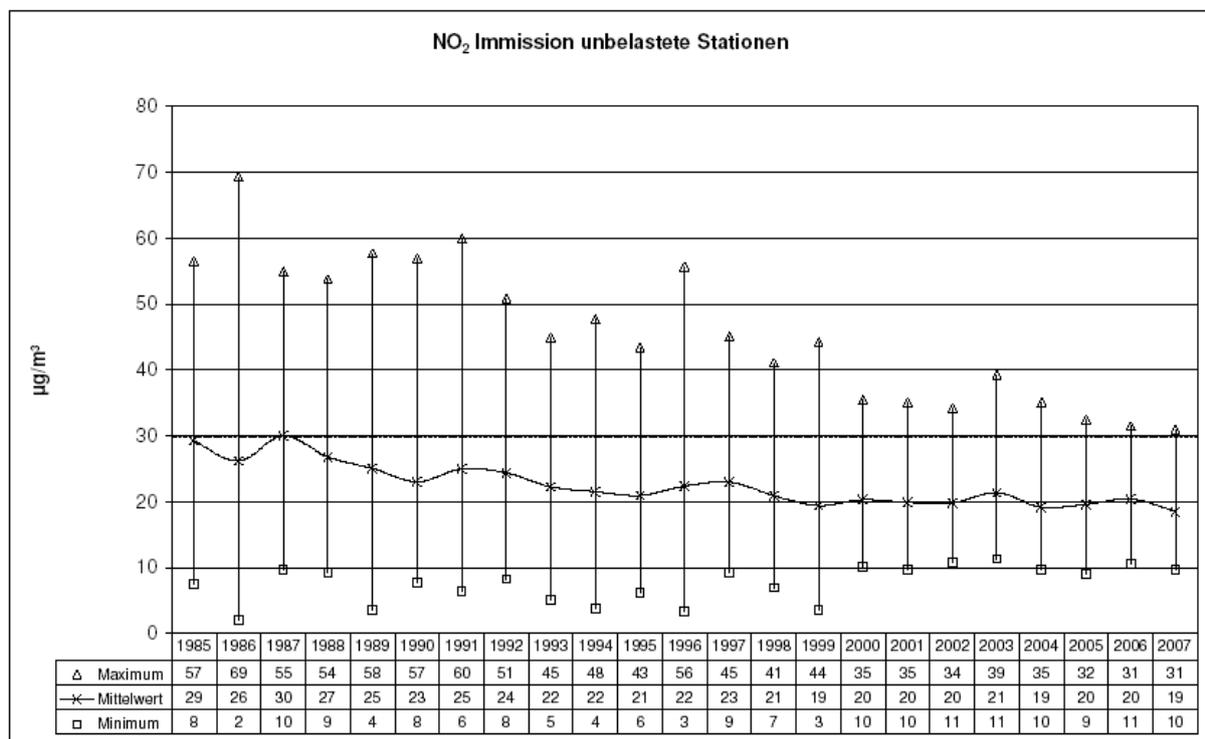


Abbildung 3.4: Statistische Kennwerte der NO_2 -Konzentration 1985-2007 (Critical Level NO_x : $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$)

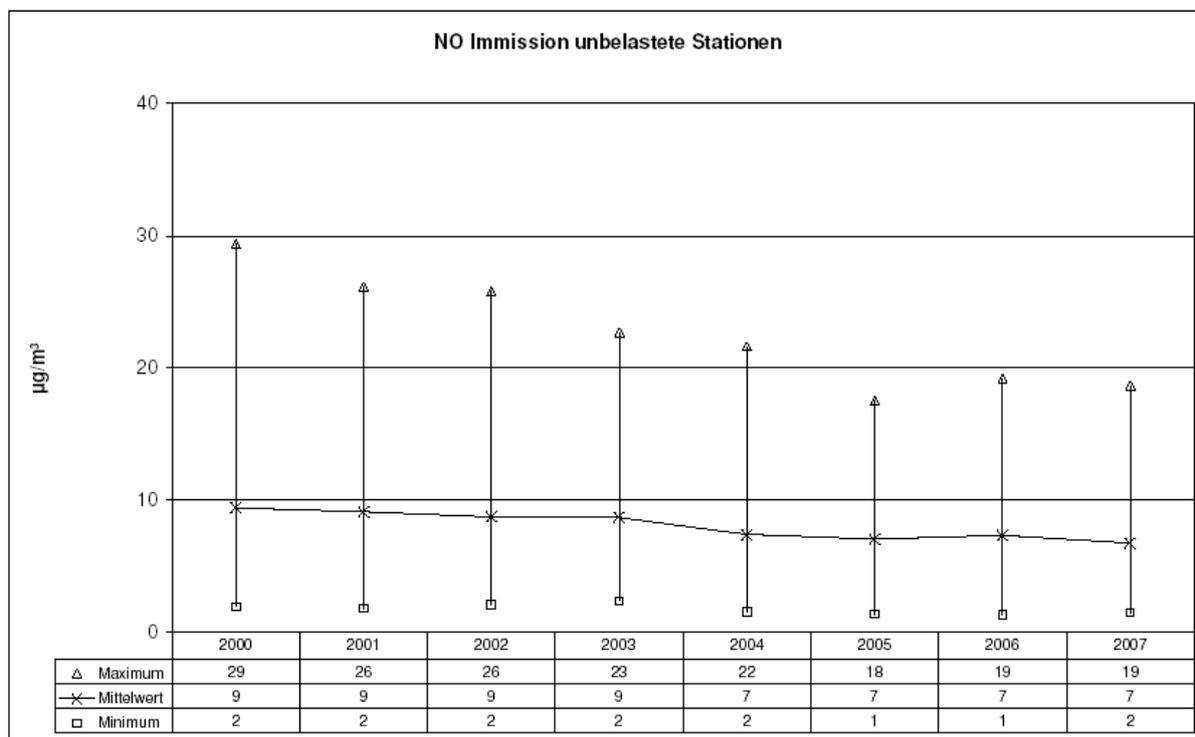


Abbildung 3.5: Statistische Kennwerte der NO-Konzentration 2000-2007

Die NO Konzentration hat sich seit 2000 im Mittel nicht sehr wesentlich verändert. Ab dem Jahr 2004 geht der Mittelwert um $2\mu\text{g}/\text{m}^3$ leicht zurück. Bei den Maxima ist dagegen in den acht betrachteten Jahren ein leichter Rückgang von $29\mu\text{g}/\text{m}^3$ in 2000 auf $19\mu\text{g}/\text{m}^3$ in 2007 festzustellen (Abbildung 3.5).

Entsprechend der NO_2 und NO Konzentration verhält sich die Summe der beiden Stickstoffoxide. Einem leichten Rückgang der Konzentrationen bis etwa 1999 folgt die Stagnation der Mittelwerte bei etwa 33 bis $35\mu\text{g}/\text{m}^3$, ab 2004 liegen die Mittelwerte zwischen 29 und $33\mu\text{g}/\text{m}^3$, die Maximalwerte fallen von $80\mu\text{g}/\text{m}^3$ in 2000 auf $59\mu\text{g}/\text{m}^3$ ab dem Jahr 2005 (Abbildung 3.6).

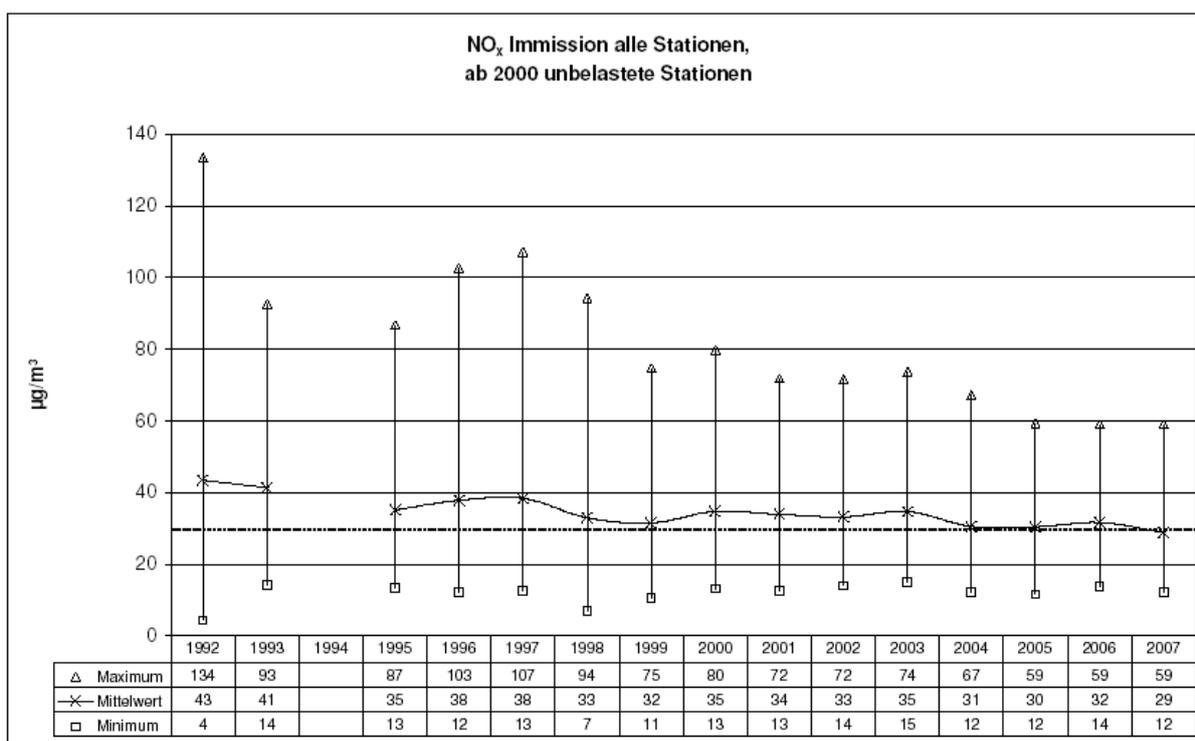


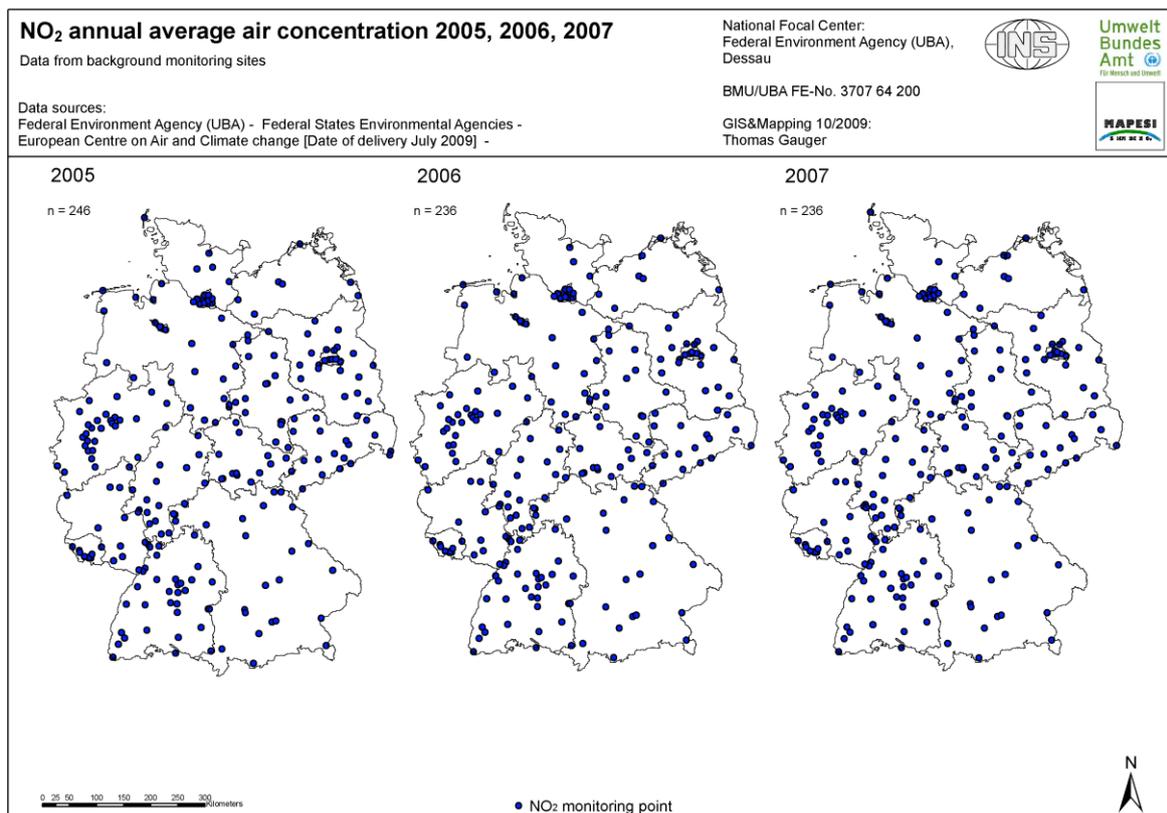
Abbildung 3.6: Statistische Kennwerte der NO_x -Konzentration 1992-2007 (Critical Level NO_x : $30\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Die Karten der drei Stickstoffspezies (Karten 5, 8 und 10) zeigen für jedes Jahr ein ähnliches Verteilungs-Bild: Hohe Konzentrationen im Mittleren Neckar Raum und in den Ballungsräumen entlang des Rheins. Meist nicht ganz so hoch sind die Werte in Bayern, Hamburg und Berlin. Die niedrigsten Belastungen mit Stickstoffoxiden treten in Vorpommern auf.

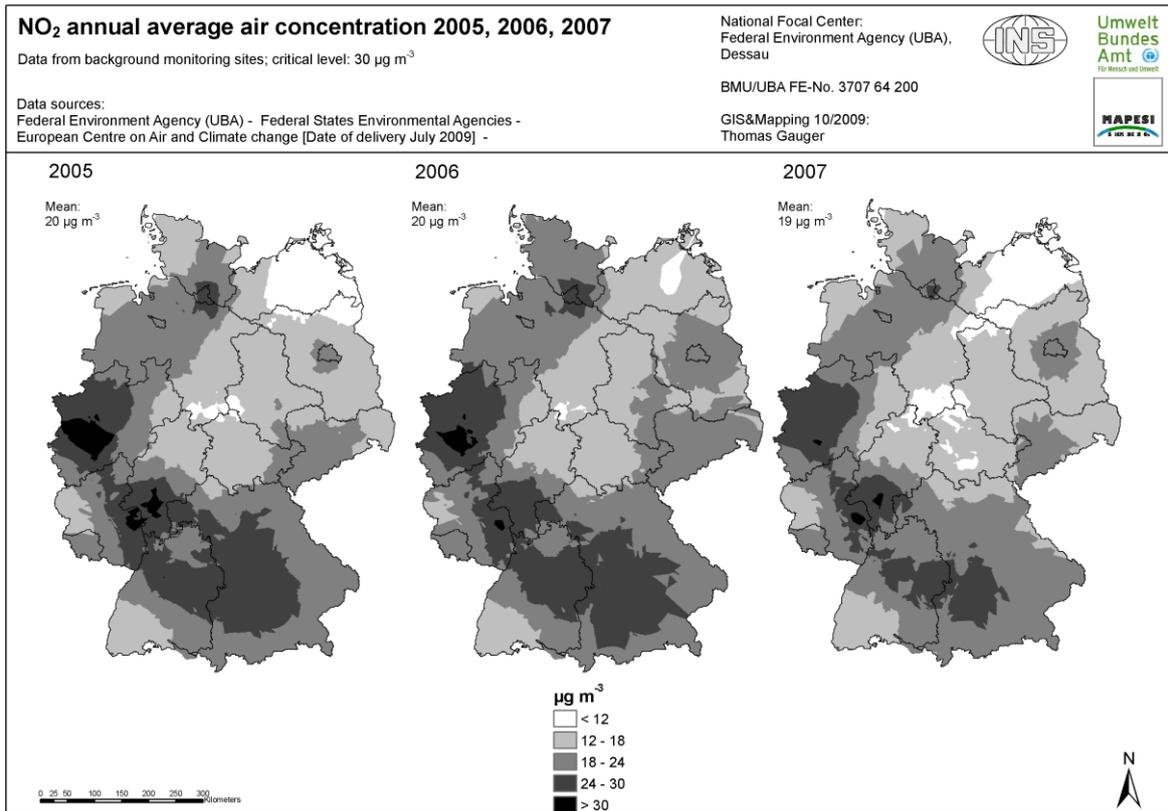
Bei den Karten des Schätzfehlers (Karten 6, und 9) ist in einigen Jahren die Verteilung der Messstationen (Karten 4 und 7) gut abzulesen: Dort, wo geringere Schätzfehler vorliegen, ist die Messnetzdichte in der Regel größer als dort, wo höhere Schätzfehler vorliegen. Auch die Höhe der gemessenen Konzentrationen, die in allen Jahren sehr ähnlich verteilt sind macht sich in den Karten des Schätzfehlers bemerkbar: in der Regel sind die Schätzungen der niedrigen Konzentrationen mit höheren Fehlern behaftet.

Die Häufigkeit des Vorkommens von dicht beieinander liegenden Stationen (vgl. Karten 4 und 7) mit stark bis extrem variierenden Messwerten hat in den betrachteten Jahren 2005 bis 2007 keinen sichtbaren Effekt auf das Kartierungsergebnis und den Schätzfehler. Je mehr dieser Stationen-Cluster mit unterschiedlichen Messergebnissen vorlägen, desto ungenauer wäre auch die Gesamtschätzung (der so genannte Nuggeteffekt wird größer).

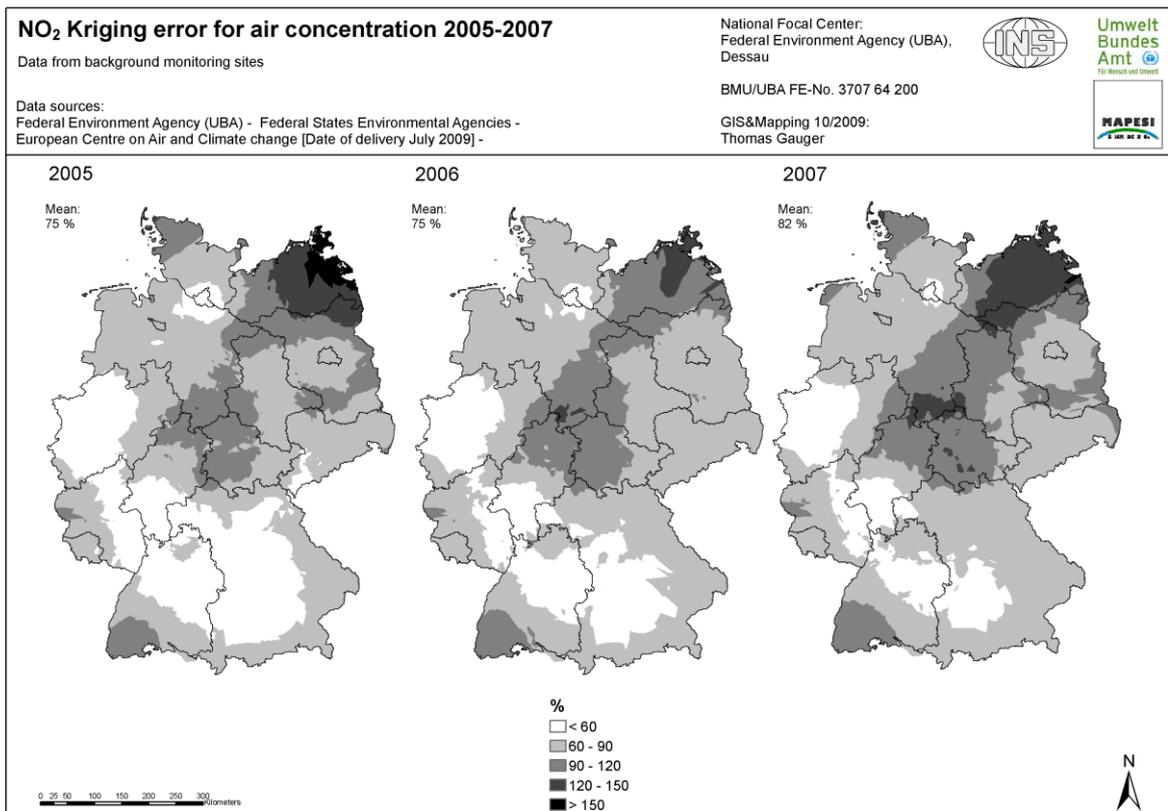
Beim NO_2 ist der Schätzfehler vergleichsweise gering (Karte 6), er erreicht zumeist nur selten mehr als 2/3 des Mittelwertes der Konzentrationen. Der Schätzfehler der NO -Karten (Karte 9) ist im Gegensatz dazu durchgängig größer als der Mittelwert der Konzentrationen. Dies ist möglicherweise auch ein Ausdruck der Tatsache, dass NO Moleküle sehr reaktiv sind und demnach die Konzentrationen benachbarter Messorte sehr unterschiedlich sein können.



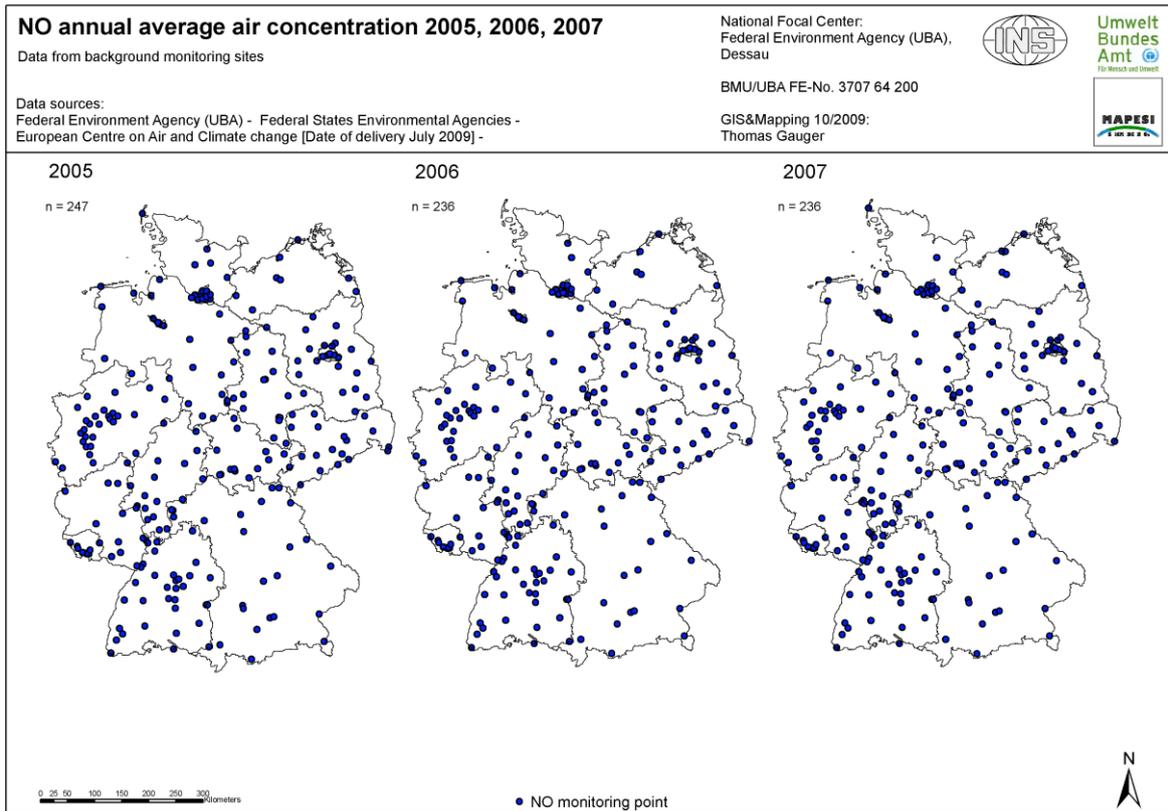
Karte 4: NO_2 -Konzentration: Messpunkte 2005-2007



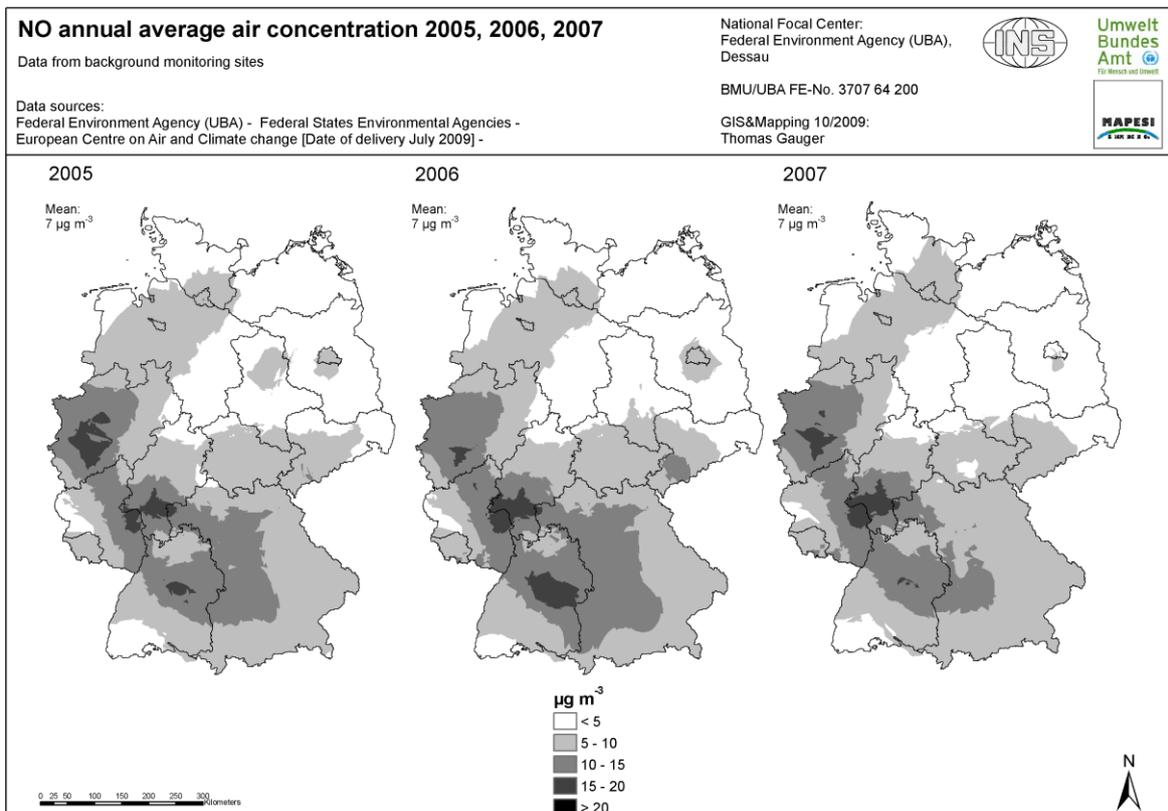
Karte 5: NO₂-Konzentration



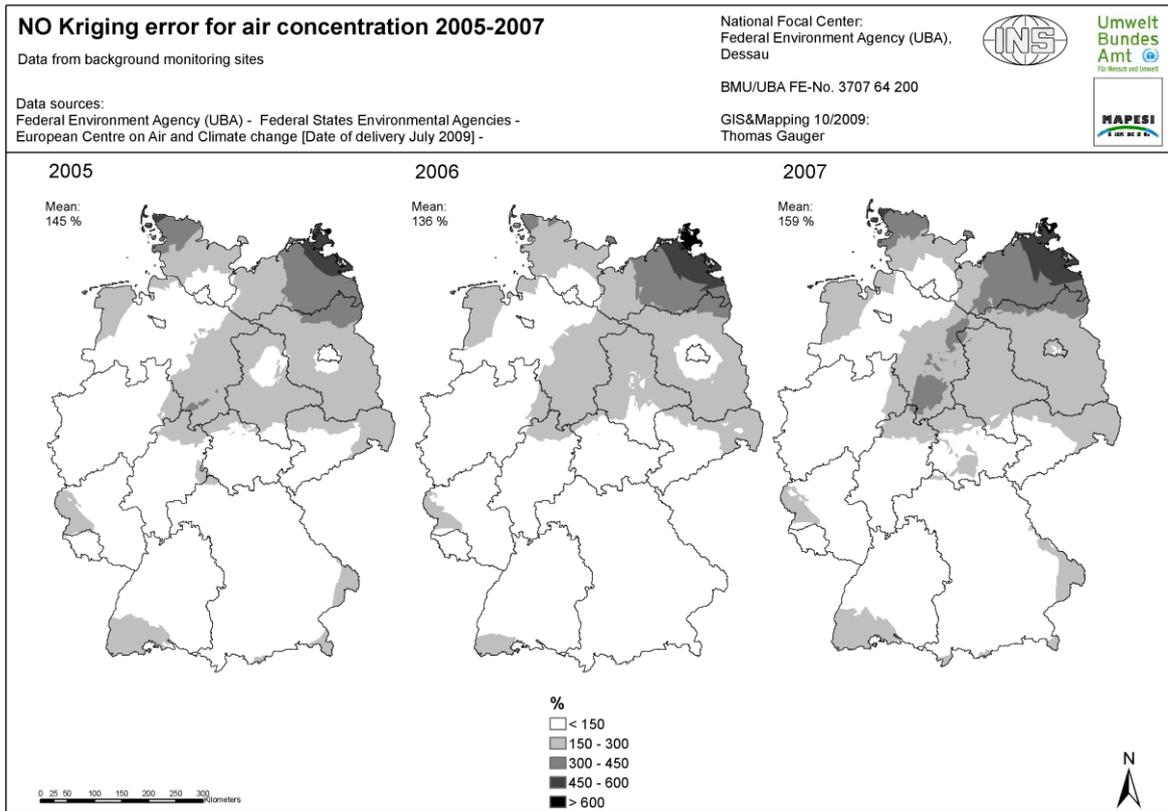
Karte 6: NO₂-Konzentration: Kriging-Fehler 2005-2007



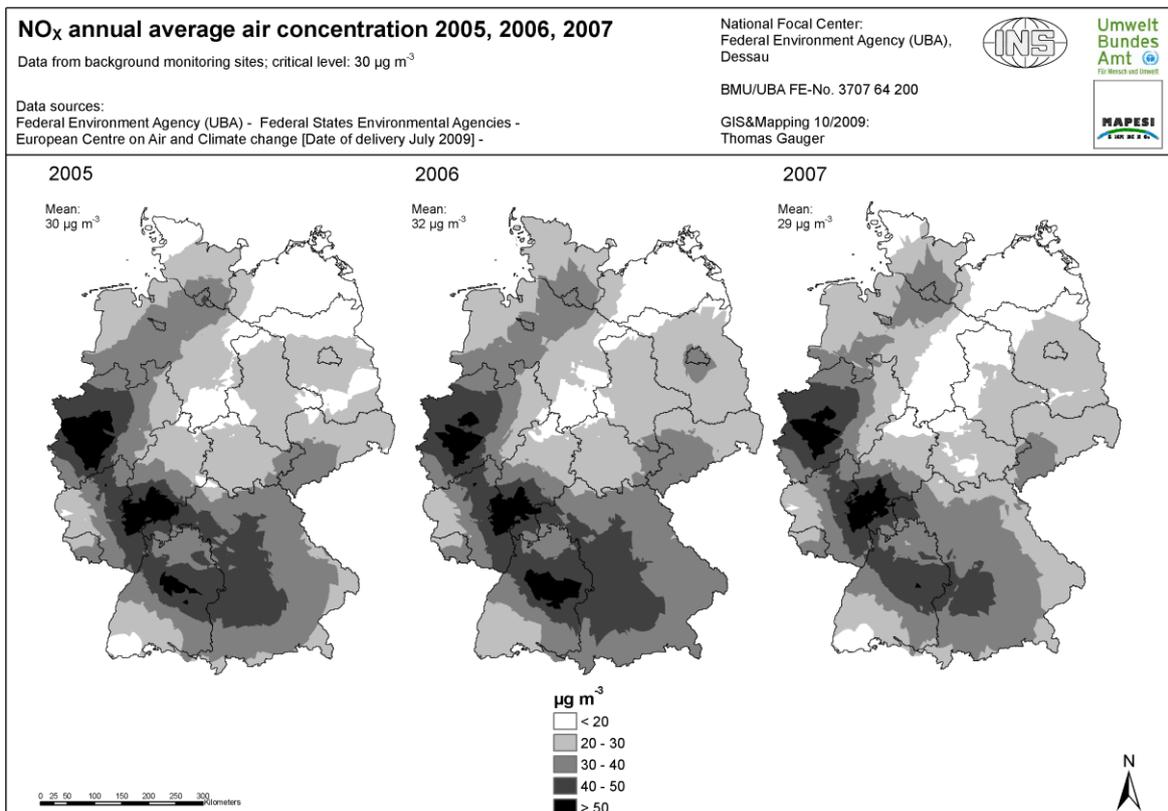
Karte 7: NO-Konzentration: Messpunkte 2005-2007



Karte 8: NO-Konzentration 2005-2007



Karte 9: NO-Konzentration: Kriging-Fehler 2005-2007



Karte 10: NOx-Konzentration 2005-2007

3.3 Kartierung der O₃ Konzentration

Troposphärisches Ozon entsteht vorwiegend durch photochemische Prozesse. Unter Einfluss von UV-Strahlung entsteht aus flüchtigen organischen Verbindungen (VOC bzw. NMVOC) und Stickstoffoxiden O₃. VOC und NO₂ werden deshalb auch als Vorläufersubstanzen des Ozons bezeichnet.

In Abbildung 3.7 sind die NMVOC Emissionen in Deutschland der Jahre 1985-2007 dargestellt. Bezogen auf das Jahr 1985 wurden 2004 nur noch 40% NMVOC emittiert, bezogen auf das Jahr 1990 sind es 2004 nur noch 36%, danach ist ein weiterer leichter Rückgang der Emissionen festzustellen, der 2007 ca. 34% des Wertes für 1990 entspricht.

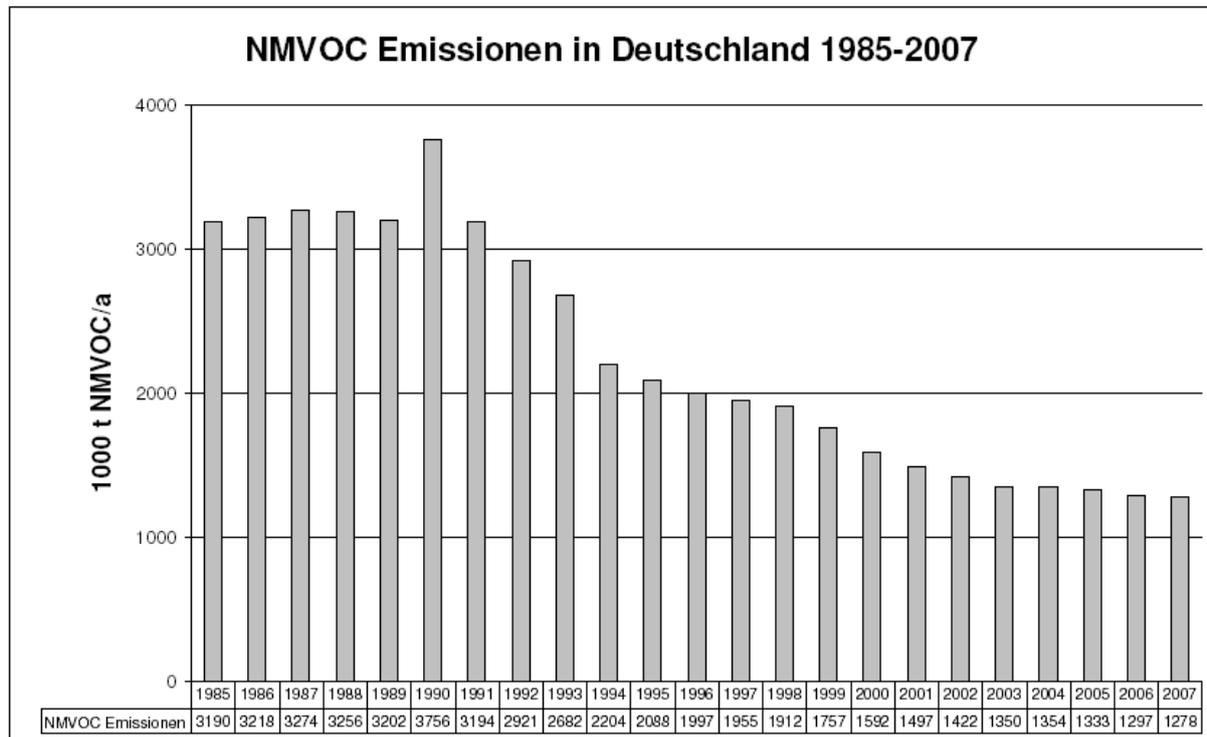


Abbildung 3.7: Entwicklung der NMVOC Emissionen in Deutschland 1985-2007
(<http://www.ceip.at/emission-data-webdab/emission-as-reported-by-parties/>, 10/2009)

Erhöhte Ozonkonzentrationen verursachen Probleme durch ihre Phytotoxizität, durch die Schädigung von Ozon auf Materialien wie Gummi, Polymere oder Anstriche und nicht zuletzt durch die negative Wirkung auf die menschliche Gesundheit (Tränenreiz, Schleimhautreizungen in Rachen, Hals und Bronchien, Kopfschmerzen, verstärkter Hustenreiz, Verschlechterung der Lungenfunktion, Schwächung des Immunsystems).

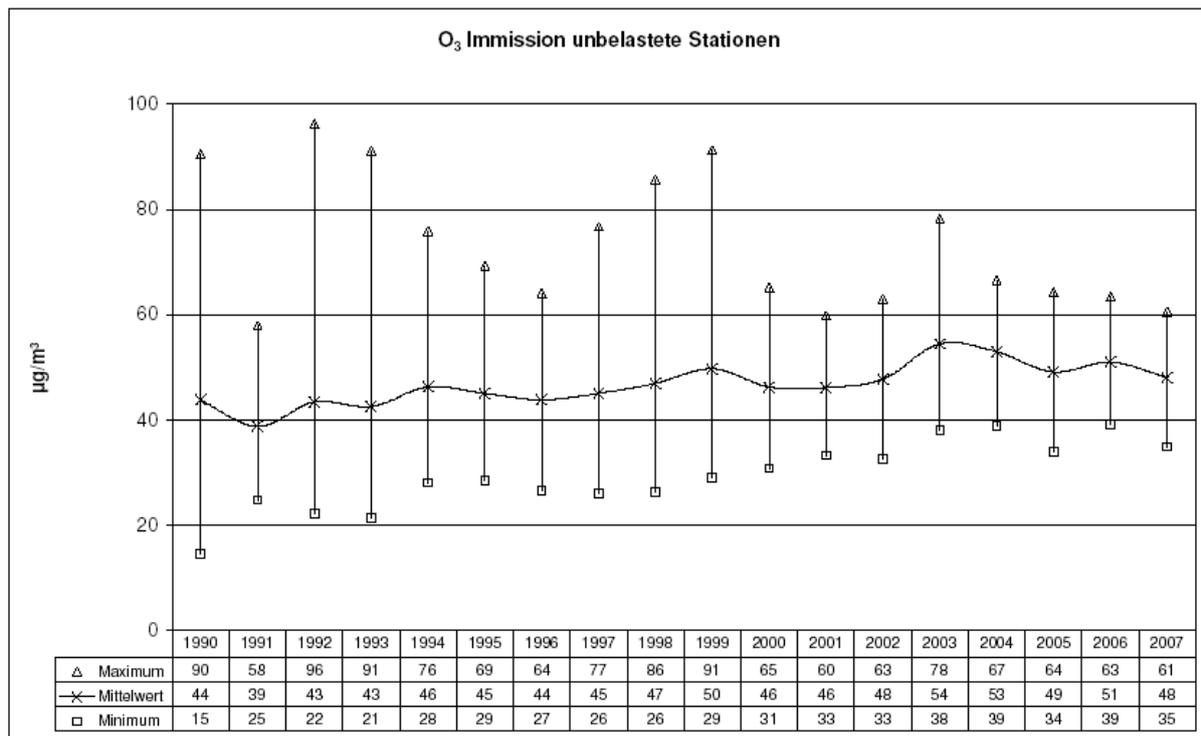
Tabelle 3.4 gibt einen Überblick über die für Vegetation und Ökosysteme als Schutzgut relevanten und aktuell gültigen Grenz- und Richtwerte der Ozonkonzentration in der Luft.

Tabelle 3.4: Grenz- und Richtwerte für die O₃ Konzentration in der Luft

Quellen	Wert (µg/m ³)	gemittelt über	Schutzgut	Verbindlichkeit	Bemerkung
33. BImSchV (2004); 3. Daughter Directive (2002/3/EC) to Air Quality Framework Directive (96/62/EEC)	18000	1 h, akkum. von Mai-Juli 8-20 Uhr	Vegetation	Zielwert, einzuhalten soweit wie möglich ab 2010	AOT40
	6000	1 h, akkum. von Mai-Juli, 8-20 Uhr	Vegetation	langfr. Ziel	AOT40
	6000	1 h, akkum. von 15.4-15.7., 8-20 Uhr	landw. Nutzpflanzen	Critical Level	AOT40
UN ECE „Gothenburg Protocol“; Mapping Manual* (2004)	10000	1 h, akkum. von April-Sept., 8-20 Uhr	Wälder/ perenn. seminatl. Vegetation		
	6000	1 h, akkum. von April-Juni, 8-20 Uhr	annuelle seminatl. Vegetation		
	6000	1 h, akkum. von April-Juni, 8-20 Uhr	annuelle seminatl. Vegetation		

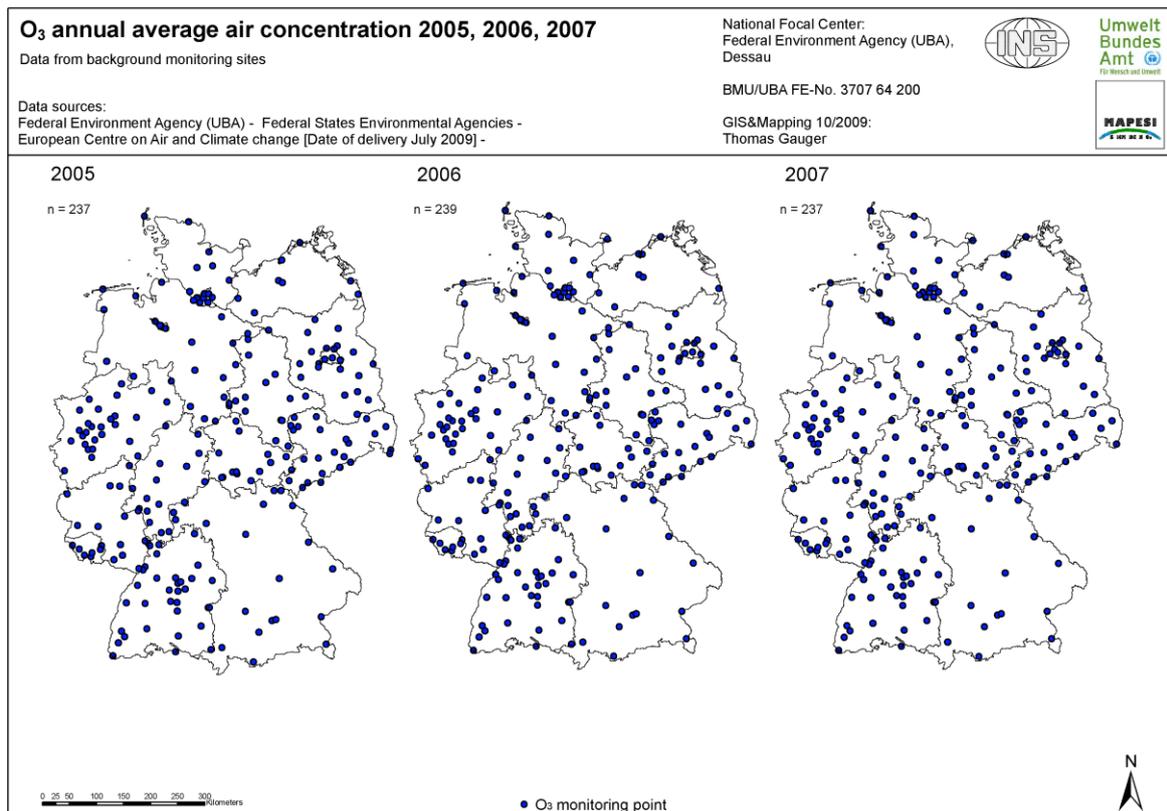
* ICP Modelling & Mapping (2004): Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping Critical Loads & Levels and air pollution effects, risks and trends

In Abbildung 3.8 sind die statistischen Kennwerte der O₃ Kartierungsergebnisse 1990-2007 dargestellt. Die Mittelwerte der Ozonimmission sind trotz der Emissionsreduzierung der Vorläufersubstanzen seit 1990 von 44 µg/m³ in 1990 auf 54 µg/m³ im Jahr 2003 gestiegen, und bis 2007 wiederum auf 48 µg/m³ zurückgefallen. Gleichzeitig sind auch die Minima deutlich von 15 µg/m³ im Jahr 1990 auf 36 µg/m³ in 2007 angestiegen. Die Maxima schwanken sehr stark. Erstaunlich ist, dass das Maximum des „Jahrhundersommer“-Jahres 2003 (78 µg/m³) nur das sechsthöchste des betrachteten Zeitraums von 18 Jahren ist.

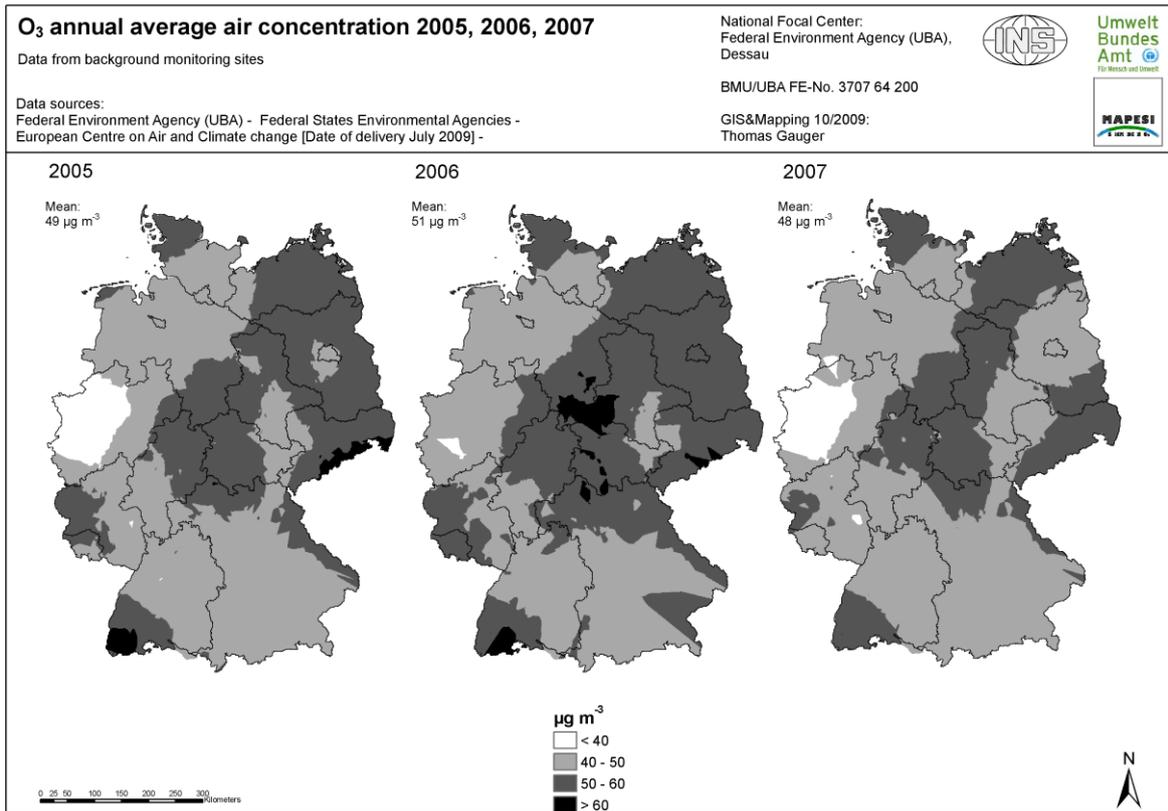
Abbildung 3.8: Statistische Kennwerte der O₃-Konzentration 1990-2007

Karte 11 zeigt die Verteilung der Messwerte, in Karte 12 sind die O_3 Konzentrationen der hier näher betrachteten drei Jahre 2005 bis 2007 abgebildet. Die räumliche Verteilung hoher und niedriger Ozonkonzentrationen ist jedes Jahr ähnlich, sie ist in etwa entgegengesetzt zu der Verteilung der NO_2 und NO Konzentrationen und der summarischen Darstellung für NO_x (vgl. Karten 5, 8 und 10). Die niedrigsten Werte finden sich vor allem im Gebiet der Nordrhein-Westfälischen Ballungsräume. Über weiten Bereichen der alten Bundesländer herrschen Konzentrationen um den bundesweiten Durchschnitt vor. Hohe Ozonkonzentrationen 2005-2007 treten in den Höhenlagen der Mittelgebirge im zentralen Bereich Deutschlands auf, im äußersten Südwesten, im nördlichen Schleswig-Holstein, im östlichen Deutschland und an der Ostseeküste.

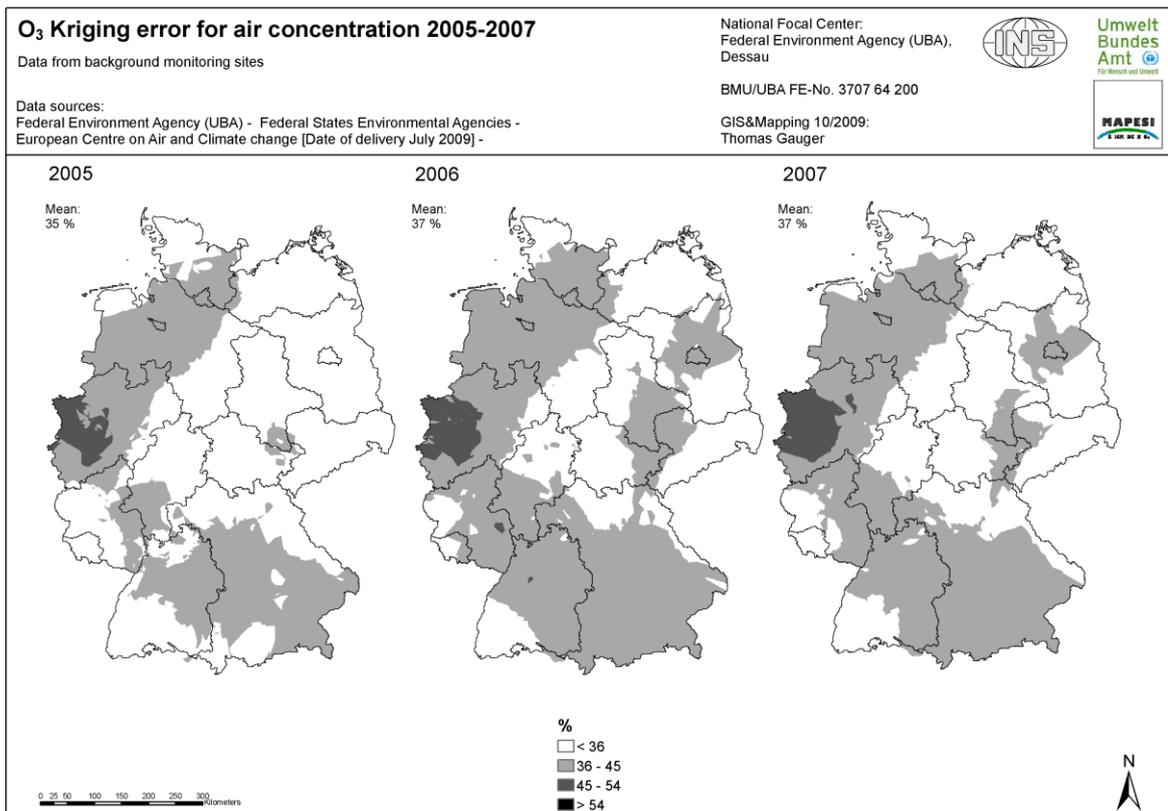
Der Schätzfehler (Karte 13) zeigt in den Jahren 2005-2007 eine ähnliche Verteilung und ähnliches Niveau. Insgesamt ist der mittlere Schätzfehler mit etwas mehr als 1/3 des Niveaus des jeweiligen Mittels der Ozonkonzentrationen der geringste bei den kartierten Gasen.



Karte 11: O_3 -Konzentration: Messpunkte 2005-2007



Karte 12: O₃-Konzentration 2005-2007



Karte 13: O₃-Konzentration: Kriging-Fehler 2005-2007

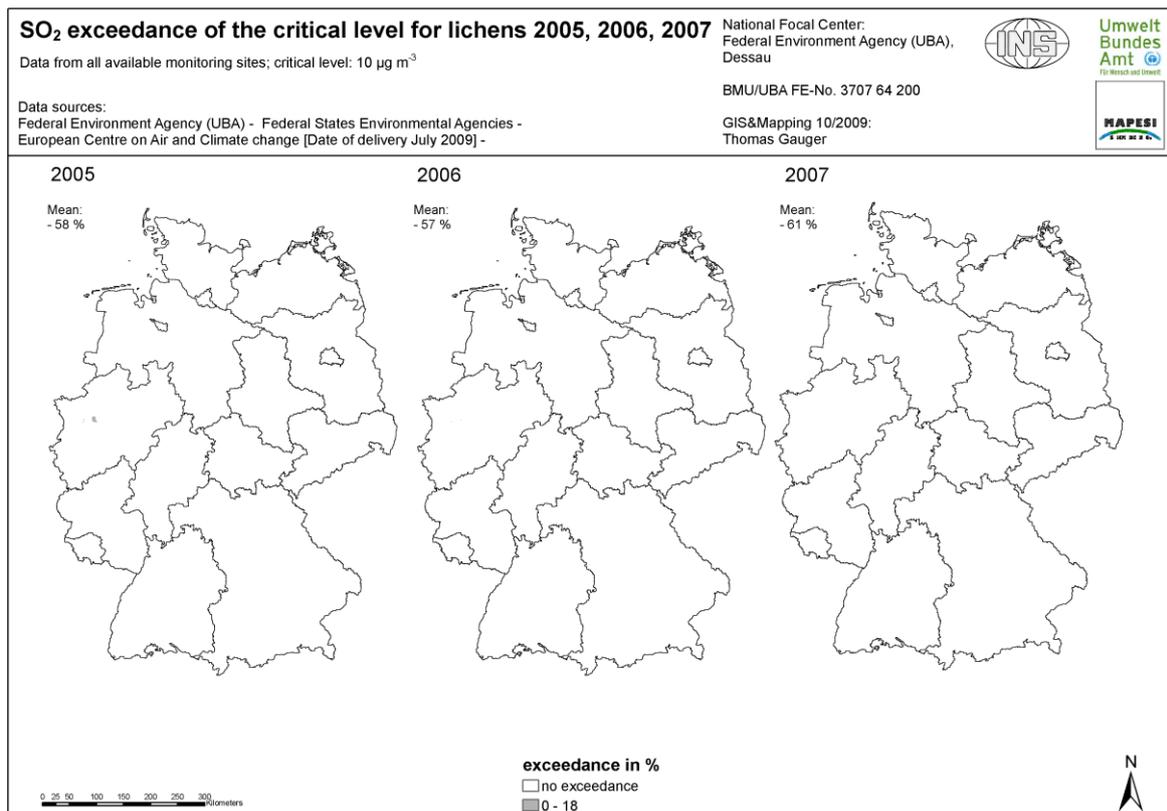
4 Kartierung der Überschreitung der Critical Levels

4.1 Überschreitung der Critical Levels für SO₂

Die Critical Levels für SO₂ sind 1992 in Egham (UN ECE 1992) festgelegt worden und bis heute gültig. Sie liegen für Flechten bei 10 µg/m³ im Jahres- und Winterhalbjahrmittel, für Wälder und natürliche Vegetation bei 20 µg/m³ im Jahres- und Winterhalbjahrmittel und für landwirtschaftliche Nutzpflanzen bei 30 µg/m³ im Jahres- und Winterhalbjahrmittel.

Die Critical Levels für Wälder und natürliche Vegetation sowie für landwirtschaftliche Nutzpflanzen wurden zwischen 2000 und 2007 in Deutschland nicht überschritten.

Der Critical Level für Flechten wurde im Zeitraum 2000 bis 2007 nur noch beschränkt auf eine sehr geringe Überschreitung von 1 bis 2 µg m⁻³ (vgl. Abbildung 3.2) und eine sehr kleine Region im Ruhrgebiet überschritten, allerdings nicht im Jahr 2001 (vgl. Gauger et al. 2008) und auch nicht im Jahr 2007. Die höchste Überschreitung im Jahr 2002 betrug 27 %, dies entspricht einer SO₂ Konzentration von 12,7 µg/m³ (Gauger et al. 2008). In den Karten der Jahre 2005 bis 2007 (s. Karte 4) ist die Überschreitung nur noch im Jahr 2005 sichtbar, in 2006 ist sie auf einzelne Rasterpunkte beschränkt und deshalb im Abdruck der Karten nicht mehr sichtbar, in 2007 besteht gar keine Überschreitung des Critical Levels für SO₂ für Flechten mehr.



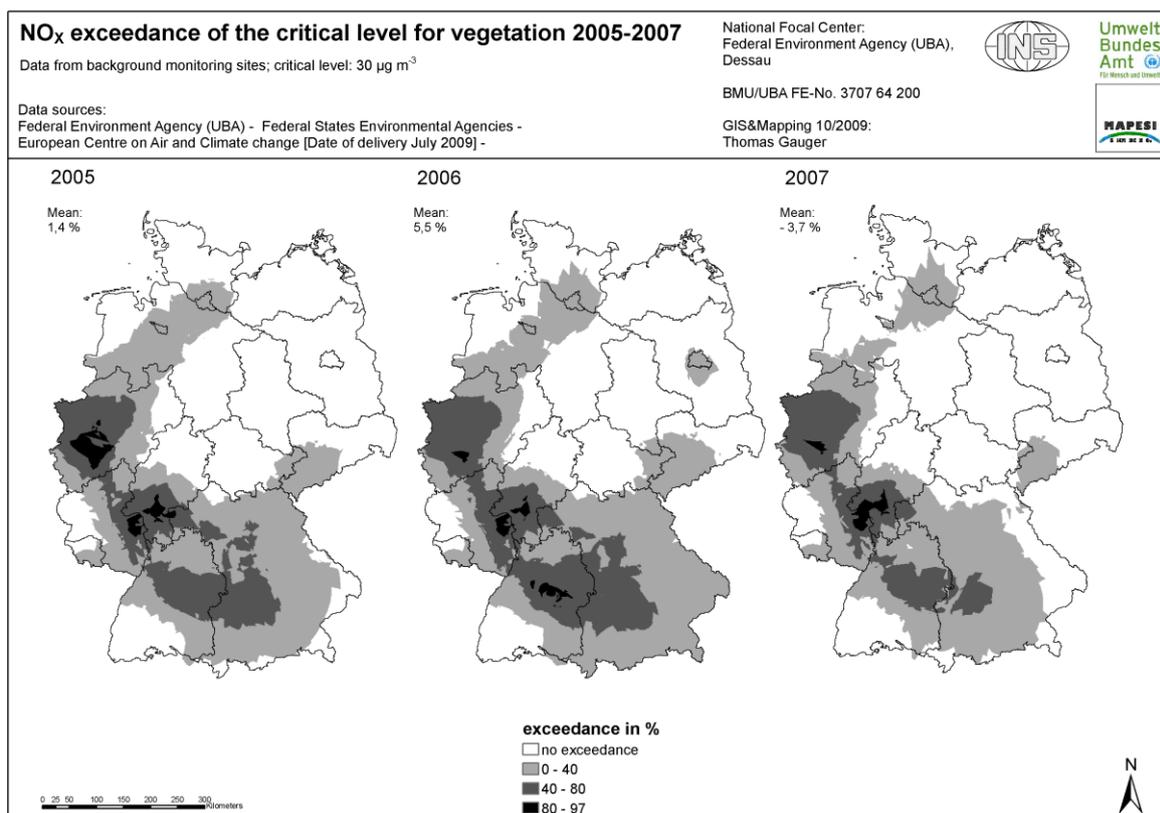
Karte 14: SO₂-Konzentrationen: Critical Level Überschreitungen 2005-2007

4.2 Überschreitung der Critical Levels für NO_x

Der Critical Level für NO_x bezogen auf den Rezeptor Vegetation liegt bei 30 µg/m³ und wurde 1992 in Egham festgelegt. Entsprechend der Immission ist hier keine klare Abnahme der Überschreitungen im betrachteten Dreijahreszeitraum 2005 bis 2007 zu erkennen.

Die räumliche Struktur der Überschreitungen (Karte 15) ist in jedem Jahr ähnlich: Hohe Überschreitungen von 80 bis zu 97 % sind im Rhein-Main-Gebiet und im südlichen Ruhrgebiet zu beobachten, in 2006 sind so hohe Überschreitungen auch im Mittleren Neckarraum in Baden-Württemberg zu beobachten. Überschreitungen zwischen 40% und 80% sind in Regionen im westlichen Bayern (Schwaben) und im mittleren Baden-Württemberg zu beobachten. Moderatere Überschreitungen bis zu 40% sind in einem Bogen von dem südlichen Schleswig-Holstein und Hamburg über Westdeutschland, das mittlere und östliche Baden-Württemberg und über fast ganz Bayern bis in östliche Teile Thüringens und den westlichen Teil Sachsens verläuft. Im Jahr 2006 ist diese NO_x Critical Level Überschreitung bis zu 40% auch in Berlin und dem unmittelbar angrenzenden Brandenburg sichtbar.

In großen Teilen Ostdeutschlands (Mecklenburg-Vorpommern, Sachsen-Anhalt, Brandenburg, weite Teile Thüringens und im Norden und Osten Sachsens) und im nördlichen Schleswig-Holstein, an der Küste Nordwest-Niedersachsens und in Südost-Niedersachsens sowie in Nordhessen wird der NO_x Critical Level für Vegetation in keinem der drei Jahre erreicht, sondern immer unterschritten.



Karte 15: NO_x-Konzentrationen: Critical Level Überschreitungen 2005-2007

4.3 *Überschreitung der Critical Levels für O₃*

Im Rahmen der UN ECE Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution (UN ECE CLRTAP) wurde der AOT40 Index (Accumulated exposure Over a Threshold of 40 ppb) entwickelt. Auf der Basis des AOT40 definiert das "Gothenburg Protocol" durch das Mapping Manual (ICP Modelling and Mapping 2004) Critical Levels für landwirtschaftliche Nutzpflanzen und (semi-) natürliche Vegetation.

Der AOT40-Wert wird berechnet als die Summe der Überschreitungen eines Stundenmittels von 40 ppb (entspricht etwa 80 µg/m³) in einer bestimmten Periode, sofern das Stundenmittel der Globalstrahlung größer als 50 W/m² ist. Das heißt es werden nur die Tageslichtstunden berücksichtigt. In der 3rd Daughter Directive to the Air Quality Framework Directive (2002/3/EC) wurde als täglicher Berechnungszeitraum die Zeit von 8:00 bis 20:00 festgelegt. Die Überschreitungen des Stundenmittels werden nur für die Hauptwachstumsphase addiert. Als Berechnungszeitraum für die Hauptwachstumsphase werden für landwirtschaftliche Nutzpflanzen 3 Monate von 15.4. bis 15.7.; für Forste und seminatürliche perennierende Vegetation 6 Monate von 1.4. bis 30.9. und für annuelle seminatürliche Vegetation 3 Monate von 1.4. bis zum 30.6. angenommen (ICP Modelling & Mapping 2004).

Die Summe aller Überschreitungen eines Stundenmittels von 40 ppb, ausgedrückt in ppb-Stunden, in diesen Perioden entspricht dem AOT40 Wert. Die Critical Levels für landwirtschaftliche Nutzpflanzen und annuelle seminatürliche Vegetation betragen 3000 ppb-h, die Critical Levels für Forste und perennierende seminatürliche Vegetation wurden, entsprechend der längeren Hauptwachstumsphase, auf 5000 ppb-h festgelegt (ICP Modelling & Mapping 2004).

Die Critical Levels für Ozon werden, wie die Abbildungen 4.1-4.3 und die Karten 17, 19 und 21 zeigen, für jede Kategorie in jedem Jahr großflächig und deutlich überschritten. Die AOT40 Mittel- und Medianwerte betragen zumeist das zwei- bis dreifache des Critical Levels, in Einzelfällen (2003) sogar das Vierfache. Ein Trend steigender oder fallender AOT40-Werte ist anhand der Mittel- oder Medianwerte nicht zu erkennen (Abbildungen 4.1-4.3), allerdings sind die Maximalwerte sprunghaft seit 1998 (Forste und perennierende seminatürliche Vegetation) bzw. 1997 (landwirtschaftliche Nutzpflanzen) zurückgegangen. Mit Ausnahme des Jahres 2003 erreichen die Maxima des AOT40-Wertes für Forste und perennierende seminatürliche Vegetation ab 1998 nur noch etwa die Hälfte der zwischen 1990 und 1997 (Ausnahme 1995) erreichten Werte. Bei den Maxima des AOT40-Wertes für landwirtschaftliche Nutzpflanzen ist der Rückgang weniger ausgeprägt. Hier werden ab 1997 etwa 60-70 % der Werte der Vorjahre erreicht, allerdings waren die Maxima der Jahre 1990 und 1991 ähnlich niedrig wie ab 1997.

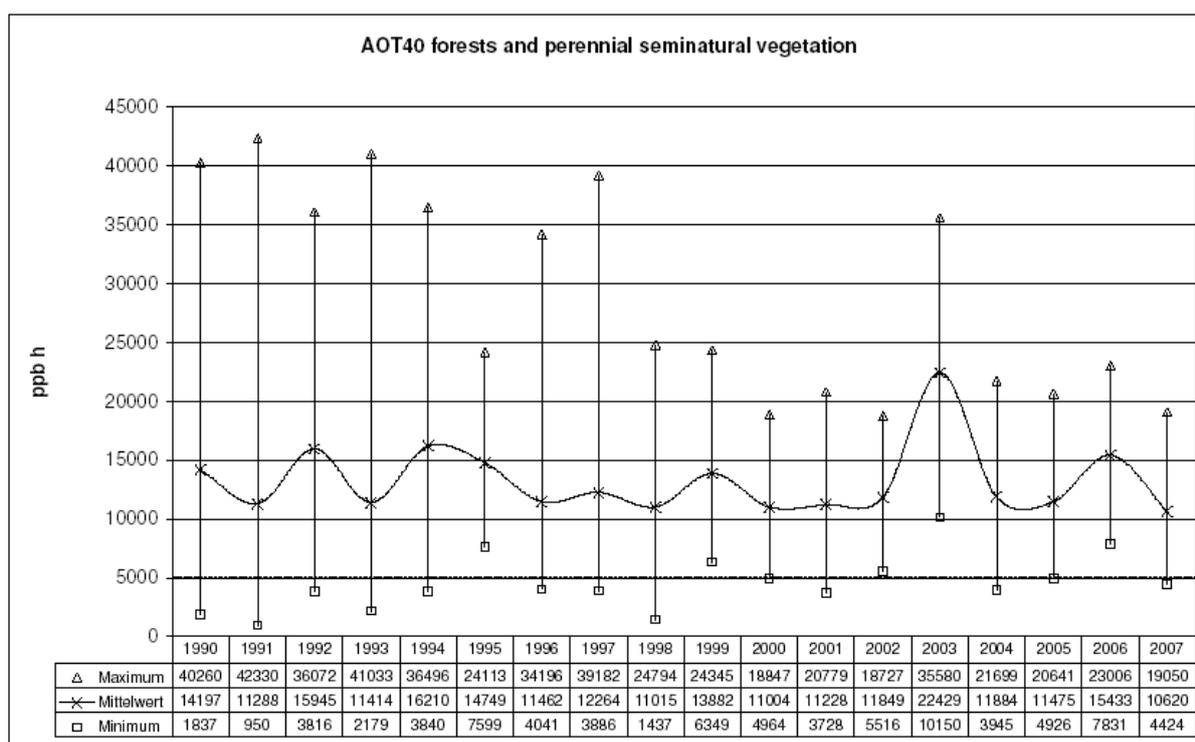


Abbildung 4.1: Statistische Kennwerte des AOT40forests 1990-2007 (Critical Level: 5000 ppb-h)

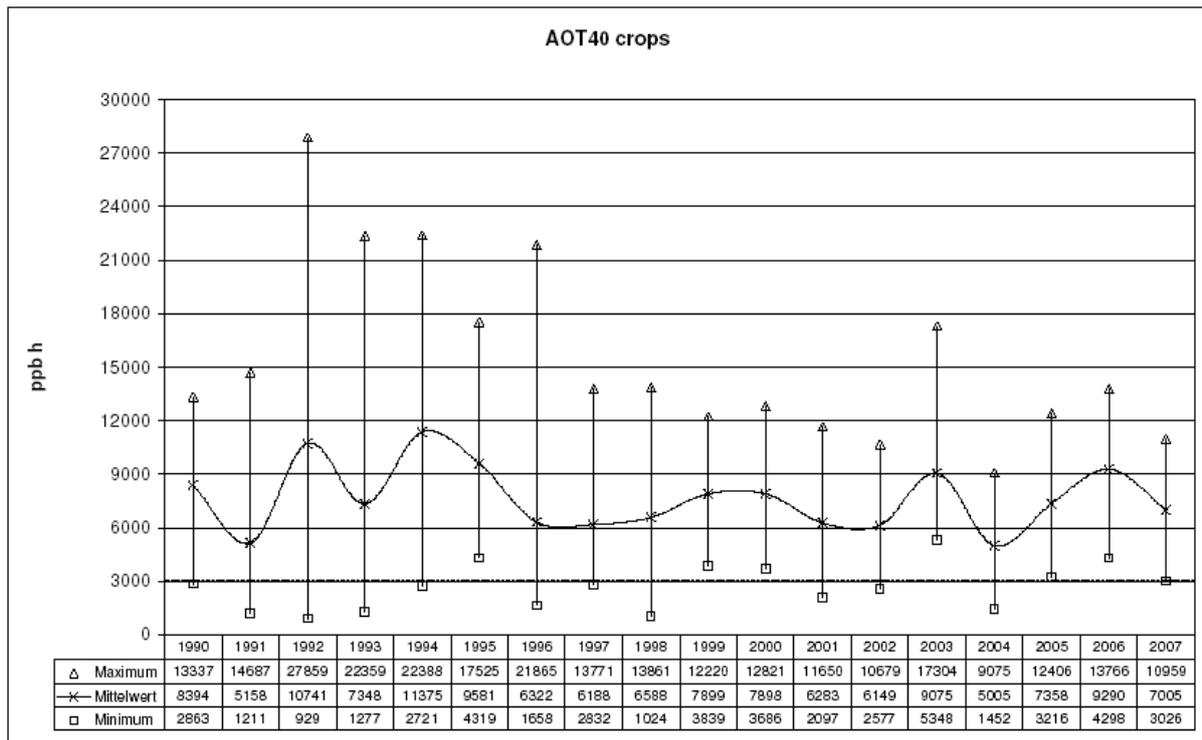


Abbildung 4.2: Statistische Kennwerte des AOT40crops 1990-2007 (Critical Level: 3000 ppb-h)

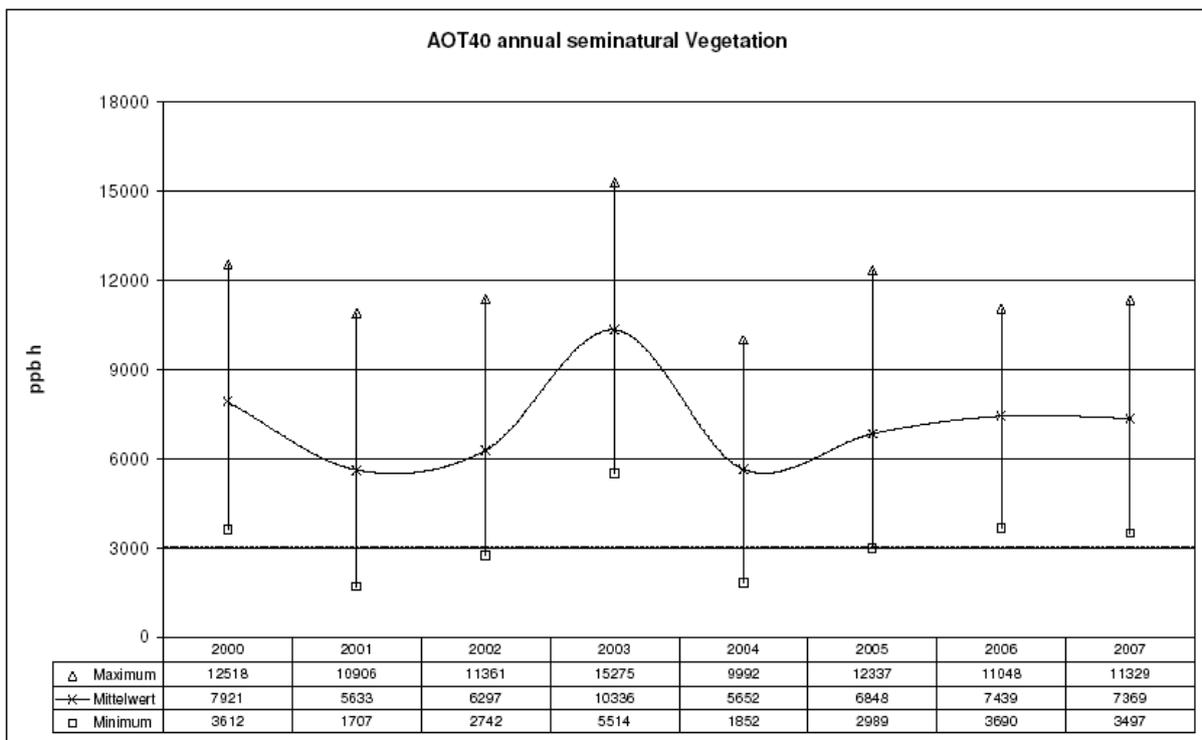


Abbildung 4.3: Statistische Kennwerte des AOT40seminatural Vegetation 2000-2007 (Critical Level: 3000 ppb-h)

Karte 17 zeigt die räumliche Verteilung der AOT40-Werte der Jahre 2005-2007 für landwirtschaftliche Nutzpflanzen, Karte 19 zeigt AOT40-Werte der Jahre 2005-2007 für annuelle seminatürliche Vegetation und in Karte 21 sind die AOT40-Werte der Jahre 2005-2007 für Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender

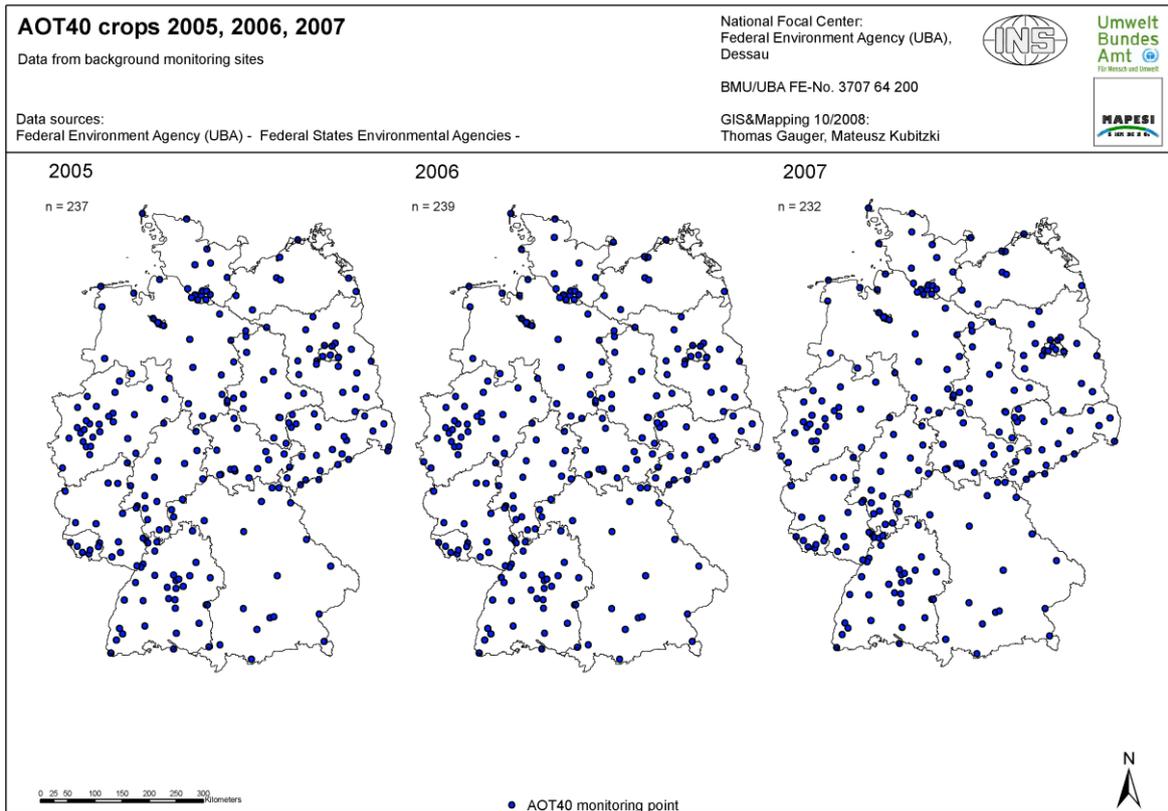
seminatürlicher Vegetation abgebildet. Die Karten zeigen in jedem Jahr, dass die jeweils niedrigsten AOT40-Werte im Norden und Westen Deutschlands auftreten.

Die höchsten AOT40 Werte treten zumeist in Brandenburg, Sachsen, Bayern, Baden-Württemberg und im Zentrum Deutschlands auf, also im Osten, der Mitte und im Süden Deutschlands. Im Jahr 2006 sind die AOT40-Werte höher als in 2005 und 2007.

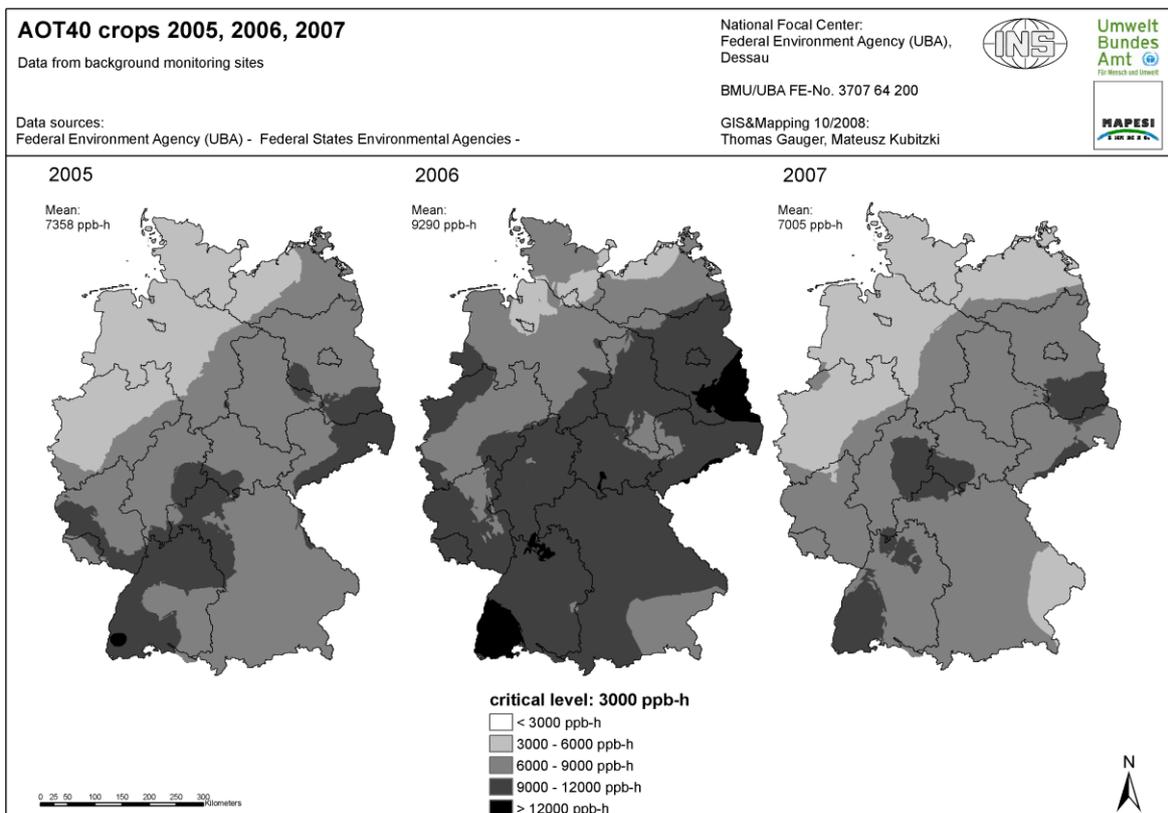
Karte 22 zeigt die landnutzungsbezogene Überschreitung der Critical Levels in % und für jedes Jahr in einer einzigen Karte. Der Bezug zur Landnutzung wurde mit Corine Land Cover 2000 hergestellt. Um keine weißen Flächen zu erzeugen, wurden Stadt- und Agrarflächen als landwirtschaftliche Nutzpflanzen kodiert und alle sonstigen Flächen als Wälder bzw. perennierende seminatürliche Vegetation.

Im Jahr 2006 kommen maximale Überschreitungen bis zu über 300% auf größeren Flächen vor. In den übrigen beiden Jahren liegen die maximalen Überschreitungen bei bis zu 300%. In keinem der drei Jahre 2005 bis 2007 treten Flächen ohne Überschreitungen auf.

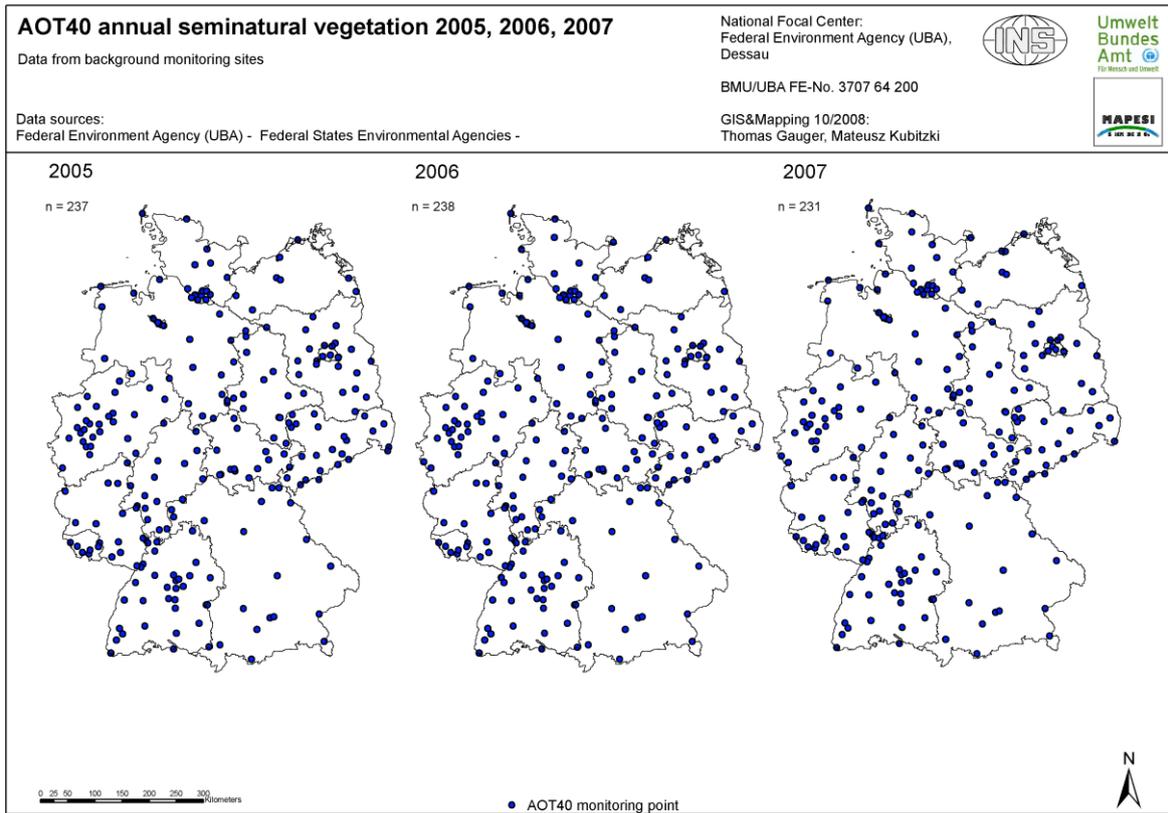
Die mittleren Überschreitungen der AOT40-Werte in 2005-2007 liegen zwischen 128% in 2007 und 209% in 2006, im Jahr 2005 betragen sie 141% (Karte 21).



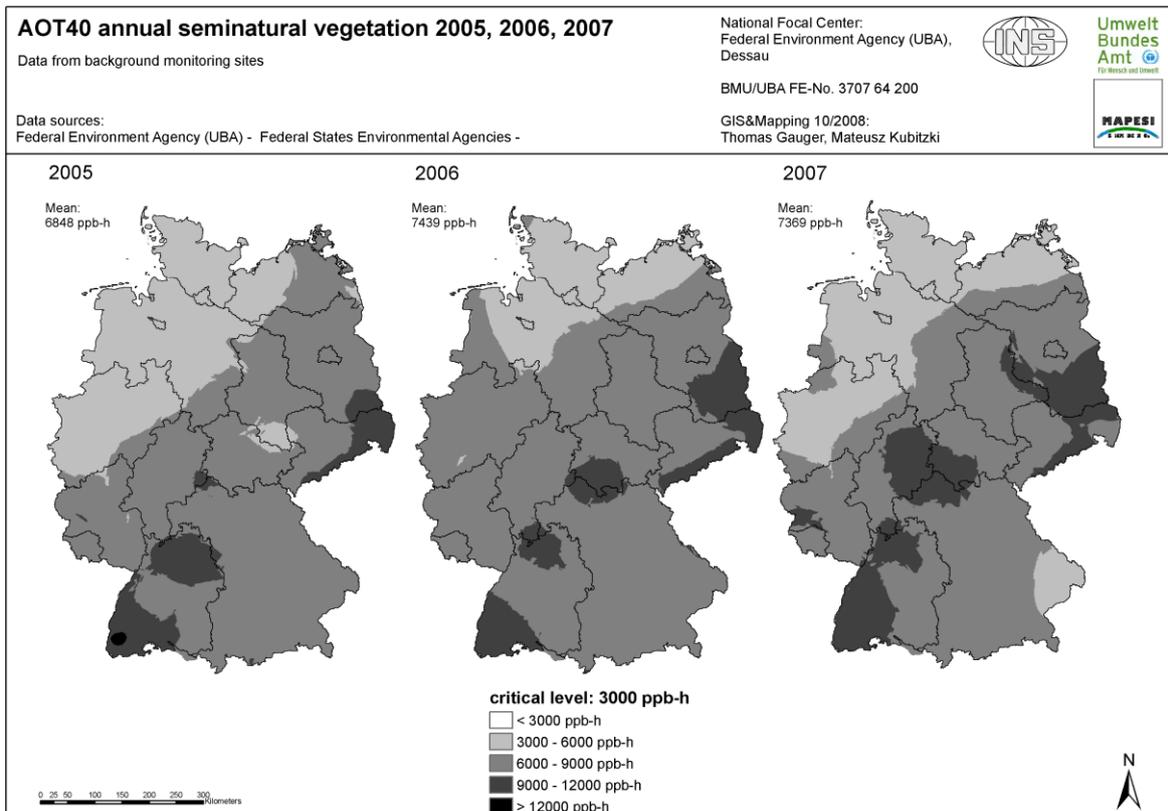
Karte 16: O₃-AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007



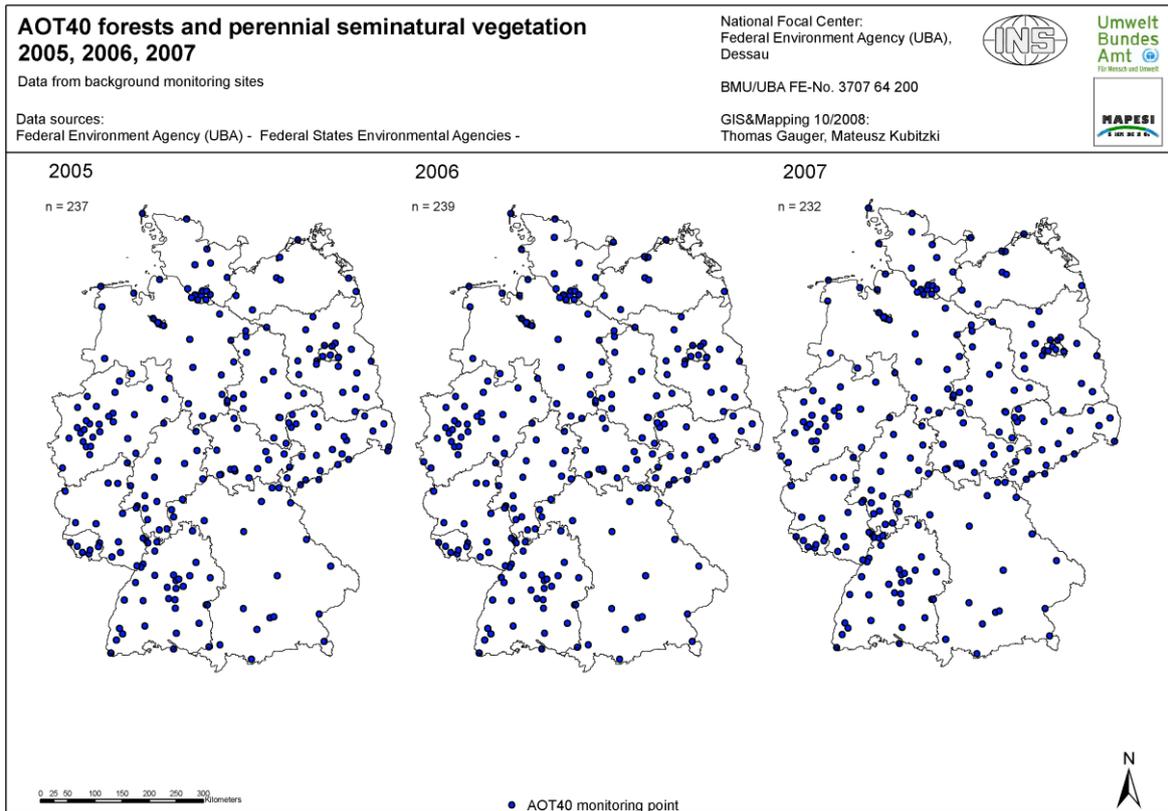
Karte 17: O₃-AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007



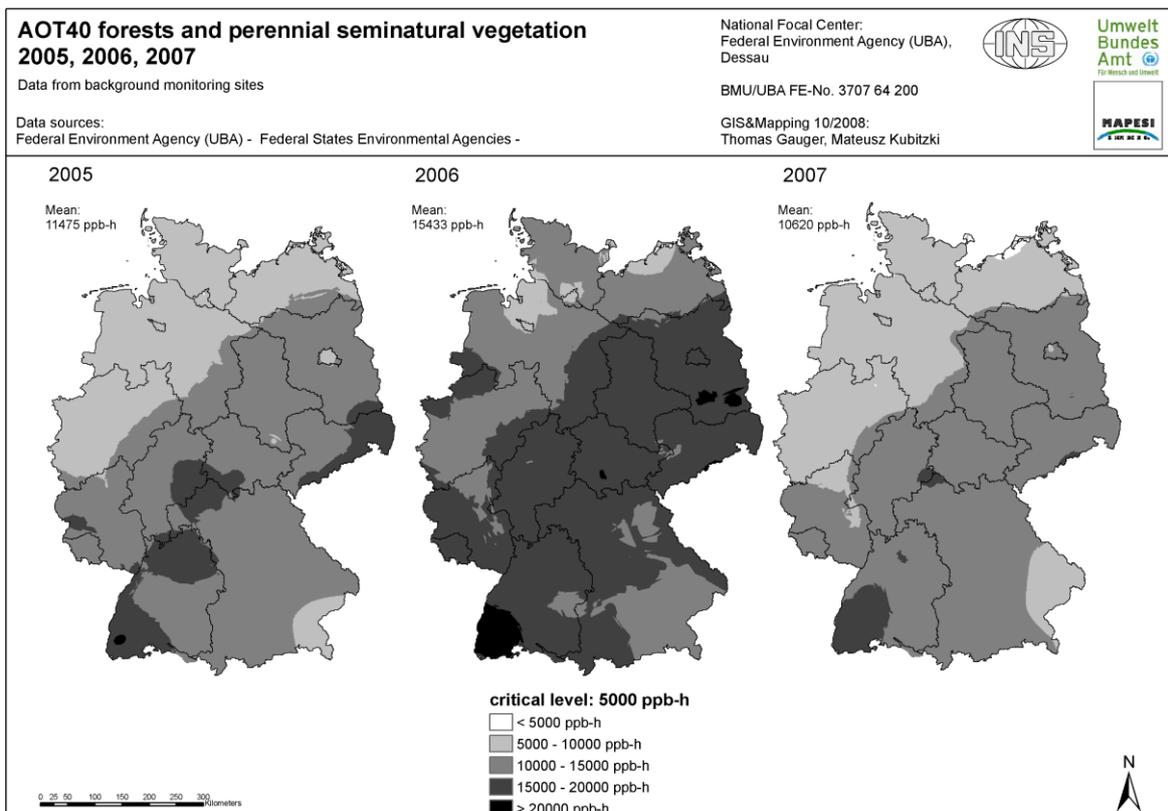
Karte 18: O₃-AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007



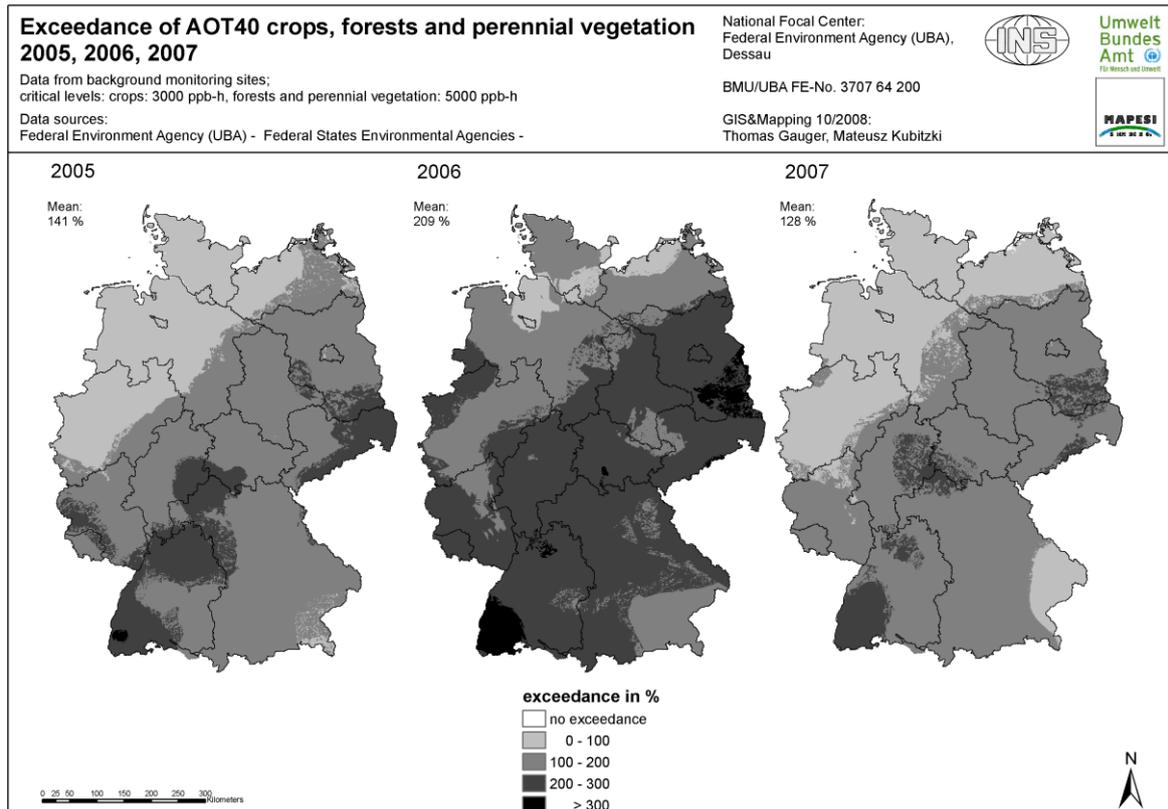
Karte 19: O₃-AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminaturlicher Vegetation 2005-2007



Karte 20: O₃-AOT40-Werte für Agrargebiete und Waldgebiete bzw. Gebiete mit perennierender seminatürlicher Vegetation 2005-2007



Karte 21: O₃-AOT40 Überschreitung des Critical Levels in Agrargebieten und Waldgebieten und Gebieten mit perennierender mehrjähriger Vegetation 2005-2007



Karte 22: O₃-AOT40 Überschreitung des Critical Levels in Agrargebieten, Waldgebieten und Gebieten mit perennierender mehrjähriger Vegetation 2005-2007

5 Zusammenfassung

Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens wurden nationale Karten angefertigt, die die Konzentration der Luftschadstoffe Schwefeldioxid (SO_2), Stickstoffdioxid (NO_2), Stickstoffmonoxid (NO), deren Summe Stickstoffoxid (NO_x), Ozon (O_3) sowie die Überschreitung der Critical Levels für Schwefeldioxid, Stickstoffoxid und Ozon (AOT40) darstellen.

Die SO_2 Konzentration wurde für die Jahre 2005-2007 berechnet und kartiert. Eine Zeitreihe mit statistischen Kennwerten der Konzentrationen liegt bis zurück in das Jahr 1985 vor. Seit 1987 ist bei den Jahresmittelwerten ein abnehmender Trend feststellbar, seit etwa 2001 liegt die mittlere Immission in etwa konstant bei $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dementsprechend kann für Deutschland in dem betrachteten Zeitraum keine Überschreitung der Critical Levels für landwirtschaftliche Nutzpflanzen ($30 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Waldökosysteme und (semi-)natürliche Vegetation ($20 \mu\text{g}/\text{m}^3$) festgestellt werden. Der Critical Level für Flechten ($10 \mu\text{g}/\text{m}^3$) wird im Dreijahreszeitraum 2005-2007 nur sehr kleinflächig im Ruhrgebiet überschritten.

Die NO_2 Konzentration wurde für die Jahre 2005-2007 berechnet und kartiert, statistische Kennwerte von früheren Kartierungen liegen bis zurück in das Jahr 1985 vor. Die mittleren Konzentrationen nehmen von ca. $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 1985 leicht wellenförmig bis etwa 1999 ab um sich seit dem bei ca. $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu stabilisieren. Die NO Konzentrationen liegen für die Jahre 2000-2007 vor und haben sich in diesem Zeitraum mit einem leichten Rückgang im Mittel von ca. $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wenig verändert. Sie erreichen aktuell (2004-2007) einen Mittelwert von etwa $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Somit liegt die Summe von NO und NO_2 , die NO_x Konzentration, aktuell in etwa um $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Durchschnitt. Dies entspricht genau dem Critical Level für Vegetation, der dementsprechend auf etwa der Hälfte der Fläche Deutschlands in jedem Jahr überschritten wird, wobei die höchsten Überschreitungen (bis über 160%) in den Ballungsgebieten entlang des Rheins auftreten.

Die Ozonkonzentration wurde für den vorliegenden Bericht für die Jahre 2005-2007 berechnet und kartiert, statistische Kennwerte liegen bis zurück in das Jahr 1990 vor. Wetterabhängig schwanken die Extremwerte sehr stark, die mittlere Konzentration scheint jedoch tendenziell anzusteigen. Sowohl der Critical Level für landwirtschaftliche Nutzpflanzen (AOT40 crops: 3000 ppb-h) als auch der für Waldökosysteme bzw. (semi-)natürliche perennierende Vegetation (AOT40 forests: 5000 ppb-h) wird in allen kartierten Jahren fast flächendeckend überschritten. Ausnahmen gibt es nur in Nordwestdeutschland in den Jahren 2001, 2002 (nur AOT40 crops) und 2004. In den Jahren 2005 bis 2007 wird der AOT40 Critical Level wiederum deutschlandweit flächendeckend überschritten, in Nordwestdeutschland bis zu etwa 100%, im übrigen Deutschland mindestens zwischen 100% und 200%. Die Überschreitungen sind im betrachteten Dreijahreszeitraum im mittleren Jahr 2006 am höchsten. In Südwestdeutschland (Regierungsbezirk Freiburg) und in Ostdeutschland in Teilen der Lausitz beträgt die Überschreitung des AOT 40 teilweise über 300%.

6 Summary

Within this research project national maps describing concentration of the air pollutants sulphur dioxide (SO₂), nitrogen dioxide (NO₂), nitric oxide (NO), the sum of nitrogen and nitric oxide (NO_x), and ozone (O₃) as well as the exceedances of Critical Levels for SO₂, NO_x and O₃ (AOT40) have been modelled and mapped.

Air concentration of SO₂ has been calculated and mapped for the years 2005 to 2007. Time series with standard statistics (minimum, maximum, mean) is presented from 1985 onward. Since 1987 a downward trend of the annual average concentration of SO₂ can be observed. Since 2001 this trend is stopped and the annual average remains constantly at about 4 µg/m³. According to this there is neither an exceedance of the Critical Level for crops (annual average: 30 µg/m³) nor an exceedance of the Critical Level for forest ecosystems (annual average: 20 µg/m³) in the examined three year period. The critical Level for lichens (annual average: 10 µg/m³) is only exceeded in very small areas in the Ruhr Basin.

For this report air concentration of NO₂ has been calculated and mapped for the years 2005-2007. Map statistics of previous modelling and mapping projects are available back to the year 1985. There is a slight wavelike downward trend of the average annual concentration of NO₂, which declines from about 30µg/m³ to approximately 20µg/m³. Since 1999 the average concentrations remain more or less constant. Air concentrations of NO are available for the years 2000-2007 and slightly changed during this period from average 9µg/m³ to 7µg/m³. In line with this the annual average air concentration summarised as NO_x is about 30µg/m³ in the later years 2004-2007. This matches exactly the Critical Level for vegetation which consequently is exceeded on about half of the area of Germany. Highest exceedances (over 160%) occurred in the urban areas along the Rhine.

Air concentration of O₃ has been calculated and mapped for the years 2005-2007. Map statistics are available back to the year 1990. Due to the weather conditions the extreme values are fluctuating, but the annual average slightly tends to rise over time. The Critical Level for crops (AOT40 crops: 3000 ppb-h) as well as the Critical Level for forest ecosystems and (semi-) natural perennial Vegetation (AOT40 forests: 5000 ppb-h), respectively, are exceeded in all mapped years over the whole country area. Exceptions only do occur in north-western parts of Germany in the previously mapped years 2001, 2002 (only AOT40 crops) and 2004. Within the 3 year period from 2005 to 2007 an overall exceedances of the AOT40 can be observed in Germany. The exceedances are ranging from up to 100% in northwest Germany to 200% to 300% over the other parts of Germany. AOT40 exceedances in the three year period are highest in 2006. Peak exceedances of the AOT40 up to more than 300% can be observed in 2006 over southwest Germany (Freiburg district) and in some part of eastern Germany (Lausitz).

7 Literatur

13. BIMSCHV (2004): Dreizehnte Verordnung zur Durchführung des Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Großfeuerungs- und Gasturbinenanlagen) vom 20. Juli 2004 (BGBl. I S. 1717 (2847))
- BECK, J.P., KRZYZANOWSKI, M. & KOFFI, B. (1998): Tropospheric Ozone in the EU – „The Consolidated Report“: Topic Report 8/98 ETC/AQ. 61 p.
- BIMSCHG (2002): Gesetz zum Schutz vor schädlichen Umwelteinwirkungen durch Luftverunreinigungen, Geräusche, Erschütterungen und ähnliche Vorgänge (Bundes-Immissionsschutzgesetz) vom 26.09.2002 (BGBl. I, S. 3830), zuletzt geändert durch Art. 3 G vom 18.12.2006.
- DEUTSCHER WETTERDIENST (2000): Zum Trend der Hintergrundkonzentration von Ozon. *Ozonbulletin des Deutschen Wetterdienstes. Issue No. 75. Date of publication: 6 June 2000.*
- ELSTNER, E. F. (1996): Ozon in der Troposphäre. Bildung, Eigenschaften, Wirkungen. *Akademie für Technikfolgenabschätzung Baden-Württemberg. 162 p.*
- FRICKE, W. & UHSE, K. (1994): Anteile von Witterung und Emissionsminderung am SO₂ –Rückgang in Deutschland. In: *Staub – Reinhaltung der Luft. Vol. 54. PP 289-296.*
- FUHRER, J., SKÄRBY, L., ASHMORE, M.R. (1997): Critical levels for ozone effects on vegetation in Europe. *Environmental Pollution Vol. 97. No. 1-2. PP 91-106.*
- GAUGER, TH. & ANSHELM, F. (1999): Kartierung kritischer Luftschadstoffbelastungen unter ARC/INFO. In: *Schriftenreihe der Institute des Fachbereichs Vermessungswesen 1999/1. PP 21-26.*
[\[http://www.ifp.uni-stuttgart.de/publications/schriftenreihe/s21-26.pdf\]](http://www.ifp.uni-stuttgart.de/publications/schriftenreihe/s21-26.pdf)
- GAUGER, TH., KÖBLE, R. & ANSHELM, F. (2000): Kritische Luftschadstoff-Konzentrationen und Eintragsraten sowie ihre Überschreitung für Wald- und Agrarökosysteme sowie naturnahe waldfreie Ökosysteme. *Abschlussbericht FKZ 297 85 079. Im Auftrag des Umweltbundesamtes (UBA). Berlin.*
[\[http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/INS_UBA29785079_2.pdf\]](http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/INS_UBA29785079_2.pdf)
- GAUGER, TH., ANSHELM, F., SCHUSTER, H., ERISMAN, J.W., VERMEULEN, A.T., DRAAIJERS, G.P.J., BLEEKER, A., NAGEL, H.-D. (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. *Final Report on behalf of Federal Environmental Agency (UBA), Berlin. BMU/UBA FE-No 299 42 210.* [\[http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/EB_29942210_T2.pdf\]](http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/EB_29942210_T2.pdf)
- GAUGER TH, HAENEL H-D, RÖSEMANN C, NAGEL HD, BECKER R, KRAFT P, SCHLUTOW A, SCHÜTZE G, WEIGELT-KIRCHNER R, ANSHELM F (2008): Umsetzung UNECE-Luftreinhaltekonvention (Wirkungen). Teil 2: Wirkungen und Risikoabschätzungen: Critical Loads, Biodiversität, Dynamische Modellierung, Critical Levels Überschreitungen, Materialkorrosion. *Abschlussbericht FKZ 204 63 252. UBA-Texte 38/08 (2). ISSN 1862-4804.* [\[http://www.umweltdaten.de/publikationen/fpdf-l/3647.pdf\]](http://www.umweltdaten.de/publikationen/fpdf-l/3647.pdf)
- GREGOR, H.-D. (1999): Konzepte für die Luftreinhaltepolitik. In: *Nagel, H.-D. & Gregor, H.-D. (ed.) (1999): Ökologische Belastungsgrenzen – Critical Loads & Levels. Ein internationales Konzept für die Luftreinhaltepolitik. Springer publishing.*
- ICP MODELLING & MAPPING (2004): Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping Critical Loads & Levels and air pollution effects, risks and trends. *UBA Texte 52/2004. Dessau.*
[\[http://icpmapping.org/cms/zeigeBereich/5/manual_und_downloads.html\]](http://icpmapping.org/cms/zeigeBereich/5/manual_und_downloads.html),
[\[http://www.pbl.nl/en/themasites/icpmm/manual-and-downloads/manual-english/index.html\]](http://www.pbl.nl/en/themasites/icpmm/manual-and-downloads/manual-english/index.html)
- KÖBLE, R., NAGEL, H.-D., SMIA TEK, G., WERNER, B. (1997): Kartierung der Critical Loads/Levels in der Bundesrepublik Deutschland. *Abschlussbericht FKZ 108 02 080 "Erfassung immissionsempfindlicher Biotope in der Bundesrepublik Deutschland und in anderen ECE-Ländern". Im Auftrag des Umweltbundesamtes (UBA). Berlin. 183 p.*
- KÖBLE, R., SMIA TEK, G., & GAUGER, TH. (1993): Kartierung kritischer Belastungskonzentrationen und –raten für empfindliche Ökosysteme in der Bundesrepublik Deutschland und anderen ECE-Ländern. Part 2: Critical Levels. *Abschlussbericht FKZ 106 01 061. Im Auftrag des Umweltbundesamtes (UBA). Berlin. 75 p.*
- MÖLLER, D. (2000a): Troposphärisches Ozon: Entstehung, Konzentrationsvariabilität und Wirkung unter dem Gesichtspunkt der Ozonminderung. 13 p. Available at:
<http://www.luft.tu-cottbus.de/scripts/manus/Ozonbildung%20-%20Variabilitaet%20-%20Wirkung.pdf>

- NAGEL, H.-D. & GREGOR, H.-D. (1999): Ökologische Belastungsgrenzen – Critical Loads & Levels: Ein internationales Konzept für die Luftreinhaltepolitik. *Springer publishing*. 320 p.
- POSCH, M., DE SMET, P.A.M., HETTELINGH, J.-P., DOWNING, R.J. (1999): Calculations and Mapping of Critical Thresholds in Europe – Status Report 1999. *Coordination Center of Effects. National Institute of Public Health and the Environment. Bilthoven, The Netherlands. RIVM Report No. 259101009*.
- TA LUFT (2002): Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft - TA Luft) vom 24. Juli 2002. (*GMBL*. 2002, *Heft 25-29*, S. 511-605).
- THE COUNCIL OF THE EUROPEAN UNION (1999a): Council Directive 1999/30/EC of 22 April 1999 relating to limit values for sulphur dioxide, nitrogen dioxide and oxides of nitrogen, particulate matter and lead in ambient air. *Official Journal L 163*, 29/06/1999 P. 0041 – 0060.
- THE COUNCIL OF THE EUROPEAN UNION (1999b): Proposal for a Directive of the European Parliament and of the Council relating to ozone in ambient air (2000/C 56 E/11). *COM(1999) 125 final - 1999/0068(COD)*. Submitted by the Commission on 14 July 1999.
- THE COUNCIL OF THE EUROPEAN UNION (2002): Council Directive 2002/3/EC of the European Parliament and of the Council of 12 February 2002 relating to ozone in ambient air. *Official Journal L 67*, 09/03/2002 P. 0014 – 0030.
- UN ECE (1992): Critical Levels of Air Pollutants for Europe. *Background Papers Prepared for the UN ECE. Workshop on Critical Levels in Egham (U.K.), 23-26 Mar. 1992. Air Quality Division, Department of the Environment. London (U.K.)*. 209 p.
- UN ECE (1993a): Critical Levels for Ozone. *A UN ECE report from a workshop held at Bern (Switzerland), 01-04 Nov. 1993. Swiss Federal Office of Environment, Forests and Landscape and Federal Research Station for Agricultural Chemistry and Environmental Hygiene (FAC). Liebefeld/Bern (Switzerland)*.
- UN ECE (1993b): Manual on Methodologies and Criteria for Mapping Critical Levels/Loads and Geographical Areas where they are Exceeded. *Umweltbundesamt Texte 25/93. Berlin*. 109 p.
- UN ECE (1994): Manual on methods and criteria for harmonized sampling, assessment, monitoring and analysis of the effect of air pollutants on forests. *International Co-operative Programme on Assessment and Monitoring of Air Pollution Effects on Forests. Editors: Programme Coordinating Centre West. Federal Research Centre for Forestry and Forest Products, Hamburg (BFH). Programme Coordinating Center East. Forestry and Game Management Research Institute, Praha (VULHM)*. 177 p.
- UN ECE (1995): EMEP Workshop on the Control of Photochemical Oxidants over Europe (Background Papers). 24-27 Oct. 1995 in St. Gallen (Switzerland). *Swiss Federal Office of Environment, Forests and Landscape. Bern (Switzerland)*.
- UN ECE: 1979 Convention on long-range transboundary air pollution. [<http://www.unece.org/env/lrtap/>]
- UN ECE (1996b): Critical Loads for Ozone in Europe: Testing and Finalising the Concepts. *Report from a UN ECE Workshop held in Kuopio (Finland), 15-17 Apr. 1996*.
- UN ECE (1996c): Manual on methodologies for Mapping Critical Loads/Levels and geographical areas where they are exceeded. *Umweltbundesamt Texte 71/96. Berlin*.
- UN ECE (1996d): Exceedances of Critical Loads and Levels. Spatial and temporal interpretation of elements in landscape sensitive to atmospheric pollutants. *Report from a Workshop held in Vienna, 22-24 Nov. 1995. Federal Ministry for Environment, Youth and Family, Conference Papers vol. 15. Vienna (Austria)*.
- UN ECE (1999): Critical Levels for Ozone – Level II. *Workshop under the Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution of the United Nations Economic Commission for Europe (UN/ECE), held in Gerzensee, Switzerland, 11-15 Apr. 1999*. 333 p.
- UN ECE (1999): Protocol to Abate Acidification Eutrophication and Ground-level Ozone (Gothenburg Protocol). 65.p. [<http://www.unece.org/env/lrtap/full%20text/1999%20Multi.E.Amended.2005.pdf>]

MAPESI-Bericht Anhang XIII



Modelling heavy metal concentrations and dry deposition

1.1 Introduction

In this study we have dedicated a limited effort to perform simulations for lead and cadmium with LOTOSEUROS.

Below we present the model set-up for heavy metals as well as the model results for 2005. The modelled distributions have been compared for the first time to an extensive German data set of PM composition data.

1.2 Anthropogenic Emissions

Large sources for heavy metals are the non-Ferro industry and combustion processes. Previous studies have used emissions from TNO or EMEP at a resolution of at most 0.5x0.25 degrees. For the purpose of the MAPESI project an inventory was made at a resolution of 1/8 by 1/16 degrees for Europe based on earlier TNO work to support the effectiveness review of the HM protocol. The base year of the inventory is 2005. The spatial allocation of the emissions is in line with the emission maps as produced by the PAREST project. For details on the emission inventory we refer to Anhang 3. The total German emission from Cadmium and Lead are 20.6 and 620.2 Tonnes, respectively. Compared to earlier studies (e.g. UBA/BMU Forschungsprojekt 204 63 252; Gauger et al., 2008) the spatial distribution of the emissions within Germany has been improved significantly, whereas the emission totals used are within 10% for the country as a whole.

Table 1. Overview of German emission totals for Cd and Pb in 2005 (Kg).

SNAP	Category description	Cd	Pb
1	Power_generation	1687	14795
2	"Residential,_commercial_and_other_combustion"	1968	9789
3	Industrial_combustion	8625.	331976
4	Industrial_processes	5299	212604
5	Extraction_distribution_of_fossil_fuels	3.	26
6	Solvent_use		
7	Road_transport		
8	Other_mobile_sources	9	7353
9	Waste_treatment_and_disposal	2106	16845
10	Agriculture		
71	Road_transport_gasoline		20
72	Road_transport_diesel	588	18
73	Road_transport_lpg		
74	Road_transport_evaporation		
75	Road_transport_brakewear	408	26852
Total		20691	620264

1.3 Model set-up

Cadmium and lead are emitted as particles and are assumed to be non-reactive and preserved in the particulate phase. Hence, a large part of the modelling is similar as for primary particulate matter. Only a small number of modules have been adjusted for heavy metals. Below we describe the most important features to the model that are specific for cadmium and lead. As the atmospheric lifetime of particles and thus metals depends on its size, we distinguish between fine and coarse mode heavy metals in the model. Following PM, the fine mode includes all particles smaller than 2.5µm and the coarse mode all particles larger than 2.5 µm up to 10 µm. The anthropogenic emissions are also split in these size fractions. Besides anthropogenic sources, heavy metals are also emitted from several natural sources (e.g. volcanoes, forest fires and wind blown dust). Furthermore anthropogenic pollutants can be re-emitted after being deposited at the Earth's surface. The re-suspension emissions are included in the model as natural emissions. The natural emissions are chosen in accordance with the natural emissions in the EMEP/MSCE-HM model [Ilyin and Travnikov, 2005]. In this model the natural lead and cadmium emission fluxes are uniformly distributed over the sea and land surfaces and are parameterized as to fit the measured background concentrations. In the LOTOS-EUROS model we use the exact same values, i.e. 160 g lead/km²/year and 8

g cadmium/km²/year from sea surfaces and 220 g lead/km²/year and 12 g cadmium/km²/year from soils. In the presence of snow cover the emissions are set to zero. It is assumed that 90% of all naturally emitted lead and cadmium is in the coarse mode and 10% in the fine mode. For both lead and cadmium we use prescribed boundary conditions at the north, south, west, east and top of our model domain. The values are chosen in agreement with the prescribed boundary conditions used in the regional EMEP/MSCE-HM model [Ilyin and Travnikov, 2005], which in turn are based on measurement data. Measured background concentrations of lead and cadmium in the ambient air in Europe lie mostly within the range 0.3-3 and 0.02 and 0.1 ng/m³. Lowest values are found in Northern Europe and over the Atlantic. High values are found over industrial regions. Table 4.2 presents the prescribed lead and cadmium boundary conditions used within LOTOS-EUROS, from which 90% is in the coarse mode and 10% in the fine mode. Due to their relatively short residence time, the boundary conditions for lead and cadmium will not have a large influence on the concentrations in the centre of our domain, where Germany is located. However, the boundary conditions can have influence close to the boundaries.

Table 2 Prescribed boundary conditions

	Lead (ng/m ³)	Cadmium (ng/m ³)
North	0.6	0.02
South	1.5	0.04
West	1	0.03
East	2	0.05
Top	0.1	0.003

The initial conditions are derived by interpolation of the boundary conditions. The (wet and dry) deposition of fine and coarse heavy metals is treated in the same way as deposition of respectively PM_{2.5} and PM₁₀.

For MAPESI we have performed a two-step approach to perform the HM simulations over Germany for 2004-2007. First, we have performed simulations on a European domain bound at 35° and 70° North and 10° West and 40° East. The grid resolution in this domain is 0.50° longitude x 0.25° latitude, which is approximately 25x25 km over Germany. Second, we used the one-way zoom option for a high resolution simulation over Germany and its direct surroundings with an increase in resolution of a factor 4. In this way we obtain a high resolution simulation over Germany with consistent boundary conditions from the European domain to take the long range transport of pollutants into account.

1.4 Experimental data for model Evaluation

In previous studies the evaluation of the modelled concentration distributions was limited as it was only possible to compare the model results against EMEP observations. Within the EMEP network a few stations per country provide data on the heavy metal concentrations in air. As a consequence, previously modelled distributions for Germany as in the UBA/BMU Forschungsprojekt 204 63 252 (Gauger et al., 2008) have been compared to a few measurement sites. For the MAPESI project UBA has made available a data set with information for 133 stations for 2007 and 2008 (Graff and Klose, 2009; Personal communication). The information provided is the annual mean cadmium and lead content of PM₁₀ at rural, urban background, industrial as well as traffic locations as obtained by elemental analysis of filter samples. Figure 1 shows the data points for Lead in PM₁₀ for 2007. We use the 2007 data to compare the modeled distributions of 2005 to. It is assumed that the differences in modelled annual averaged results between 2005 and 2007 will be minor. For the first time such a comprehensive evaluation is made for Germany.

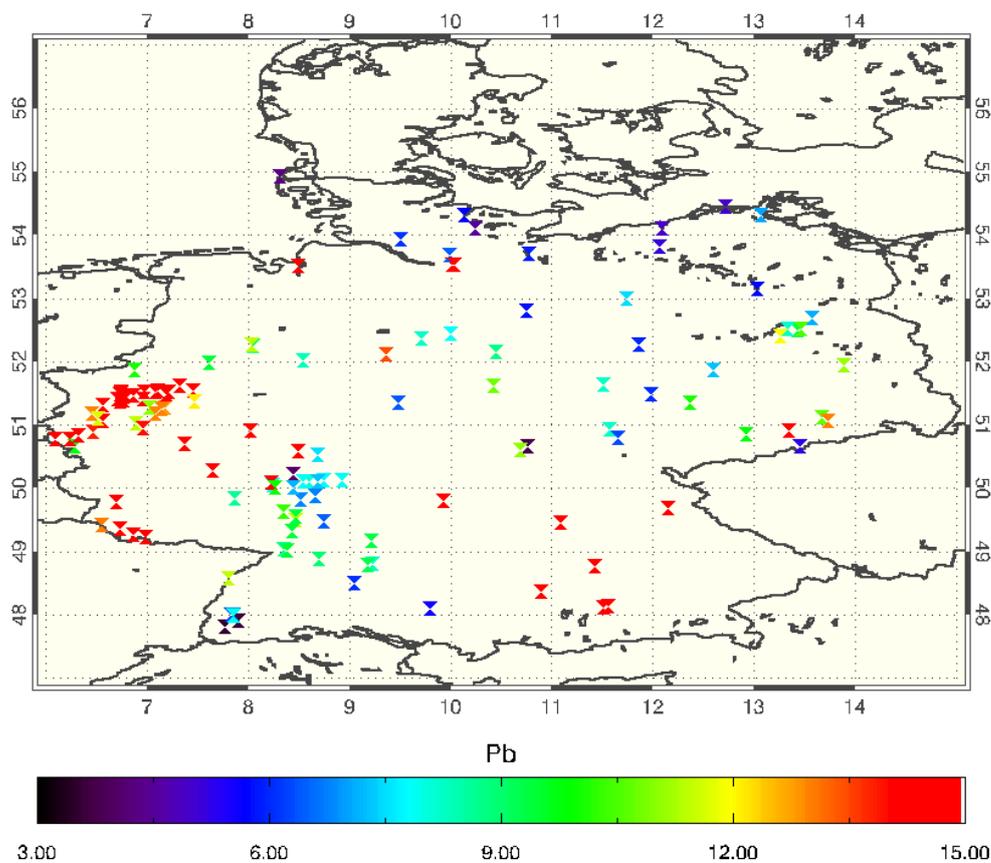


Figure 1. Overview of measurement locations for which the lead content of PM10 is available for 2007. Concentrations are given in ng/m^3 . Stations include rural, urban background, industrial as well as traffic stations

1.5 Concentration fields

In Figure 2 we show the modeled annual mean concentrations for Cadmium and Lead over Germany and its direct surrounding. Modelled annual mean concentrations of Lead range between $2 \text{ ng}/\text{m}^3$ in rural areas and well above $20 \text{ ng}/\text{m}^3$ in the Ruhr-area and other hotspots. Highest concentrations are found in the industrial areas as in the Ruhr area. Secondary maxima are found over other area with significant industrial activities such as Hamburg, Hannover, Stuttgart and Frankfurt. In these areas the concentrations are between 5 and $15 \text{ ng}/\text{m}^3$. Modelled Cadmium concentration distribution shows a large similarity with that of Lead, which is not surprising as the source sectors and proxy maps in the emission distribution are very similar. The emissions and therefore the concentrations are considerably lower than for Lead and range between $0.1 \text{ ng}/\text{m}^3$ in the background and several ng/m^3 in industrialized areas. The distributions of the concentration, dry deposition velocities and dry deposition fluxes were given to INS to produce total deposition maps for Cadmium and Lead for the years 2005, 2006 and 2007.

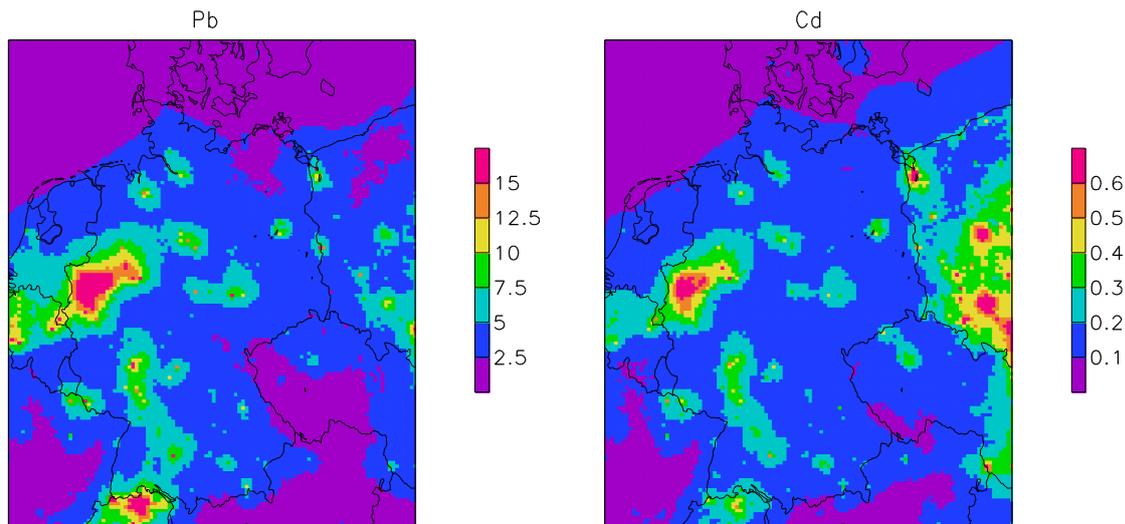


Figure 2. Modelled annual mean concentration distributions (ng/m³) of Lead (left, Pb) and Cadmium (right, Cd) in PM10 for 2005

1.6 Comparison with observations

We have compared the modeled concentrations of cadmium and lead to a compilation of measurements obtained from UBA. We have extracted the modeled concentration data at all stations. The comparisons of the modeled and measured annual mean concentration data are given in Figure 3 and 4. The scatter plots for both components show that the data tend to divide in two populations. One group of stations shows a rather good spatial correlation with the measured concentrations and a tendency to overestimate the ambient concentrations. The other group shows low modeled concentrations and high measured values. The majority of the (rural and urban) background stations are found in the first group, whereas the industrial sites are divided between the two. Clearly, these stations are near (local) sources that are not reproduced by the model. The tendency to over predict the concentrations in the background may be due to the fact that the location of small emission sources are not known and are therefore spread out over Germany as a whole. Note, that the model captures most of the distribution over Germany (compare Fig 2. and Fig 1.), except the local maxima in Bavaria.

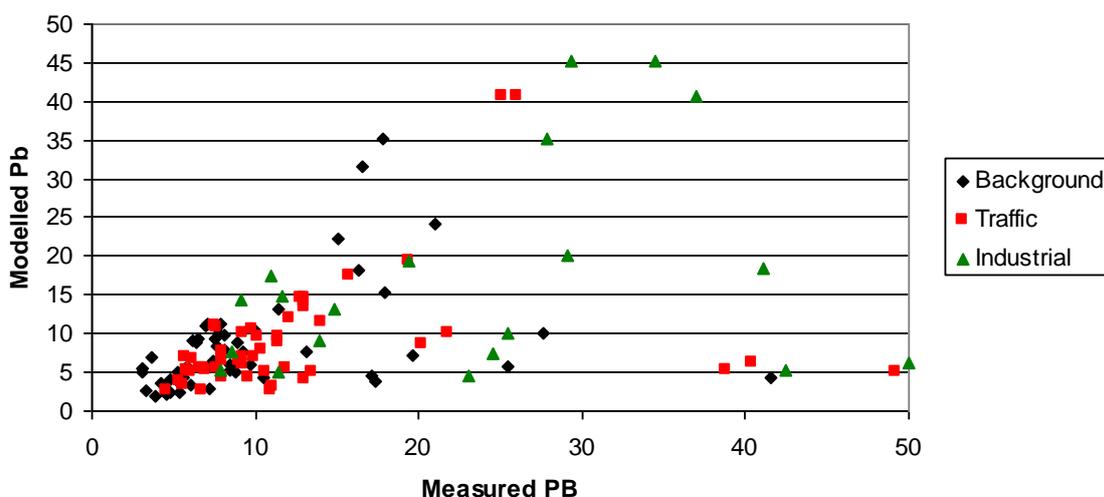


Figure 3. Comparison of measured and modeled annual mean Lead concentration in PM10 (ng/m³)

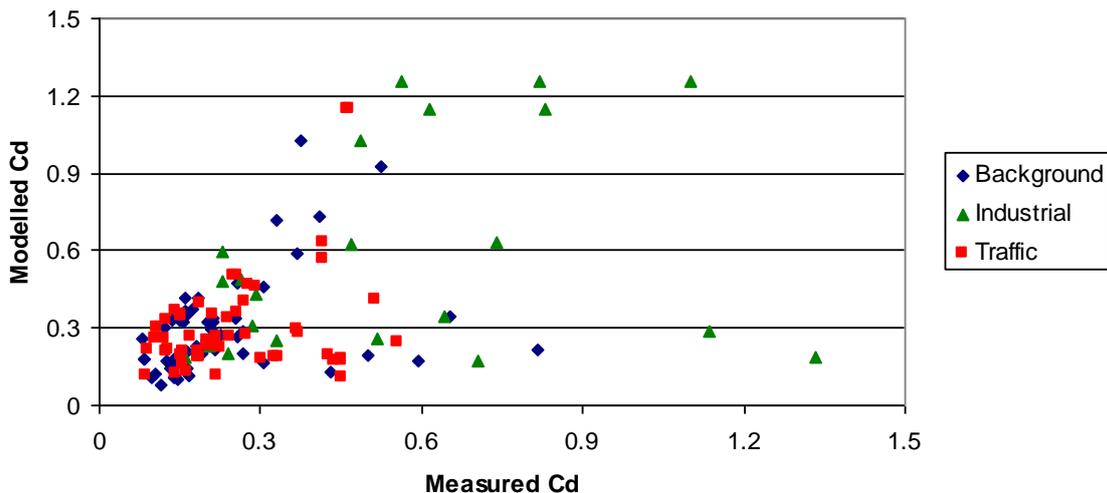


Figure 4. Comparison of measured and modeled annual mean Cadmium concentration in PM10 (ng/m³)

1.7 Discussion and conclusion

We have modeled the heavy metal concentration and deposition with the LOTOS-EUROS model. For the first time a comparison between observed and modelled annual mean concentrations is performed for a large number of stations in Germany. The results of the comparison are surprising. Previous studies, including Gauger et al (2008), have indicated that the lead and Cadmium concentrations are underestimated by a factor 3-4. This is not what we find in this study. Compared to Gauger et al. (2008) the emissions used here are within 10%, albeit that the spatial distribution is significantly altered. Also, the range of modeled concentrations is very similar. However, the measurements presented here are lower than the few used in the previous study. Hence, a thorough evaluation of measured and modeled distributions is advised to assess in how far we need to adjust our understanding of heavy metal concentrations, origin, anthropogenic emissions and deposition.

References

Gauger, T et al, 2008. Abschlussbericht BMU/UBA 204 63 252

Graff, A. und Klose, S. Umweltbundesamt, Dessau, 2009. Personal communication

Ilyin, I and Travnikov, O, 2005. Modelling of Heavy Metal Airborn Pollution in Europe: Evaluation of the Model Results. EMEP/MSC-E, Tech. Rep 8/2005

MAPESI-Bericht Anhang XIV



Towards modeling base cation dry deposition

Towards modeling base cation dry deposition

Introduction

The base cations calcium (Ca), magnesium (Mg), potassium (K) are important nutrients in forest ecosystems. Furthermore, together with sodium (Na) they reduce the acidic input to ecosystems by their anion buffering capacity. Hence, to assess the critical loads for sulfur and nitrogen the base cation deposition needs to be accounted for (Reinds et al., 2008). Critical load maps are used in Europe within an integrated modeling framework as a basis for emission reduction negotiations such as the revision of the European Commission's National Emission Ceiling (NEC) directive (Ammann et al., 2006). Hence, for evaluating the exposure of ecosystems to acid deposition it is important to have a good understanding of the sources and fate of these components.

Base cations derive from distinct sources such as the ocean (Na, Mg), soils (Ca, K) and the burning of biomass (Ca, K). Explicit modeling of base cations may provide a means to better assess their input to ecosystems. We aim to provide a first attempt to model base cations over Europe and Germany. Furthermore, We aim to assess which source contributions are significant by incorporating anthropogenic emission as well as marine emissions and newly developed emission parameterizations for soil dust. The chemistry transport model LOTOS-EUROS (Schaap et al., 2008) is used to model the concentration fields. A evaluation against Melpitz data will be used illustrate the uncertainties in the source description as well as the model performance for base cations.

Model description

The LOTOS-EUROS model (Schaap et al., 2008) is used to calculate the PM₁₀ distributions over Europe for 2005. The LOTOS-EUROS model is a 3D chemistry transport model aimed to simulate air pollution in the lower troposphere. In the vertical the model has four layers up to 3.5km following the dynamic mixing layer approach. The horizontal resolution used here is 0.5°x0.25°. The model is suitable to calculate the transport of primary (combustion) particles (EC, OC), sea salt and secondary inorganic aerosols (SIA: SO₄, NO₃, NH₄). In this study, we used anthropogenic emissions of base cations, primary marine emissions and implemented a description of crustal material for wind-abrasion, resuspension by traffic, and resuspension by agricultural-activities. Below we describe these source terms in more detail.

Anthropogenic emissions

Base cations are emitted by a host of anthropogenic sources and are part of the particulate matter emission data. Hence, normally a speciation of PM to separate the base cations is not performed. Here, we follow the base cation fractions as proposed by van Loon et al. (2005) for the fuels and technologies used in Europe. These propositions were based on only a very limited data basis obtained from Hellsten et al. (2007), Antilla (1990) and Lee and Pacyna (1999). The fraction of base cations in PM for most sources is in the range of 1-2 %. Exceptions are coal and wood combustion and glass production with higher percentages of calcium and sodium, respectively. These fractions are combined with the PM emissions in the TNO emission database (Visschedijk et al., 2005) to calculate and distribute the base cation emission over Europe.

The annual total emissions calculated as such are 218 ktonnes for calcium, 27 ktonnes for Magnesium, 49 ktonnes for Potassium and 30 ktonnes for sodium for the EU27 + Norway and Switzerland. Except for sodium the emissions are dominated by combustion processes. Small combustion sources such as house holds play an important role as they dominate the emissions. However, these emissions are particularly uncertain, especially with respect to wood combustion. This is reflected in the comparison to the total base cation emission as derived here to the totals given by van Loon et al. (2005). The estimated calcium emissions by van Loon et al (2005) are 50% higher than those obtained here.

Table 1. Base cation emission (Ktonnes per year) for the EU27 + Norway and Switzerland from this study and van Loon et al. (2005).

	Ca	Mg	K	Na
This study	218	27	49	30
van Loon et al	303	34	66	27

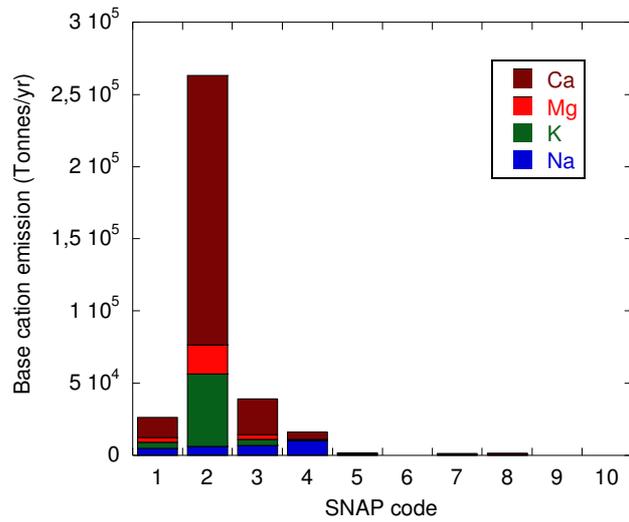


Figure 1. Base cation emission (tonnes) per SNAP category in the EU27+Norway+Switzerland for the year 2000.

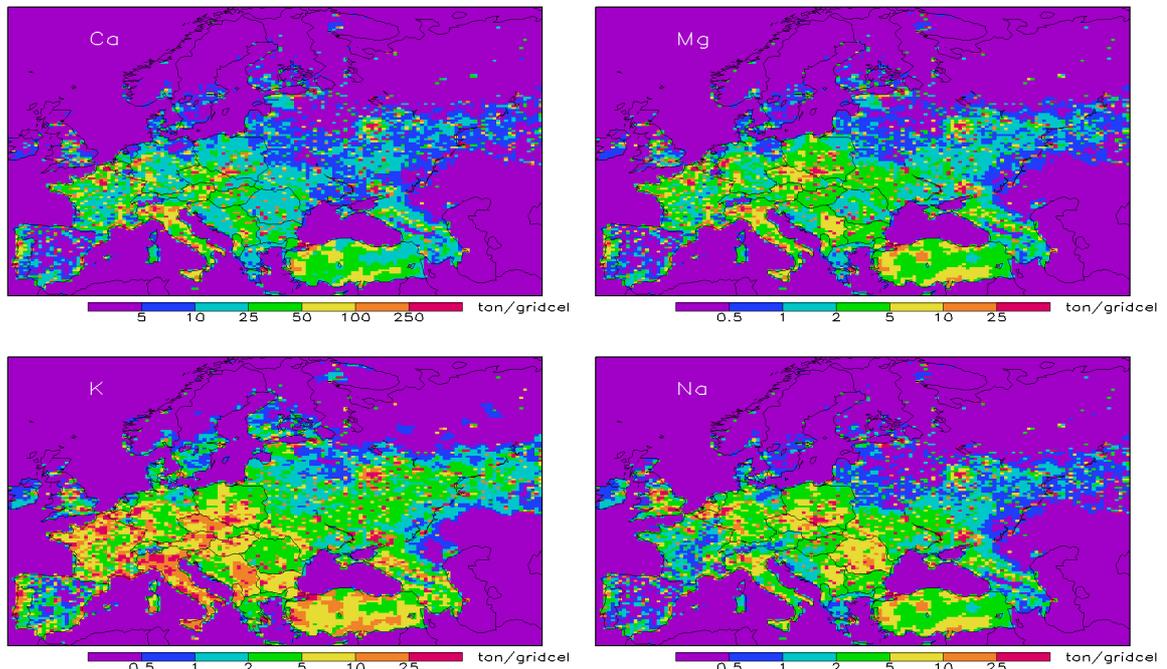


Figure 2. Base cation emission distributions (tonnes per grid cell) for the year 2000.

Sea salt emissions

The model incorporated four sea salt particle size classes. The classes were chosen such that they give two classes in both the fine and the coarse particulate modes: 0.14-1, 1-2.5, 2.5-5 and 5-10 μm wet diameter (at 80% relative humidity). For the generation of sub-micron particles the emission function by Mårtensson et al. (2003) was used. In the super micron size range we follow Monahan et al. (1986). Both parameterizations use a whitecap cover as function of the wind speed, whereas Mårtensson et al. (2003) also includes sea water temperature as an explanatory variable. Generally speaking, the surf zone will contribute locally to the additional generation of aerosol, depending on wind velocity and fetch (De Leeuw *et al.*, 2000). However, since this process is very local (an area of a few hundred metres width along the coast) its contribution to the total sea salt aerosol production is likely to be small and only noticeable in the immediate vicinity of the coast. Thus, we apply open-sea conditions also to the surf zone.

These emission functions provide the sea salt mass that is emitted to the atmosphere. Though sea salt is dominated by sodium and chloride, significant contributions exist from the other three base cations, see table 2. Magnesium to sodium ratios in sea water are about 1:8, whereas potassium and calcium are present in smaller fractions.

Table 2. Mass contribution of several elements to sea salt

Element	Mass contribution (g/g)
Na	0.308
Cl	0.554
Mg	0.038
S	0.026
K	0.011
Ca	0.011

Wind-blown dust emission

The emission of wind-blown dust (wind-induced abrasion) was included following the work of Marticorena and Bergametti (1995, 1997), Gomes et al. (2003) and Alfaro et al. (2001). The applied methods are based on well-know relations for saltation induced dust production in desert area and take into account information on soil texture.

Resuspension by traffic

A pragmatic approach is followed to calculate of traffic related resuspension emission with the LOTOS-EUROS model:

$$F_{trs} = C_{clim} C_{rs} \sum_{veh} \sum_{road} EF_{veh,road} D_{veh,road}$$

The method is based upon a vehicle driven kilometre map ($D_{veh,road}$) over Europe, typified for light duty (LDV) and heavy duty (HDV) traffic and three road type classes (rural roads, urban roads and highways), with corresponding emission factors ($EF_{veh,road}$). The first order estimates for the applied emission factors for $PM_{2.5-10}$, based upon literature (Ketzel et al., 2007; Thorpe et al., 2007 a.o.) are listed in table 3. C_{clim} and C_{rs} are factors to account for variability of traffic resuspension due to the variability of climate conditions (parameterised using soil water content) and road sanding activities. During precipitation traffic resuspension is neglected. The same approach for re-suspension emissions by traffic is used in the PAREST-Project.

Table 3. $PM_{2.5-10}$ emission factor (mg.vkt^{-1}) for traffic related resuspension as a function of road type for light and heavy duty traffic applied in the LOTOS-EUROS model.

	Road type		
	HW	RUR	URB
HDV	198	432	432
LDV	22	48	48

Resuspension by agricultural activities

Despite the poor knowledge and availability of observations, a first approach to calculate the resuspension emission related to agricultural activities with the LOTOS-EUROS model is made. The source function describes emission of mineral dust from agricultural land based on the agricultural activity calendar. The emission flux F_{ars} is defined as follows:

$$F_{ars} = \sum_{operation} C_{operation} EF_{operation} A$$

where $EF_{operation}$ ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}$) is the emission factor for a specific agricultural operation and A (m^2) is the arable surface area over which the emission occurs. $C_{operation}$ (h^{-1}) is a factor that accounts for the timing of each activity and its duration. For now, we distinguish between land preparation activities (harrowing, discing, cultivating and ploughing) using emission factor estimates by Öttl et al. (2007) and harvesting activities using a corn harvesting emission factor (Gaffney et al., 2003). Regional dependency is neglected in the present model setup. We account for the effect by precipitation by neglecting emissions during rain events.

Base cation content of soil

The abovementioned mineral dust emission fluxes are combined with distributions that provide the contribution of base cations to top soils in Europe (Fig. 3). These distributions show that mineral dust comprises the largest contribution of calcium, followed by magnesium and Potassium. Sodium levels in top soils are very low compared to the other components.

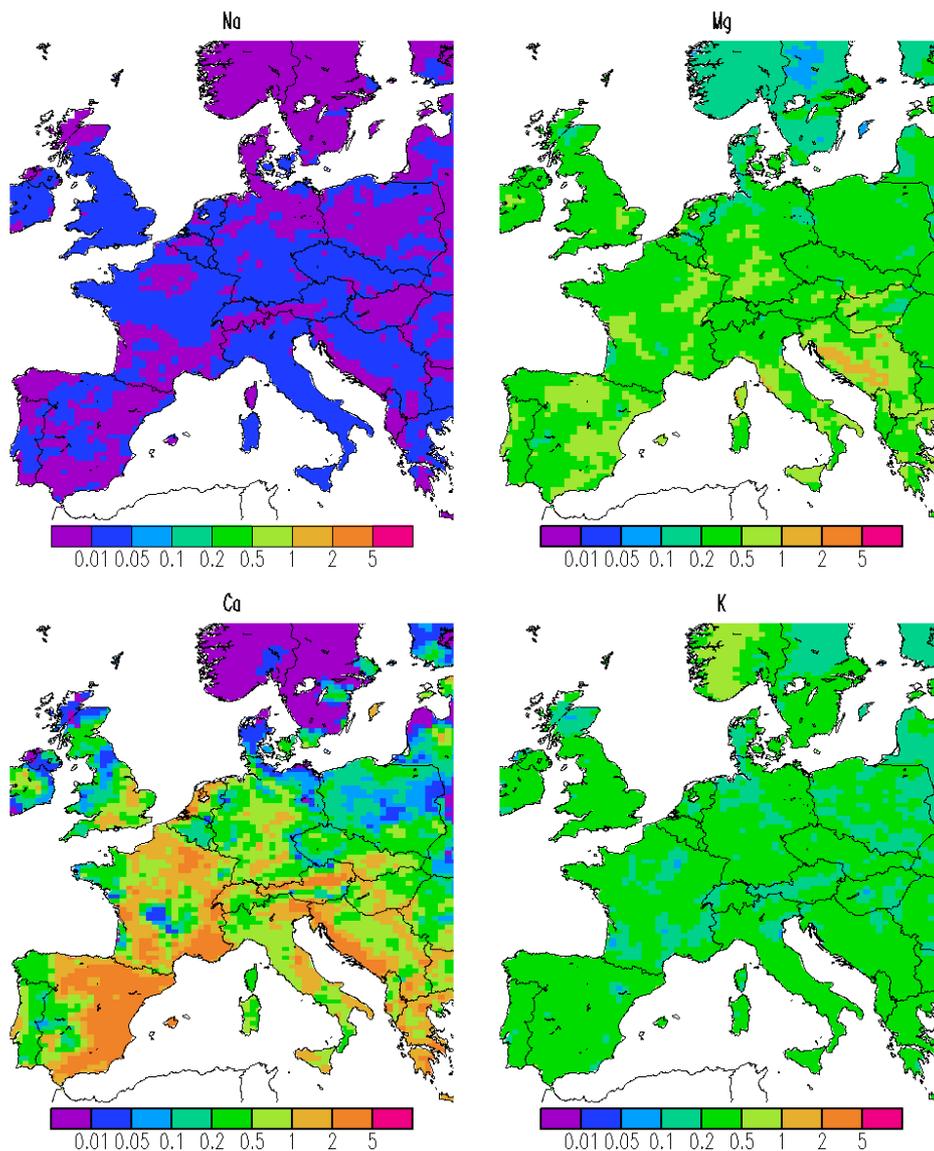


Figure 3. Base cation fractions in European top soils (g/Kg)

Results

The annual mean distributions as modelled with LOTOS-EUROS are given in Figure 4. From all four base cations sodium levels are highest. This is especially true up to about 600 Km from a coast line. Further inland and in densely populated or industrialised regions the contributions of calcium are highest. Below, we give more detail on the results for sodium and calcium as these appear to be the most important and some information is available to verify the results.

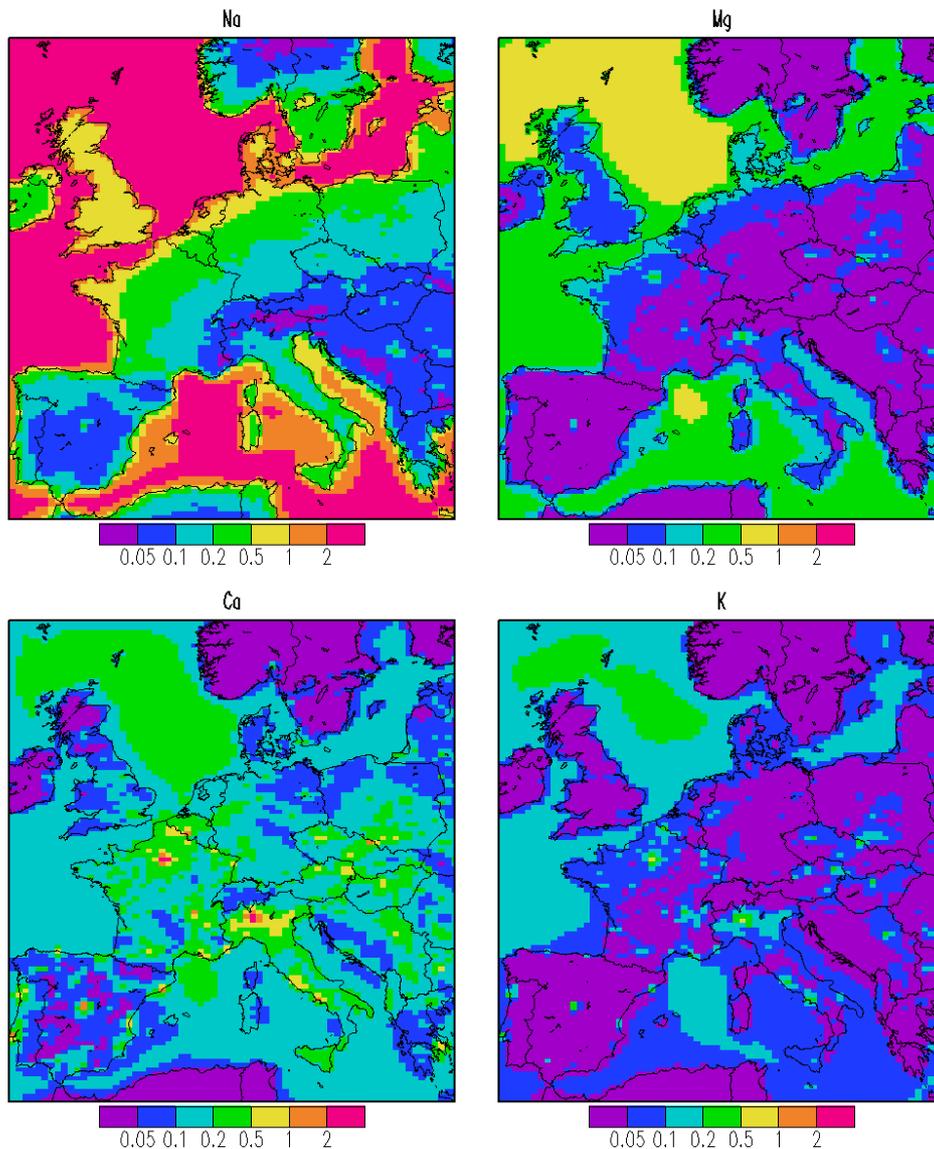


Figure 4. Annual mean modelled concentration distributions of the four base cations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Sodium

The modelled sodium distribution (Fig. 4; upper left) shows the highest sea salt concentration over the open ocean (Atlantic, Mediterranean). Above the Atlantic, higher concentrations are reached than above the Mediterranean due to higher wind speeds. These high wind speeds are associated with westerlies in Europe, and large quantities of sea salt can be transported inland during these conditions. Consequently, the concentrations gradually decrease from the western European coastline to inland locations. The modelled annual mean concentrations are systematically larger than the observed concentrations. For 2005 (Fig. 6), the spatial correlation between model results and observations is high, with an explained variability of 85%, but the model overestimated the absolute value by 60%. The model is able to capture the main features of the day by day variability in sodium concentrations, indicating that the processes of generation and transport of sea salt are modelled realistically.

The modelled contribution of the different source groups is given in Figure 6. Over coastal and remote regions sea salt is by far the dominating contributor to atmospheric sodium concentrations. In these areas the sea contributes more than 95%. Over central Europe and some smaller densely populated areas the impact of anthropogenic emissions is larger. Over most of western Europe the contribution of the sea is still

above 80%, including Germany. In the Po-Valley and over large regions in eastern Europe anthropogenic activities contribute 20-80%, illustrating that in these regions the assumption that all sodium derives from sea salt is not valid. Note that the absolute concentrations and with that the sodium deposition fluxes are small in these regions anyway.

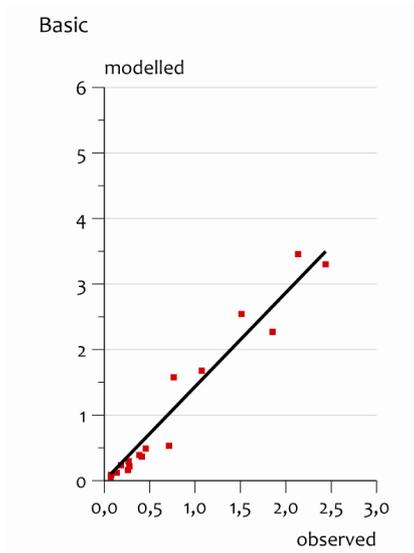


Figure 5. Comparison between modelled and measured sodium concentrations

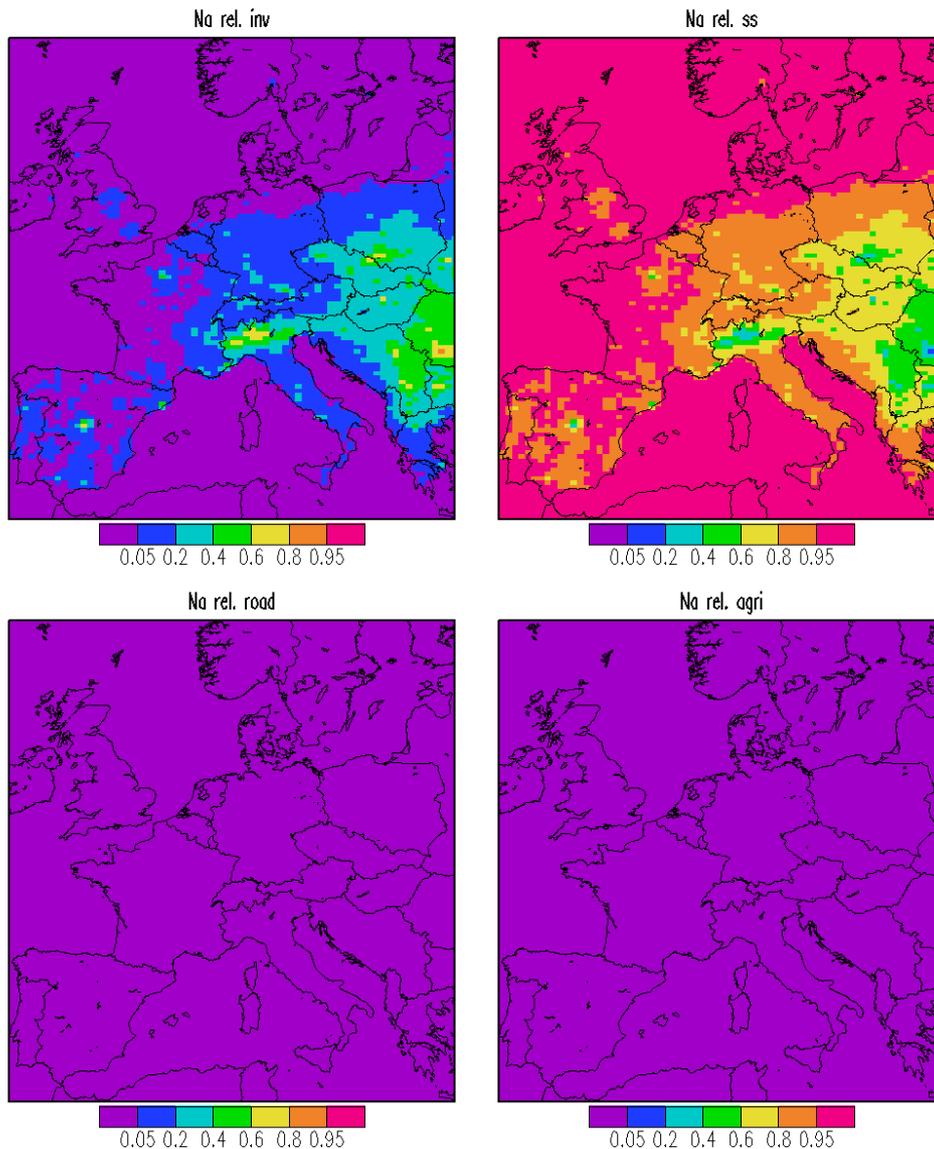


Figure 6. Modelled relative contributions of the emission inventory, sea salt, road resuspension and agricultural emissions to sodium concentrations.

Calcium

The modelled calcium distribution (Fig. 4; lower left) shows a different picture than for sodium. Though sea salt is clearly an important source for calcium above sea, the concentrations above land are similar or higher than at sea. Maximum calcium concentrations are found above densely populated areas such as the Po-valley, Paris, Ruhr area and Stuttgart.

In Figure 7 we compare the importance of the differentiated sources. Marine emissions are dominant above sea, though a significant contribution of the emission inventory is found at sea in contrast to the situation for sodium. Above land, the marine contribution is modelled to be above 20% only in the direct vicinity of the coast. In the northern half of Germany the marine calcium contribution is modelled to be between 5 and 20%. The emission inventory contributes between 80 and 95 % over most of Germany and is therefore the most important contributor to the modelled concentrations. Resuspension by agriculture is a significant source over Spain, but is modelled to be small over Germany. These results indicate that small combustion sources, most notably wood combustion in households, are very important for atmospheric calcium and its deposition.

Unfortunately, only a few measurements are available for model evaluation. We compare the annual mean modelled concentrations to those measured at 7 stations within the EMEP programme, see Fig 8 The number of stations is too small to draw strong conclusions. The model is not too far off when compared to the 4 stations north of the Alps. Also, for these four stations the order from low to higher concentrations is right. For the sites in southern Europe the modelled concentrations underestimate the observed values significantly.

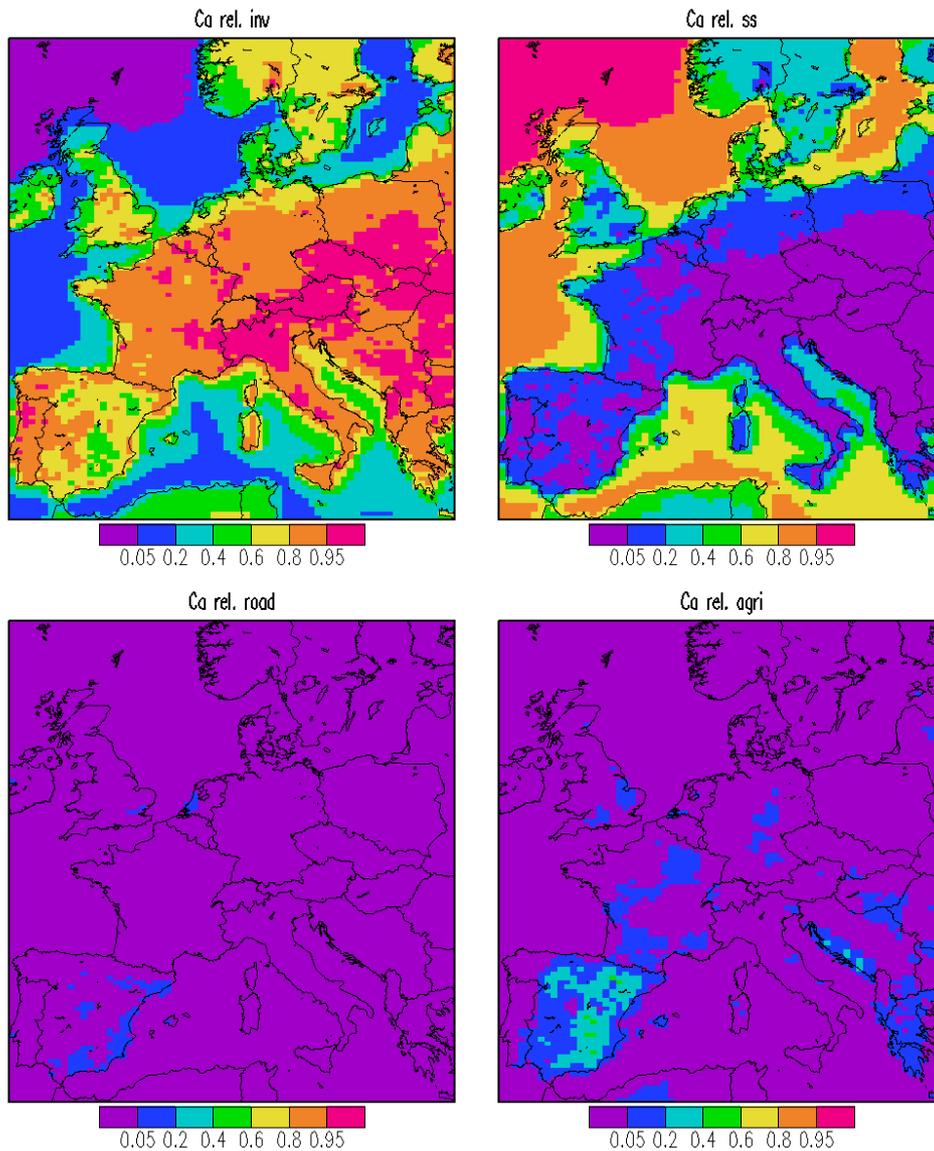


Figure 7. Modelled relative contributions of the emission inventory, sea salt, road resuspension and agricultural emissions to calcium concentrations.

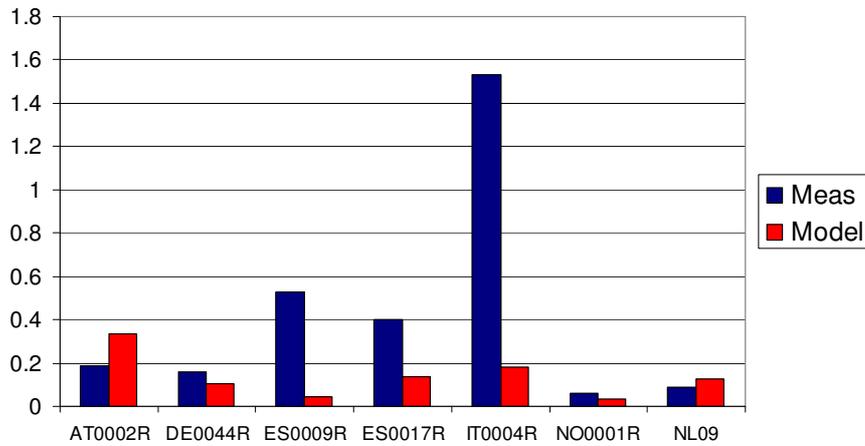


Figure 8. Comparison of modelled annual mean calcium concentrations in 2005 against observations obtained at 7 EMEP stations.

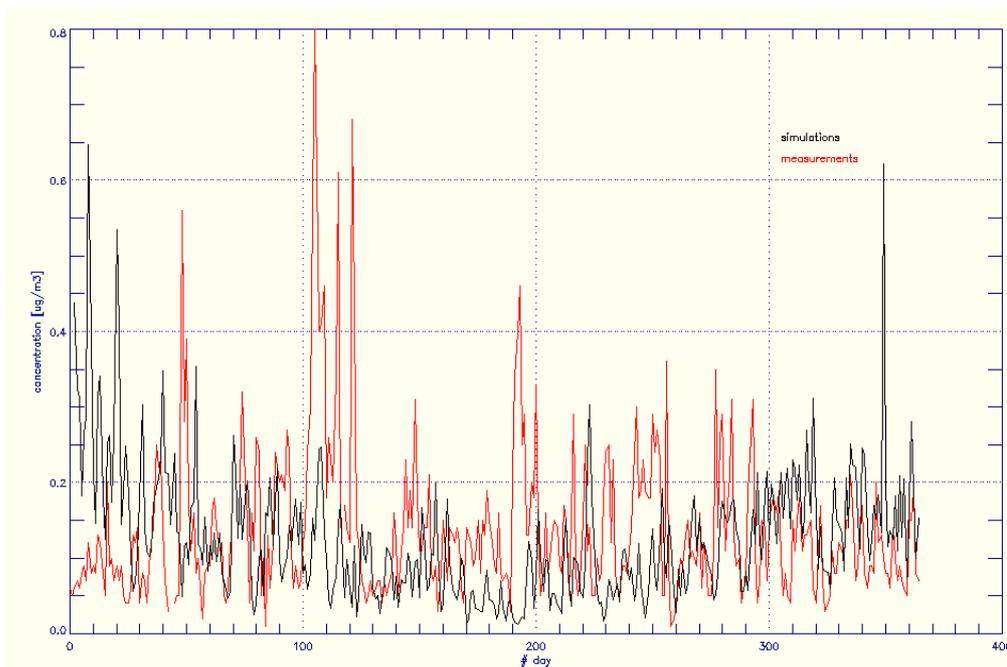


Figure 9. Comparison of modelled and measured calcium time series at Melpitz.

Comparison of the behaviour in time at Melpitz shows that the day to day variability in modelled and observed calcium concentrations are quite different, see Fig 9. The model shows a typical behaviour of a primary product with maximum levels in winter and a summer time minimum. The modelled high peaks in winter are caused by intrusions of sea salt, which appears to be overestimated. During the whole year the model captures some of the basic episodic character, but fails to capture a number of periods with enhanced concentrations. For instance, the impact of Eastern-fires is visible in the time series. Hence, on a day by day basis the comparison is not very convincing and satisfactory results for calcium are not yet obtained.

Discussion

The modelling of calcium concentrations and deposition is a challenge. To put it differently, modelling the impact of wood combustion, the major source for calcium, is very difficult. First, the use of wood for fireplaces is not well known. Furthermore, the spatial allocation is difficult. Note that this work does not include the recent improvements made by the German PAREST and EU-EUCAARI project in this respect. Also, the timing is assumed to be similar from day to day and only include a seasonal variation. Hence, specific episodes such as Eastern-fires or larger emissions during cold holidays or weekends are not accounted for. To better describe the behaviour in time and space these issues need to be improved. Furthermore, the traffic resuspension emissions throughout the year and agricultural resuspension emissions for each season are constant in time too. Hence, variability in emissions as a consequence of droughts and wet periods are neglected. Thus, potential strong contributions in very dry periods of the year may be significantly underestimated. These uncertainties make it impossible to model the deposition flux of calcium to Germany with sufficient certainty. The same applies for potassium.

The model performance for sodium is much better than for calcium. Though a systematic bias is present, the spatial gradients are modelled surprisingly well. Hence, taking into account the bias it should be possible to derive a dry deposition distribution for sodium over Germany at a high resolution. As most of the Magnesium also derives from sea salt, the same may apply for Magnesium.

Conclusions

- It is challenging to correctly simulate the atmospheric concentrations of base cations.
- Important emission sources such as wood combustion are very uncertain. Also, timing and spatial allocation of these emissions are least known.
- A first order assessment of the relevance of resuspension and agricultural land management as sources of long range transport and subsequent dry deposition of base cations does not show a significant impact.
- Calcium concentrations are dominated by anthropogenic activities and only in coastal areas the contribution of sea salt becomes high. For sodium the marine emissions dominate the mass concentration and therefore the deposition to a large extent. Only in Eastern Europe a contribution below 90% is modelled.

References

- Alfaro, S.C., Gomes, L., Modelling mineral aerosol production by wind erosion: emission intensities and aerosol distributions in source areas. *J. Geophys. Res.* 106, 18075– 18084, 2001.
- Antilla, P., Characteristics of alkaline emissions, atmospheric aerosols and deposition. In Kauppi, P., Antilla, P. and Kenttämies, K. (Ed.): *Acidification in Finland. Finnisch Acidification Research Programme HARPO 1985-1990*, pages 111-134. Springer Verlag, Berlin, 1990.
- Gaffney, P, H. Yu, Computing Agricultural PM10 Fugitive Dust Emissions Using Process Specific Emission Rates and GIS, Dust Conference 2007, Maastricht, The Netherlands, 2007.
- Gomes, L., Arru'e, J.L., Lo'pez, M.V., Sterk, G., Richard, D., Gracia, R., Sabre, M., Gaudichet, A., Frangi, J.P., 2003. Wind erosion in a semi-arid agricultural area of Spain: the WELSONS project. *Catena* 52, 235– 256.
- Hellsten, S, Loon, M, Tarrasón, L., Vestreng, V., Torsteth, K., Kindbom, K., Aas, W., Base cations deposition in Europe, Swedisch Environmental Research Institute, IVL Report B1772, Stockholm, 2007.
- Ketzel, M., G. Omstedt, C. Johansson, I. Düring, M. Pohjola, D. Oetl, J. Gidhagen, P. Wåhlin, A. Lohmeyer, M. Haakana, R. Berkowicz, Estimation and validation of PM2.5/PM10 exhaust and non-exhaust emission factors for practical street pollution modeling, *Atmospheric Environment* 41, pp. 9370-9385, doi: 10.1016/j.atmosenv.2007.09.005, 2007.

- Leeuw, G. de, Neele, F.P., Hill, M., Smith, M.H., Vignati, E., Production of sea spray aerosol in the surf zone, *J. Geophys. Res.*, 105, 2000.
- Loon, M. van, Tarrasón, L., and Posch, M, Modelling Base Cations in Europe, Norwegian Meteorological Institute, EMEP Tech. Rep MSC-W 2/2005, 2005.
- Mårtensson, E.M, Nilsson, E.D., de Leeuw, G., Cohen, L. H., Hansson, H.-C., Laboratory simulations and parameterization of the primary marine aerosol production. *J. Geophys. Res.* 108, 2003.
- Martcorena, B., Bergametti, G., Modeling the atmospheric dust cycle: 1-design of a soil derived dust production scheme. *J. Geophys. Res.* 100, 16,415-16,430.
- Martcorena, B., Bergametti, G., Gillette, D.A., Belnap, J., Factors controlling threshold friction velocity in semiarid and arid areas of the United States. *J. Geophys. Res.* 102, 23277–23287, 1997.
- Monahan, E.C., Spiel, D.E., Davidson, K.L., ‘A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption’, In *Oceanic Whitecaps and their role in air/sea exchange*, edited by Monahan, E.C, and Mac Niocaill, G., pp. 167-174, D. Reidel, Norwell, Mass., USA, 1986.
- Öttl, D, R. Funk, PM emission factors for farming activities by means of dispersion modeling, *Landbauforschung Völkenrode Special Issue 308*, pp. 173-177, 2008.
- Reinds, G.J.; Posch, M.; Vries, W. de; Slootweg, J.; Hettelingh, J.P., Critical loads of sulphur and nitrogen for terrestrial ecosystems in Europe and Northern Asia influenced by different soil chemical criteria, *Water Air and Soil Pollution* 193 (1-4). - p. 269 – 287, 2008.
- Schaap, M., Timmermans, R.M.A., Sauter, F.J., Roemer, M., Velders, G.J.M., Boersen, G.A.C., Beck, J.P., and Builtjes, P.J.H, The LOTOS-EUROS model: description, validation and latest developments, *Int. J. Environment and Pollution*, Vol. 32 (2), 270-28, 2008.
- Thorpe, A., R. M. Harrison, P.G. Boulter, I.S. McCrae, Estimation of particle resuspension source strength on a major London Road, *Atmospheric Environment* 41, pp. 8007-8020, doi: 10.1016/j.atmosenv.2007.07.006, 2007.
- Visschedijk, A.J.H. and H.A.C. Denier van der Gon, Gridded European anthropogenic emission data for NO_x, SO₂, NMVOC, NH₃, CO, PM 10, PPM 2.5 and CH₄ for the year 2000, TNO-Rep B&O-A R 2005/106, 2005.



Ozone flux modeling

Introduction

Ozone damage to vegetation has been recognised and studied for many decades, see e.g. Benton et al, 2000. In order to bring the risk of ozone-induced plant injury within the scope of emission control strategy development, such risk needs to be related to some kind of metric which can be mapped. Within UN-ECE, the two main metrics currently suggested for use in performing regional risk assessments of ozone damage are the concentration based AOT_X (Accumulated Ozone over Threshold X index; Fuhrer et al, 1997), and the flux based $AF_{st}Y$ approach (Accumulated stomatal Flux over threshold of Y $\text{nmol/m}^2/\text{s}$; Mills, 2004; Tarasson et al, 2007; Fig.1). In 2010 this approach was renamed as the Phytotoxic Ozone Dose above a threshold of Y (POD_Y) (Harmens et al., 2010) but in the following explanations we still refer to it with its synonymous $AF_{st}Y$.

The flux based approach relates risk to the absorbed ozone dose rather than ambient ozone concentration, through the use of stomatal conductance algorithms. These metrics have been defined in detail in the recently revised UNECE Mapping Manual (Mills, 2004). In this current study we calculate the ozone stomatal flux for summer 2005 over Germany. The discussion of the results is focused to the forest areas, as forests cover most of the area of natural ecosystems in Germany.

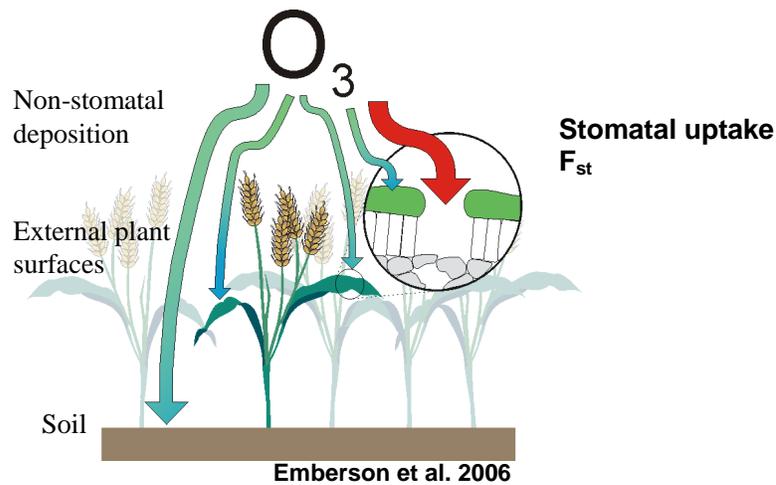


Fig 1. Stomatal Uptake

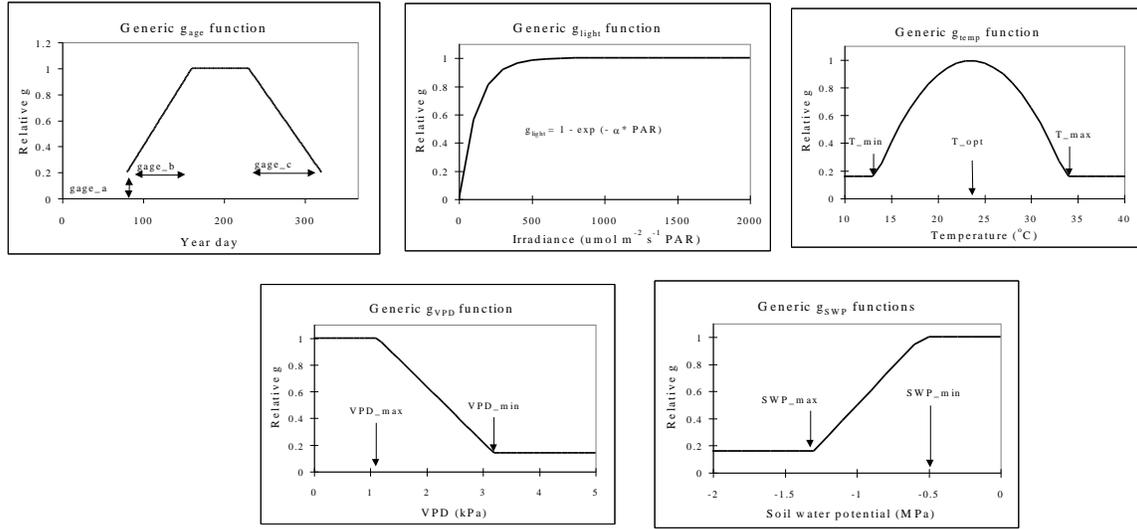


Figure 2. Weighting functions for the determination of the stomatal conductance as function of ambient conditions. $g_{sto} = g_{max} * [\min(f_{phen}, f_{O3})] * f_{light} * \max[f_{min}, (f_{temp} * f_{VPD} * f_{SWP})]$

Stomatal flux calculation

First calculations are carried out to calculate ozone damage to vegetation in terms of AFstY approach (after Mills et al, 2004; Simpson et al. 2007).

First the stomatal flux of ozone, F_{st} , is calculated, being defined as,

$$F_{st} = c(h) \frac{1}{R_b + R_c} \frac{g_{st}}{g_{st} + g_{ext}}$$

Here F_{st} is expressed in $\text{nmol m}^{-2} \text{PLA s}^{-1}$ where PLA the projected leaf area ($\text{m}^2 \text{m}^{-2}$), $c(h)$ (in nmol m^{-3}) is the concentration of species at canopy top h (in m). $1/(R_b+R_c)$ represents the deposition rate to the leaf through the quasi-laminar and surface resistances R_b and R_c respectively. The fraction of ozone taken up by the stomata is given by $g_{st}/(g_{st}+g_{ext})$, where g_{st} is the stomatal conductance and g_{ext} the cuticular conductance. The R_b and R_c values including stomatal conductance are calculated after Emberson et al. (2007) (see Fig 2).

The accumulated stomatal flux over a certain threshold Y ($\text{nmol m}^{-2} \text{PLA s}^{-1}$), and within a certain fixed accumulation period, is calculated on an hourly basis,

$$AFstY = \sum_{i=1}^n [Fst_i - Y]$$

for the tree land use classes and for arable land / permanent vegetation. Y values of $1.6 \text{ nmol m}^{-2} \text{PLA s}^{-1}$ and $6 \text{ nmol.m}^{-2} \text{s}^{-1}$ were applied for the forest and crops/permanent vegetation land use classes respectively. For forests, an accumulation period from April throughout September was applied over the German area, and for arable land/ permanent vegetation a period from April 15 to July 15 (after Tuovinen et al. 2003). The Critical Level for forests is 4 mmol m^{-2} ; the Critical Level for Crops is 1 mmol m^{-2} (Simpson et al., 2007). The results presented here are focussed on the forest area. By definition of Mills et al. (2004), for permanent vegetation, the accumulated stomatal flux over

threshold Y should actually be determined for a maximized stomatal flux F_{st} , so without water vapour deficit or taking into account the effect of shading of individual leaves. Hence, the ozone flux needed in this calculation is not the grid average as used in the model, but it is determined separately for sunlit leaves.

As a general comment it should be noted that the implementation for the methodology is not so easy. The mapping manual follows in detail the methodology of DO_3SE , which is also the basis of the deposition module as used in the EMEP model. The descriptions given in the manuals are not always as explicit as is needed for implementation in another CTM. Moreover, the most active part of the plant (for which the flux is calculated) is not well defined and leaves room for discussion.

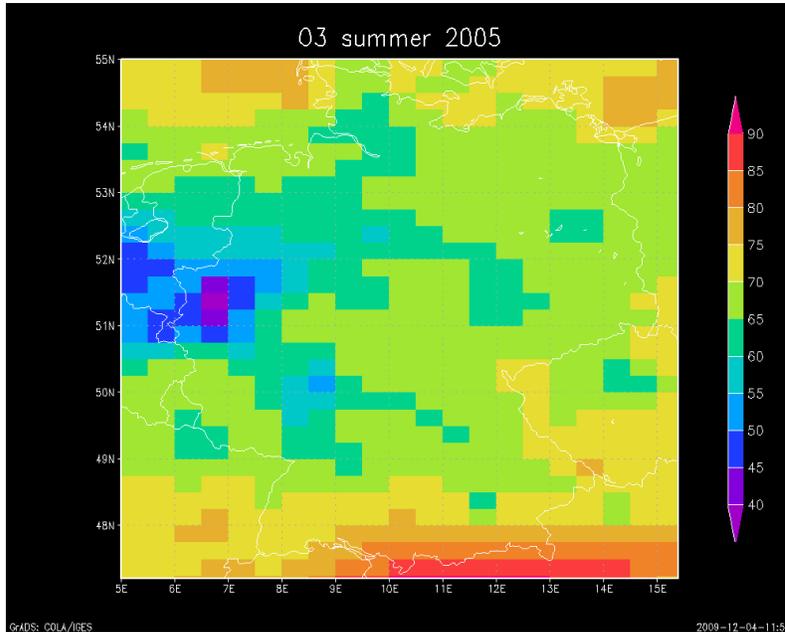


Figure 3. Mean ozone distribution [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] over Germany for the summer of 2005.

Results

Figure 3 shows the mean modeled ozone distribution for the summer of 2005. Average concentrations are around $60\text{-}70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ over most of Germany. Lower values are found in regions with large NO_x emissions where the titration effect becomes significant. In this respect the Ruhr area stands out. We have compared the model results to observed time series at a number of stations. A selection of three stations is shown in Figures 4-6.

Overall LOTOS-EUROS slightly underestimates ozone levels. For some stations the underestimation is most notable for the higher end of the concentration range due to an underestimation of ozone levels in April (see Fig 6). Nevertheless, the correlation between modeled and observed concentrations is quite reasonable and the model is able to capture the observed variability.

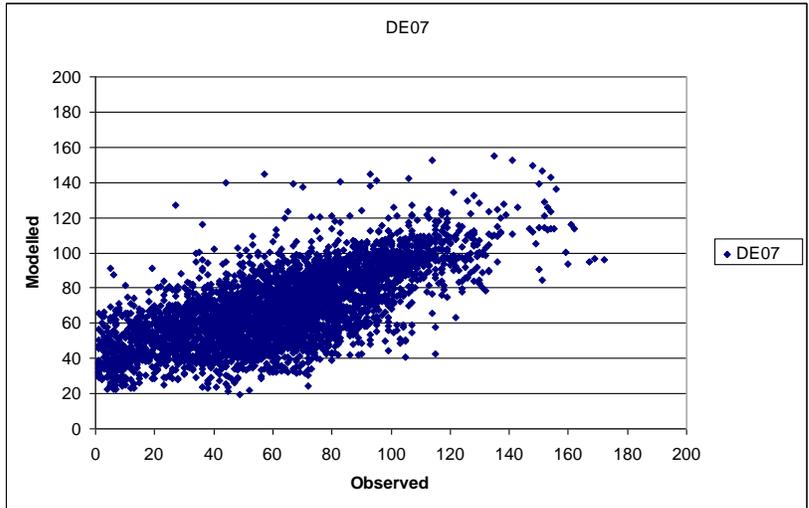


Figure 4. Comparison of modeled and measured concentrations of ozone for summer 2005 at DE07, Neuglobsow

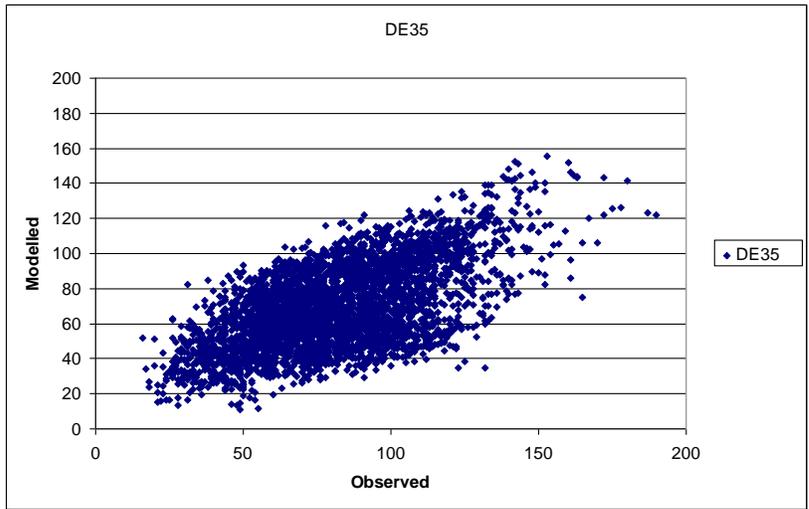


Figure 5. Comparison of modeled and measured concentrations of ozone for summer 2005 at DE35, Lückendorf

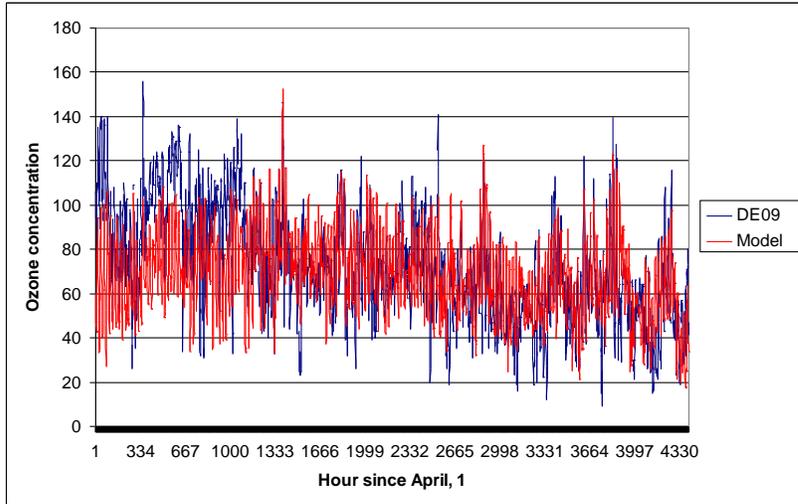


Figure 6. Comparison of modeled and measured concentrations of ozone for summer 2005 at DE09, Zingst.

In Figure 7 we show the ozone concentration and stomatal flux during the second half of May at the location 10E, 51N. It illustrates that the deposition through the stomata peaks during day time and has a minimum during the night. Note however, that the stomatal conductance is dependent on many parameters and that at high temperatures the stomata close and the conductance becomes low. This means that at days with the maximum concentration the stomatal flux may not peak. This is exactly what happens at May, 29, when temperatures are well above 30 degrees and ozone concentrations peak. The stomatal flux, however, is one of the lowest of the period shown.

The hourly fluxes above the threshold have been added over the whole season. The resulting $AF_{st1.6}$ for deciduous forest in Germany is between 4,5 – 8,0 $nmol\ m^{-2}$ (Fig. 8). Maximum fluxes occur in the southern part of the country. Northern Germany and the Ruhr area are characterized by lower fluxes. Comparison of the distribution to the interpolated AOT40 distribution for 2005-2007 shows a similar large scale pattern over Germany, see the Figures of the observed AOT40 in Anhang XII (Karten 8 – 10).

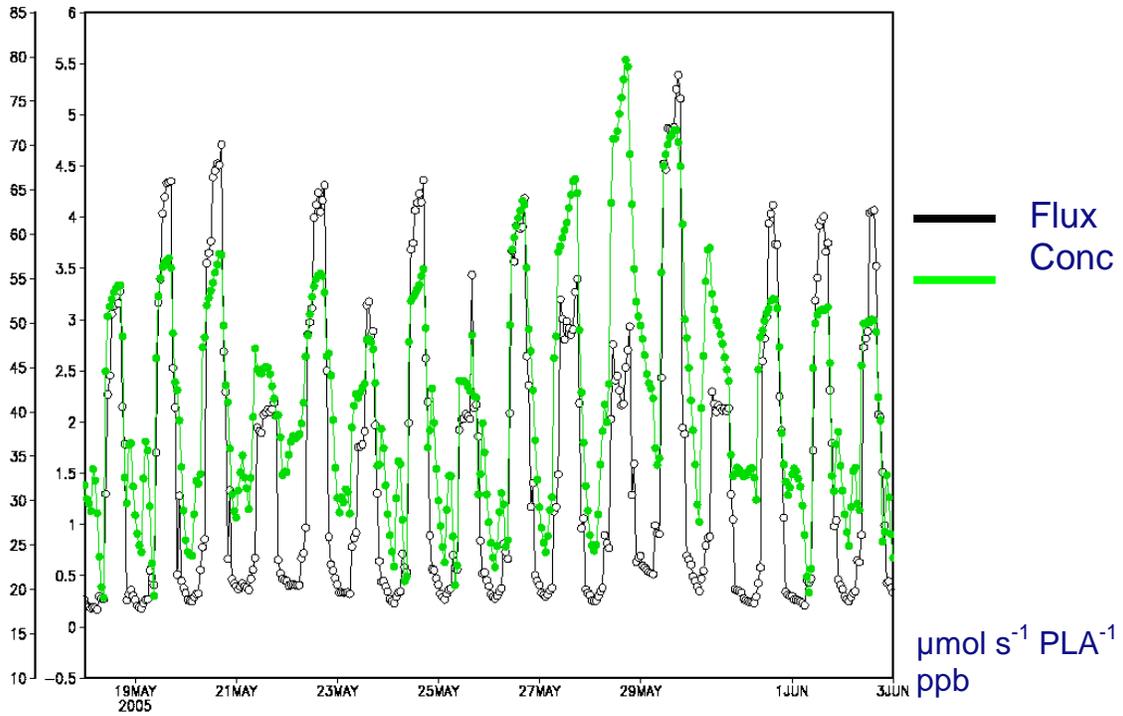


Figure 7. Time series of ozone concentration (green) and stomatal flux (black) during the second half of May at the location 10E, 51N.

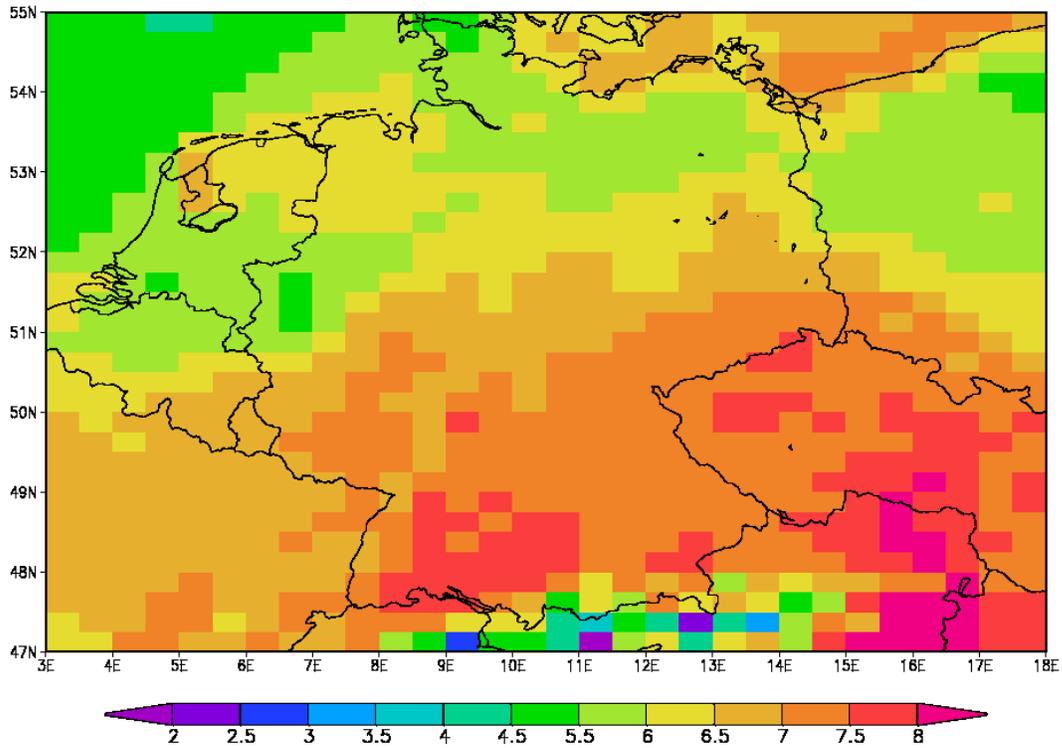


Figure 8. $AF_{st1.6gen}$ for Forests in Germany ($mmol/m^2$).

Sensitivity analysis

The calculation of the AF_{st} includes a threshold applied to the stomatal flux. The main disadvantage of a measure that includes a threshold is that it becomes more sensitive to the absolute fluxes. The sensitivity to a threshold increases when the fluxes do not exceed the threshold much. Here we illustrate the sensitivity of the AF_{st} measure for forest. For this purpose we have increased the dry deposition velocity of ozone by 20%. The resulting $AF_{st}1.6$ map is shown in Figure 9. In this case the stomatal flux increases everywhere. In a relative sense the fluxes increase by about 40-45%, which is more than twice the change in the ozone deposition velocity. This example illustrates the amplified sensitivity of the method to uncertainties in the dry deposition velocity. As dry deposition velocities may differ substantially between models there is also an amplified sensitivity to the model system used. It should be noted that discussions are held to set the threshold to zero.

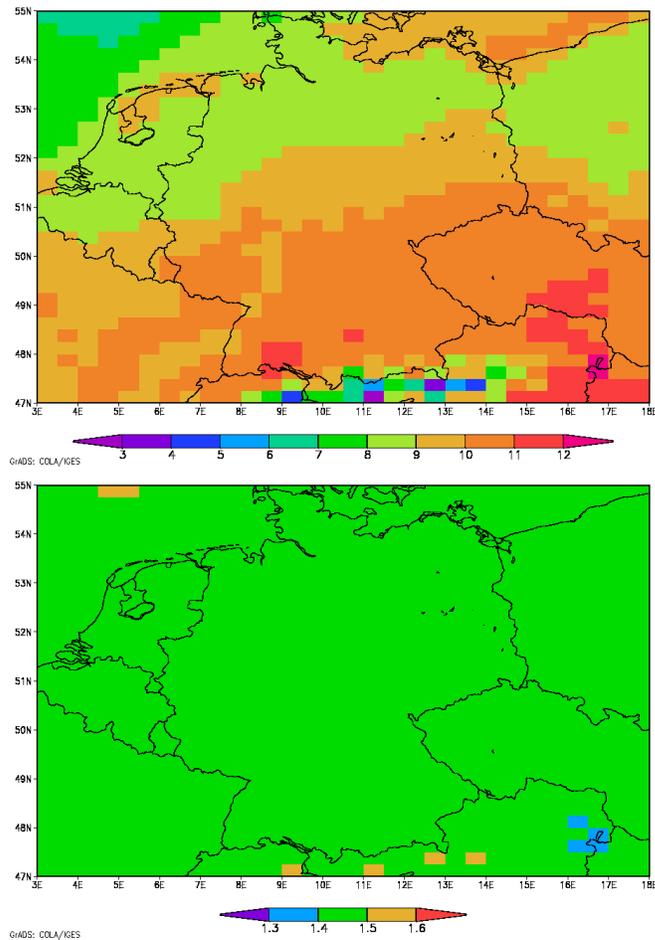


Figure 9. $AF_{st}1.6gen$ for Forests in Germany ($mmol/m^2$) with an 20% higher ozone deposition velocity (upper panel) and the relative impact of increasing the ozone dry deposition with 20% (lower panel).

Conclusions

- First ozone flux calculations for Germany have been performed.
- It should be noted that the implementation is not straightforward, and depends on the interpretation selected
- The definition of the actual stomatal flux for the most active part of the plant is not very well defined.
- Results are model dependent and model sensitivity is magnified due to the use of a threshold
- Uncertainties in concentrations, stability parameters and in stomatal conductance calculation G_{sto} as well as possible errors are magnified.
- These first results need further verification, possibly with ICP-forest data, also for other countries.
- The distribution of stomatal flux across Germany is broadly similar to that of AOT40, which means that O₃-damage determined by the O₃-concentration approach and the flux approach show similar patterns. It should be noted, that this is not the case over Europe as a whole (Simpson, 2007)

References

Benton, J et al, 2000 “ An international cooperative programme indicates the widespread occurrence of ozone injury on crops. Agriculture, Ecosystems and Env. 78, 19-30

Emberson, L et al, 2000 “ Modelling stomatal ozone flux across Europe” Env. Poll. 109(3): 403-414

Harmens, H et al, 2010 “ICP Vegetation Annual Report 2009/2010” Centre for Ecology and Hydrology, Environment Centre Wales. <http://icpvegetation.ceh.ac.uk/publications/annual.html>

Fuhrer, J et al, 1997 “ Critical levels for ozone effects on vegetation in Europe”. Env. Poll. 91-106

Mills, G. 2004 “ Mapping critical levels for vegetation.” Constantly updated version available at www.icpmapping.org

Simpson, D, et al, 2007 “ A comparison of two different approaches for mapping potential ozone damage to vegetation. A model study”. Env. Poll. 146, 715-725

Tarrason, L. et al, 2007 “ Transboundary Acidification, Eutrophication and Ground Level Ozone in Europe in 2005. EMEP Status Rep. 1/2007

Tuovinen, 2003, Assessing vegetation exposure to ozone, Env. Pollution 119, 2, 203-214

MAPESI-Bericht Anhang XVI



Kartierung von Deposition Loads 2004 bis 2007
INS Methodik

Umweltforschungsplan
des Bundesministeriums für Umwelt,
Naturschutz und Reaktorsicherheit

Luftreinhalteung

Förderkennzeichen BMU/UBA 3707 64 200

„Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland“

MAPESI-Projekt
(Modelling of Air Pollutants and EcoSystem Impact)

Abschlussbericht,
Projektteil:

Kartierung von Deposition Loads
2004 bis 2007

Anhang XVI:
INS Methodik

Thomas Gauger
thomas.gauger@nav.uni-stuttgart.de

Institut für Navigation der Universität Stuttgart (INS)
Institutsleiter: Prof. Dr.-Ing. A. Kleusberg

IM AUFTRAG
DES UMWELTBUNDESAMTES

2010

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	I
Tabellenverzeichnis	II
Abbildungsverzeichnis	II
1 Methodik der Modellierung und Kartierung der rezeptorspezifischen Gesamt-Deposition in Deutschland	1
1.2 Nasse Deposition.....	5
1.2.1 Datenakquisition zur Kartierung der Nassdeposition.....	5
1.2.2 Datenakquisition – Aktualisierung der Depositionsdatenbank.....	7
1.2.3 Datenquellen der Modellierung der Nassdeposition.....	9
1.2.4 Pre-processing der Input-Daten und Modellierung der Nassdeposition.....	12
1.2.5 Qualitätssicherung und Fehlerdiskussion der Modellierung der Nass-Deposition.....	15
1.2 Modellierung der Trocken-Deposition basischer Kationen.....	22
1.2.1 Angewandter Modellansatz der Berechnung der Trocken-Deposition basischer Kationen.....	23
1.3 Feuchte Deposition.....	26
1.4 Umrechnung der LOTOS-EUROS Rasterkarten der Trocken-Deposition von TNO in ökosystemspezifische Karten im 1x1km ² Standard-Raster.....	29
1.5 Vergleich und Auswertung unterschiedlicher Rasterauflösungen (1 x 1km ² INS-Raster, 0,0625° x 0,125° TNO-Raster) auf Basis der Bundesländer.....	31
1.5.1 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für NH _x -N in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Bundesländer.....	32
1.5.2 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für NO _y -N in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Bundesländer.....	34
1.5.3 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für SO _x -S in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Bundesländer.....	36
1.6 Vergleich und Auswertung der unterschiedlichen Rasterauflösungen (1 x 1km ² INS-Raster, 0,0625°x 0,125° TNO-Raster) auf Basis der Landkreise in den einzelnen Bundesländern.....	38
1.6.1 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für NH _x -N in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Landkreise in Deutschland.....	38
1.6.2 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für NO _y -N in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Landkreise in Deutschland.....	40
1.6.3 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für SO _x -S in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Landkreise in Deutschland.....	41
1.7 Vergleich der Modellierung der Gesamtdeposition mit Ergebnissen von Kronenraumbilanz-Berechnungen.....	43
1.7.1 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse mit mikrometeorologischen Messungen und Kronenraumbilanz-Berechnungen für Stickstoff-Spezies am Wald-Standort Augustendorf.....	47
Einheiten und Umrechnungsfaktoren.....	49
Literatur:.....	51

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Betreiber von Depositionsmessungen in Deutschland, dem grenznahen Österreich, Tschechien und Polen, mit Angabe der wesentlichen Messkomponenten und der Aktualität der Daten (Stand: Oktober 2009)	10
Tabelle 2:	Mittlere Verhältnisse von wet-only und bulk Depositionsflüssen in Deutschland (Gauger et al. 2008).....	13
Tabelle 3:	Verhältnisse von S, Cl, Ca, K, and Mg zu Na im Meerwasser [eq/eq] und Berechnung von nicht-Seesalz Einträgen (ICP Modelling&Mapping 2004)	14
Tabelle 4:	Vergleich von Messwerten und Kartenwerten in 1x1km ² Rasterfeldern der Modellierung, lineare Regressionen der Niederschlagskonzentrationen der Hauptkomponenten im Niederschlag 2005	15
Tabelle 5:	Vergleich von Messwerten und Kartenwerten in 1x1km ² Rasterfeldern der Modellierung, lineare Regressionen der Nassdepositions-Frachten der Hauptkomponenten im Niederschlag 2005, 2006 und 2007	17
Tabelle 6:	Mittlerer prozentualer Schätzfehler für Konzentrationen im Niederschlag 2004-2007	20
Tabelle 7:	Best-fit-Konstanten des linearen Verhältnisses aus mittlerem Partikeldurchmesser (Mean Mass Diameter, MMD) und den Niederschlagskonzentrationen für Na, Mg, Ca and K. Draaijers et al. (1996).	24
Tabelle 8:	Best-fit-Parameter a und b nach Bleeker et al. 2000:	27
Tabelle 9:	Vergleich von Kronenraumbilanz- und Kartenwerten der Modellierung, lineare Regressionen der Gesamt-Deposition von SO _x -S, NO _y -N, NH _x -N, N, Ca, K, Mg 2005 (86 Waldstandorte)	45
Tabelle 10:	Umrechnungsfaktoren für Elemente und Verbindungen von S- und N-Spezies:	49
Tabelle 11:	Umrechnung zwischen Mol-Masse [g, kg] und Äquivalent-Masse [eq = mol _e].....	50

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Modellierung der Gesamt-Deposition im BMU/UBA Projekt „Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland“ („MAPESI“).....	2
Abbildung 2:	Verteilung der Messorte der Freiland-Deposition der Hauptkomponenten im Niederschlag in den Messnetzen in Deutschland, einschließlich grenznaher österreichischer, polnischer und tschechischer Messstationen (Stand 10/2010)	6
Abbildung 3:	Verteilung der Messorte der Freiland-Deposition der Schwermetalle Cd und Pb 2005 und 2007 in den Messnetzen in Deutschland einschließlich grenznaher tschechischer Messstationen (Stand 10/2010).....	7

III

Abbildung 4: Datenbestand der Monitoringdaten der nassen Deposition im Freiland (Stand 10/2006: 1987-2004 und Stand 10/2009: 1987-2007)	9
Abbildung 5: Illustration der flächenhaften Berechnung der Nass-Deposition (Bsp. $\text{NH}_x\text{-N}$ 2005)	14
Abbildung 6: Vergleich von Karten- und Messwerten der Konzentrationen im Niederschlag 2005 [meq l^{-1}].....	16
Abbildung 7: Vergleich von Karten- und Messwerten der nassen Depositionsfrachten im Jahr 2005 [$\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$].....	17
Abbildung 8: Ionenbilanz der Ergebnisse der Modellierung der Nass-Deposition 2004 – 2007	19
Abbildung 9: Kriging-Fehler [in %] der Konzentrationen im Niederschlag 2005.....	21
Abbildung 10: Illustration der flächenhaften Berechnung der Trocken-Deposition basischer Kationen (Bsp. Laubwald, nicht-seesalz Calcium (Ca_{nss}) 2005).....	25
Abbildung 11: Illustration der flächenhaften Berechnung der Trocken-Deposition von Canss für alle 9 Landnutzungsclassen im CORINE Land Cover Mosaik ($1 \times 1 \text{km}^2$ sub-grid).....	25
Abbildung 12: Ergebnisse der flächenhaften Kartierung von Nass-, Trocken- und Feucht-Deposition, Beispiel: Gesamt-Stickstoff (N) 2005.....	27
Abbildung 13: Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Gesamtdeposition als Summe von Nass-, Trocken- und Feucht-Deposition, Beispiel: Gesamt-Stickstoff (N) 2005	28
Abbildung 14: Darstellung und Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NH}_x\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster.....	32
Abbildung 15: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NH}_x\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster im INS-Raster in den Bundesländern und in Deutschland.....	33
Abbildung 16: Darstellung und Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NO}_y\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster.....	34
Abbildung 17: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NO}_y\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Bundesländern und in Deutschland.....	35
Abbildung 18: Darstellung und Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{SO}_x\text{-S}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster	36
Abbildung 19: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{SO}_x\text{-S}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den einzelnen Bundesländern und in Deutschland.....	37
Abbildung 20: Darstellung der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NH}_x\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster und Vergleich in den Landkreisen Deutschlands	39
Abbildung 21: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NH}_x\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Landkreisen.....	39
Abbildung 22: Darstellung der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NO}_y\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster und Vergleich in den	

Landkreisen Deutschlands	40
Abbildung 23: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NO}_Y\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Landkreisen.....	41
Abbildung 24: Darstellung der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{SO}_X\text{-S}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster und Vergleich in den Landkreisen Deutschlands	42
Abbildung 25: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{SO}_X\text{-S}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Landkreisen.....	42
Abbildung 26: Vergleich der Modell-Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Gesamt-Deposition für $\text{NH}_X\text{-N}$, $\text{NO}_Y\text{-N}$, N und $\text{SO}_X\text{-S}$ 2005 mit Schätzungen der Gesamt-Deposition aus Kronenraumbilanz-Berechnungen.....	45
Abbildung 27: Vergleich der Modell-Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Gesamt-Deposition für Ca, K und Mg 2005 mit Schätzungen der Gesamt-Deposition aus Kronenraumbilanz-Berechnungen.....	46
Abbildung 28: Stickstoff Gesamt-Deposition am Kiefernwaldstandort Augustendorf als Ergebnis dieses Projektes für 2005 (oben), nach mikrometeorologischen Methoden, Mittelwert aus 2002 u. 2003 (nach Mohr et al. 2005, Mitte) und nach Kronenraumbilanz-Berechnungen, Mittelwert aus 2002 u. 2003 (nach Mohr et al. 2005, unten).....	48

1 Methodik der Modellierung und Kartierung der rezeptor-spezifischen Gesamt-Deposition in Deutschland

Thomas Gauger

Institut für Navigation der Universität Stuttgart (INS), Breitscheidstraße 2, 70174 Stuttgart

thomas.gauger@nav.uni-stuttgart.de

Dieser Berichtsteil enthält Methodenbeschreibung der wesentlichen Modellierungs- und Kartierungsarbeiten, die am Institut für Navigation bei der Bearbeitung der rezeptorspezifischen Gesamt-Deposition durchgeführt werden.

Die Modellierung der Deposition auf Ökosystemebene erfasst die nasse, trockene und feuchte Deposition. Die Summe dieser drei Flüsse ist die Gesamt-Deposition. Die angewendeten Modell-Verfahren zur Berechnung der einzelnen Depositionsflüsse beruhen auf einer geprüften und international anerkannten Methodik und entsprechen dem Stand der Wissenschaft. Grundsätzlich folgt der methodische Ansatz dabei dem Methodenhandbuch des UN-ECE ICP Modelling & Mapping (Mapping Manual 2004, www.icpmapping.org). Die Umsetzung der Modellierung im „MAPESI-Projekt“ (BMU/UBA 3707 64 200, „Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland“) ist in Abb. 1 zusammenfassend dargestellt. Die Gesamtdeposition wird berechnet als Summe aus:

- Einträgen gelöst im Niederschlag (Regen, Schnee etc.) die als **Nass-Deposition** bezeichnet wird, im internationalen Sprachgebrauch wird der Terminus wet deposition verwendet,
- gasförmigen und partikulären Einträgen aus der Atmosphäre in ungelöster Form, diese werden als **Trocken-Deposition** bzw. dry deposition bezeichnet,
- in Wolken- oder Nebeltropfen gebundenen Einträgen, benannt als **Feucht-Deposition** bzw. cloud (and fog) deposition.

Der Anteil der drei Eintragspfade bzw. Depositionsflüsse an der Gesamtdeposition variiert im Wesentlichen in Abhängigkeit von (1) der Häufigkeit und Intensität des Auftretens, bzw. der Abwesenheit von Regen-, Schnee-, Wolken- bzw. Nebelniederschlag, von (2) der Exposition des Rezeptors, bzw. des Ökosystems sowie von (3) den Eigenschaften des jeweiligen Ökosystems, bzw. der Gesamtoberfläche und Oberflächenrauigkeit des Rezeptorsystems. Die Nass-Deposition ist unabhängig vom Rezeptor, d.h. bei gleicher Niederschlagsmenge, -intensität und gleicher Spezies-Konzentration im Niederschlag ist die Eintragsrate in eine wie auch immer gestaltete Oberfläche gleich groß. Eine Wasserfläche erhielte somit am gleichen Ort der Erdoberfläche dieselbe nasse Fracht wie in ein Waldgebiet, eine Ackerfläche, oder ein anderes Ökosystem. Dagegen kann auch bei gleicher Exposition und gleicher Stoffkonzentration in der Luft bzw. in Wolken- und Nebeltropfen der Anteil der Trocken- und Feucht-Deposition durch den „Filter-Effekt“ bzw. „Auskämm-Effekt“ exponierter großer Akzeptor-Oberflächen (z.B. in Waldgebieten) gegenüber weniger strukturierten Arealen (z.B. in Wiesen oder Wasserflächen) zunehmen.

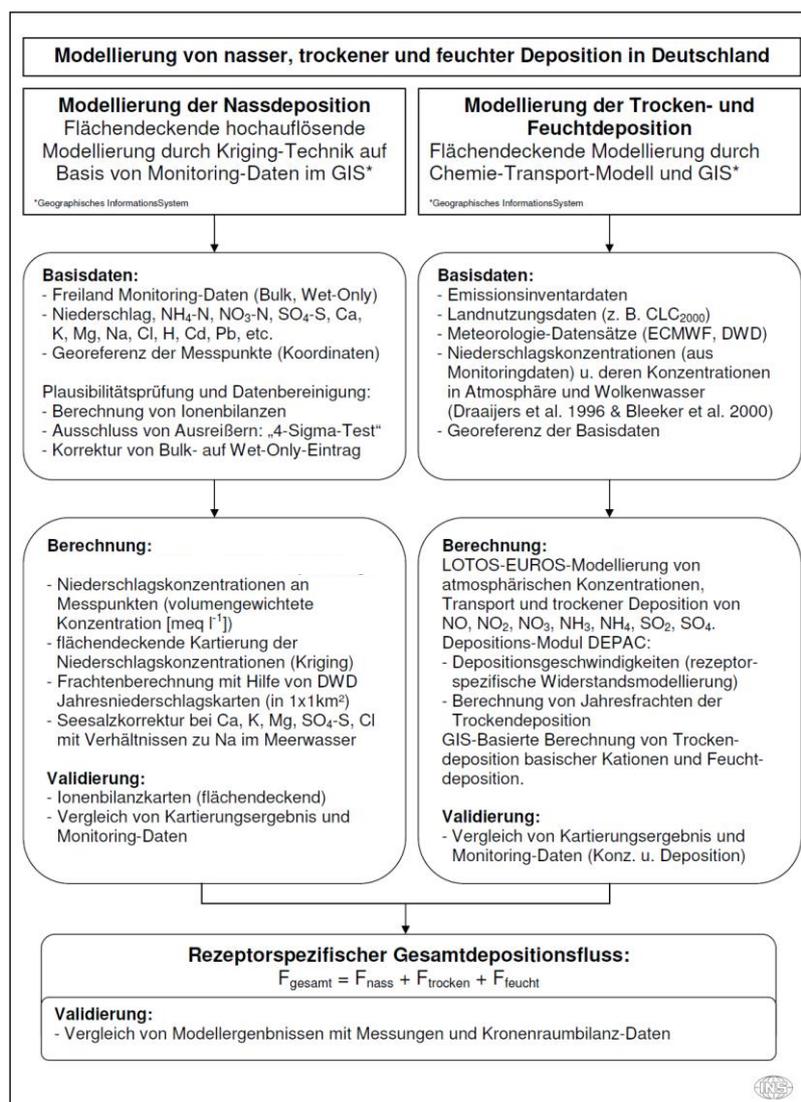


Abbildung 1: Modellierung der Gesamt-Deposition im BMU/UBA Projekt „Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland“ („MAPESI“)

Für das Gebiet der Bundesrepublik Deutschland liegt ein ausreichend flächenrepräsentatives Messnetz für die Kartierung der Nass-Deposition vor. Trockene und feuchte Deposition (und damit auch Gesamtdeposition) jedoch werden nur selten in episodischen Messkampagnen und nur an einzelnen wenigen Orten erfasst.

Für standörtliche Abschätzungen der Gesamtdeposition in Waldökosysteme sind Bestandesdepositionsmessungen in Verbindung mit Kronenraumbilanzen (KRB, z.B. nach ULRICH 1994 oder nach der Modifikation von DRAAIJERS 1995) unter bestimmten Voraussetzungen geeignet. Die Berechnung von Kronenraumbilanzen sind notwendig, da die Vergleichsgröße für Critical Loads nicht der gemessene Stofffluss zum Boden sondern die Gesamtdeposition in das Ökosystem (Bestandesdeposition = Stofffluss in Kronentraufe + Stammablauf) ist. Auswaschung (engl. leaching) oder Aufnahme im Kronenraum können nämlich Stoffflüsse in der Pflanze oder im Boden (z.B. Exkretion und/oder Wurzel Aufnahme von Kalium) stark beeinflussen. Regelmäßige Kronentraufen- und Stammabflussmessungen werden in Deutschland seit deutlich mehr als einem Jahrzehnt vor

allem von Forstlichen Forschungs- und Versuchsinstitutionen der Länder u. a. an den über 80 ICP Forest Level II Stationen durchgeführt (vgl. www.icp-forests.org).

Die Gesamtdeposition in Wälder ist wegen deren großer Oberfläche, Höhe und Rauigkeit systematisch höher als diejenige in andere, weniger strukturierte Ökosysteme. Die Größe dieses „Filter-“ oder „Auskämm-Effektes“ ist auch wesentlich von den gegebenen atmosphärischen Konzentrationen und von den herrschenden meteorologischen Verhältnissen (Windgeschwindigkeiten, Feuchte, etc.) abhängig, die den Transport zur Rezeptoroberfläche bestimmen. Die räumliche Variabilität dieser Parameter ist weitgehend unabhängig von der räumlichen Struktur der Landnutzung. Das räumliche Muster der Eintragsraten der Nass-Deposition ist generell unterschiedlich zu derjenigen der Trocken- und Feucht-Deposition. Die Trocken- und Feucht-Deposition steuernden Prozesse sind weitgehend unabhängig von den Prozessen, die die Nass-Deposition bestimmen. Folglich können Bestandesdepositionsmessungen in Waldökosystemen nicht durch Multiplikation von Nass-Depositionsraten mit konstanten „Anreicherungsfaktoren“ (Verhältnisse zwischen Bestandes- und Nass-Deposition) räumlich übertragen werden (ECE 1996, LÖVBLAD et al. 1993, ERISMAN und DRAAIJERS 1995). Angesichts der Verfügbarkeit von Chemie-Transport-Modellen (CTM; auch als „Inferentialmodelle“ bezeichnet), die die Unabhängigkeit von Trocken- und Nass-Deposition berücksichtigen, ist eine Anwendung von Anreicherungsfaktoren auch nicht notwendig. Kronenraumbilanzierte Bestandesdepositionsmessungen in Waldökosystemen werden standortweise als Vergleichswerte für die Ergebnisse der Modellierung und Kartierung der Gesamtdeposition benutzt.

Wie schon bei vorausgegangenen Projekten (GAUGER ET AL. 2000, 2002, 2008) folgt die Methodologie im „MAPESI“-Projekt bei der kleinräumigen, flächendeckenden Modellierung und Kartierung der Gesamtdeposition und Critical Loads-Überschreitung dem viel versprechenden und international empfohlenen Modell-Ansatz (LÖVBLAD et al. 1993, HICKS et al. 1993, ICP MODELLING & MAPPING 1996, 2004), der zeitlich hoch aufgelöste CTM Berechnungen auf Grundlage von Emissionsmodellergebnissen einerseits und depositionsnetzgestützte kleinräumige GIS-Modellierung andererseits kombiniert (s. Abb. 1):

- Die Nass-Deposition der Hauptkomponenten im Niederschlag SO_4-S , NO_3-N , NH_4-N , Ca , K , Mg , Na , Cl , H und der Schwermetalle Cd und Pb wird in einer GIS Modellierung auf der Basis von Daten des Depositionsmonitoring und DWD Modelldaten des Niederschlags der erforderlichen räumlich hohen Auflösung berechnet
- Ergebnisse der CTM LOTOS-EUROS Berechnungen der Trocken-Deposition der Stickstoff- (NH_x-N , NO_y-N) und Schwefelverbindungen (SO_x-S) sowie für die Schwermetalle Cd und Pb werden übernommen und durch ein massenkonstantes post-processing in GIS basierter Modellierung in der erforderlichen flächentreuen metrischen Projektion und räumlich hohen Auflösung aufbereitet
- Die Trocken-Deposition von basischen Kationen (Ca , K , Mg , Na) werden durch GIS Modellierung nach dem ‚Scavenging Ratio Ansatz‘ nach Draaijers et al. 1996 auf der Basis von Daten des Depositionsmonitoring (Niederschlagskonzentrationen) mit Depositionsgeschwindigkeiten für Partikel aus LOTOS-EUROS CTM-Berechnungen in der erforderlichen räumlich hohen Auflösung aufbereitet
- Die Feucht-Deposition von Stickstoff- (NH_x-N , NO_y-N), Schwefelverbindungen (SO_x-S), der basischen Kationen (Ca , K , Mg , Na) und von Chlor (Cl) wird nach dem Ansatz von Bleeker et al.

2000 mittels GIS Modellierung auf der Basis von Daten des Depositionsmonitoring (Niederschlagskonzentrationen), von Depositionsgeschwindigkeiten für (feuchte) Partikel aus LOTOS-EUROS CTM-Berechnungen und dem DWD Wolkenwassergehalt der Atmosphäre für Gebiete einer Höhenlage oberhalb 250 m berechnet

Die erfassten Spezies, für die Gesamt-Depositionsfrachten an Wald-Standorten zur Verfügung gestellt werden können, sind somit:

Natrium (Na), Calcium (Ca, Ca_{nss}), Magnesium (Mg, Mg_{nss}), Kalium (K, K_{nss}), Chlorid (Cl, Cl_{nss}), freie Protonen in der Nassdeposition (H), Stickstoff oxidierter Stickstoffverbindungen ($NO_Y-N=NO+NO_2+NO_3+HNO_3$), Stickstoff reduzierter Stickstoffverbindungen ($NH_X-N=NH_3-N+NH_4-N$), Schwefel oxidierter Schwefelverbindungen ($S_{nss}=SO_X-S_{nss}=SO_2-S+SO_4-S$). Die Summe der Stickstoff-Verbindungen wird als Gesamt-Stickstoff bezeichnet ($N=NO_Y-N+NH_X-N$), potentielle Säure ist die Summe aus Schwefel und Stickstoffverbindungen ($AC_{pot}=S_{nss}+N$), als potentielle Netto-Säure wird der Eintrag von potentieller Säure abzüglich des Eintrags von Basischen Kationen bezeichnet ($AC_{potnet}=AC_{pot}-(Ca_{nss}+K_{nss}+Mg_{nss})$).

Für Spezies, die meeresbürtige Anteile besitzen (Ca, K, Mg, Cl, SO_4-S), wird eine Seesalzkorrektur berechnet. Die so berechneten Nicht-Seesalz Depositionsflüsse (Ca_{nss} , K_{nss} , Mg_{nss} , Cl_{nss} , SO_4-S_{nss}) sind überwiegend anthropogenen Emissionsprozessen zuzuordnen. Da die Modellierung mit dem CTM LOTOS-EUROS Modell für die Berechnung von Schwefel- und Stickstoff-Tockendepositionsflüssen auf den Eingangsdaten von nationalen Emissionsinventaren beruht, und diese i.d.R. nur anthropogene Quellen erfassen, liegen nur Modellierungsergebnisse zur Trocken-Deposition von anthropogen emittierten Schwefelverbindungen vor. Deshalb erfolgt die Berechnung der Schwefel Gesamt-Deposition und aller weiteren Summen nur mit der seesalzkorrigierten Nass- und Feucht-Deposition von oxidiertem Schwefel. Für Chloride (Cl), erfolgt aufgrund mangelnder Emissionsdaten keine Berechnung der Trocken-Deposition. Anthropogener Cl wird i.d.R. in sehr geringer Menge lokal als HCl emittiert. Die Nass- und Feucht-Deposition von seesalzkorrigiertem Chlor (Cl_{nss}) gilt hierfür als eine ausreichend gute Annäherung.

Die Berechnung und Datenzusammenstellung erfolgt für die Bezugsjahre 2004, 2005, 2006, 2007.

Die Berechnung der Trockenen Deposition des Jahres 2004 wurde zu Vergleichszwecken mit dem vorherigen Projekt mit den selben Emissionsdaten berechnet. Die entsprechenden Eingangsdaten der Jahre 2005 bis 2007 beruhen auf aktuelleren Emissionsdaten aus dem „PAREST-Projekt“ (**Particle Reduction Strategies**, www.parest.de) des UBA.

Die Gesamtdeposition ist als Summe der betrachteten drei Teil-Depositionsflüsse zu berechnen:

Gesamtdeposition = Nasse Deposition + Trockene Deposition + Feuchte Deposition

1.2 Nasse Deposition

Betrachtete Spezies der Modellierung und Kartierung der Nassen Deposition sind:

Calcium (*Ca*), Chlorid (*Cl*), Kalium (*K*), Magnesium (*Mg*), Natrium (*Na*), freie Protonen (*H*), Ammonium-Stickstoff (NH_4-N), Nitrat-Stickstoff (NO_3-N), Gesamt-Stickstoff (*N*) als Summe von Ammonium- und Nitrat-Stickstoff ($N = NH_4-N + NO_3-N$), Sulfat-Schwefel (SO_4-S) sowie die um deren jeweiligen Seesalzanteil verminderten nicht-seesalz (nss) Spezies (Ca_{nss} , Cl_{nss} , K_{nss} , Mg_{nss} , SO_4-S_{nss}). Neben der Modellierung und Kartierung dieser Hauptkomponenten im Niederschlag erfolgt auch die Bearbeitung der Schwermetalle Cadmium und (*Cd*) und Blei (*Pb*).

Die Nasse Deposition ist rezeptorunabhängig. Bestimmende Prozesse für die Konzentration einzelner Spezies im Niederschlag sind die Befruchtung der Tropfen mit Spezies aus der Atmosphäre in der Regenwolke vor dem Niederschlagsereignis (in-cloud scavenging), und die Auswaschung von Spezies durch den fallenden Niederschlag aus der Atmosphäre während des Niederschlagsereignisses (below-cloud scavenging). Der flächenbezogene Eintrag der Nass-Deposition lässt sich aus flächenhaft berechneter Niederschlagsmenge und flächenhaft berechneter Konzentration im Niederschlag bestimmen.

Die Datengrundlagen der im Forschungsvorhaben BMU/UBA 3707 64 200 berechneten 1x1km² Raster-Karten sind, wie schon in früheren BMU/UBA Forschungsprojekten (GAUGER ET AL. 1997, 2000, 2002, 2005, 2008), Freiland-Daten des Depositionsmonitoring in Deutschland einschließlich einiger Stationen in grenznaher Lage im benachbarten Ausland (A, CZ, P). Wesentliche dauerhaft eingerichtete Routine-Messnetze in Deutschland sind die Messnetze des Forstlichen Monitoring in den einzelnen Bundesländern (Forst Level II und weitere Stationen), außerdem Messnetze des Immissionsschutzes und ggf. der Wasserwirtschaft sowie Messungen weiterer Forschungsinstitutionen. Die Daten (Jahresfrachten, Niederschlagsmengen, Niederschlagskonzentrationen) werden bei den Messnetzbetreibern angefragt und nach der Datenbereitstellung in einer Datenbank am Institut für Navigation der Universität Stuttgart aufbereitet und gespeichert.

1.2.1 Datenakquisition zur Kartierung der Nassdeposition

Grundlage für die Modellierung und Kartierung der nassen Deposition in Deutschland sind Messungen der Inhaltsstoffe des Freilandniederschlages. Die Datenbasis sind Jahresfrachten der Hauptinhaltsstoffe und Spurenstoffe im Niederschlag, angegeben in $kg\ ha^{-1}\cdot a^{-1}$ bzw. $g\ ha^{-1}\cdot a^{-1}$. Lagekoordinaten der zugehörigen Messpunkte (geographische Koordinaten und/oder Gauß-Krüger Koordinaten), werden gemeinsam mit weiteren Informationen über Messungen und Messstationen (Lageinformationen, Exposition, Messnetzbetreiber, Messbeginn und –ende, verwendete Sammler

etc.) verwaltet. In gleicher Weise erfolgt die Speicherung der Jahresfrachten der Deposition in Laub- und Nadelwaldbestände, die in erster Linie zum Zweck der Validierung der Kartierungsergebnisse der Trocken- und Gesamtdeposition benötigt werden. Zusätzlich werden für die Bestandesdeposition (Kronentraufen und ggf. Stammabfluss, bzw. als Summe beider „Walddeposition“) Informationen zum Baumbestand (Baumarten, Baumalter und -höhen) in die Datenbank aufgenommen. Die Datenhaltung erfolgt in Tabellen des Programms Microsoft Excel.

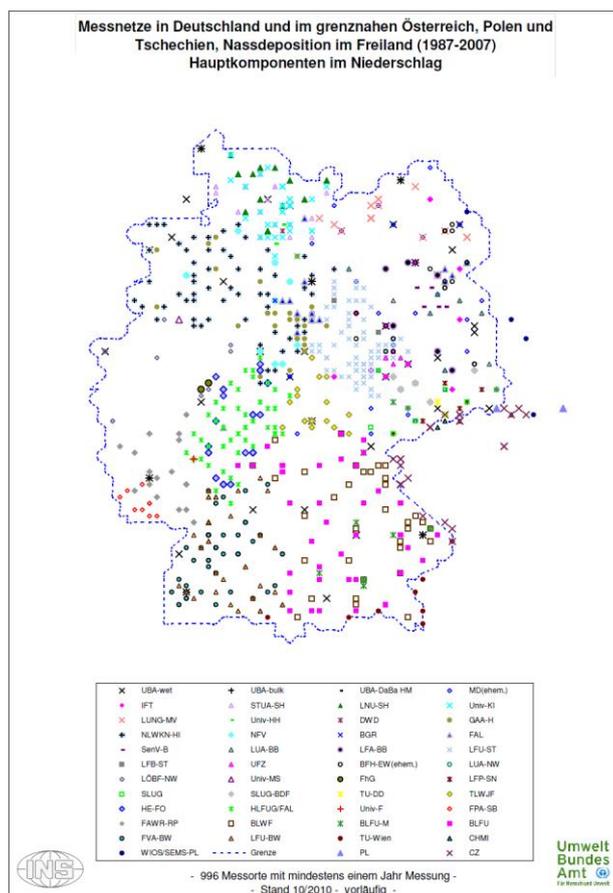


Abbildung 2: Verteilung der Messorte der Freiland-Deposition der Hauptkomponenten im Niederschlag in den Messnetzen in Deutschland, einschließlich grenznaher österreichischer, polnischer und tschechischer Messstationen (Stand 10/2010)

In Abbildung 2 ist die Lage der in der Depositions-Datenbank erfassten Messorte aller Messnetze in Deutschland einschließlich grenznaher österreichischer, polnischer und tschechischer Messstationen dargestellt, für die für die Hauptkomponenten im Niederschlag mindestens ein vollständiges Jahr aus dem Zeitraum 1987 bis 2007 geliefert ist. Abbildung 3 zeigt die Verteilung der Cadmium (Cd) und Blei (Pb) Depositions-Messungen im Freiland in den Jahren 2005 und 2007, die für die Kartierung der Nass-Deposition dieser Jahre verwendet werden konnten.



Abbildung 3: Verteilung der Messorte der Freiland-Deposition der Schwermetalle Cd und Pb 2005 und 2007 in den Messnetzen in Deutschland einschließlich grenznaher tschechischer Messstationen (Stand 10/2010)

1.2.2 Datenakquisition – Aktualisierung der Depositionsdatenbank

Die Depositions-Datenbank beinhaltete zu Beginn des Forschungsprojektes die Niederschlagsanalysen aus ca. 40 Messnetzen des Depositions-Monitoring in Deutschland, dem angrenzenden Österreich und Tschechien in den Jahren ab Beginn der Messungen bis einschließlich

2004 (vgl. Abbildung 1). Die Aktualisierung des Datenbestandes betrifft im Wesentlichen die sich zeitlich anschließenden Jahre 2005 bis einschließlich 2007, zum Teil konnten auch Ergänzungen (z.B. für Schwermetalle) oder Korrekturen von früher bereits gelieferten Daten für vorangegangene Jahre aufgenommen werden.

Für die Datenbasis zur Kartierung von Eintragsraten von Luftinhaltsstoffen werden folgende Depositionsdaten angefragt:

- aus *Freiland-* bzw. Freiflächenmessungen *und* ggf. Messungen der *Bestandesdeposition* in Nadel-, Laub- und Mischwäldern
- aus dem Zeitraum seit Beginn der Messungen bis zum aktuellsten Jahr der Datenaufbereitung, bzw. möglichst vollständig im *Zeitraum 1986 bis 2007*
- als *Jahresfrachten* bzw. Jahressummen (Konzentrationen und Niederschlagshöhen), welchen möglichst vollständige Probenreihen zugrundeliegen (12 Monate; hydrologisches oder bürgerliches Jahr) oder als Daten geringerer zeitlicher Auflösung, aus welchen Jahresfrachten berechnet werden können (z.B. Sommer- und Winterhalbjahre, Monatsfrachten etc.)
- aus Niederschlagsproben, die mittels *Wet-Only-Sammlern*, *Bulk-Sammlern* (Trichter-Flasche- oder Topfsammler) oder *Wet-And-Dry-Sammlern* bzw. mit speziellen Sammlern für den Stammabfluß (Stammanschetten und Kippschalen etc.) gewonnen wurden
- der *Hauptkomponenten im Niederschlag*: SO₄-S, NO₃-N, Cl, F, NH₄-N, Ca, K, Mg, Na, H
- der *Spurenmetalle und Metalloide*: Cd und Pb sofern analysiert (falls möglich auch Al, As, Br, Co, Cr, Cu, Fe, Hg, Mn, Mo, Ni, Si, Ti, V, Zn u. a.)
- der *organischen Spurenstoffe*: DOC, TOC u.a., Pflanzenschutzmittel, PCB, PAK, HKW u.a.
- der Messgrößen: *Niederschlagshöhe*, *pH*, *elektrische Leitfähigkeit*, sofern diese bestimmt worden sind
- sowie die *Stammdaten (Metadaten) der Messstationen* und *Informationen zur Messung*

In Abbildung 4 ist das Anwachsen des Gesamt-Datenbestandes im Projektzeitraum für alle wesentlichen Komponenten in der Nassen Deposition im Freiland in Säulenpaaren dargestellt. Die Anzahl (n=) bezieht sich auf Jahreswerte von Niederschlagsmenge, Leitfähigkeit und pH, bzw. Jahresfrachten der Hauptkomponenten und Schwermetalle im Niederschlag. Insgesamt hat sich der Datenbestand innerhalb des Bearbeitungszeitraumes um ca. 27%, bzw. von 97.723 Daten auf 133.659 Daten vergrößert. Dabei handelt es sich neben der Einarbeitung der Daten aus dem Zeitraum 2005 bis 2007 in geringerem Umfang auch um ältere Daten bereits erfasster Stationen und/oder um Daten neu aufgenommener Stationen oder Messnetze. Besonders intensiv wurde die Aufnahme von Eintragsdaten von Blei und Cadmium sowie anderer Schwermetalle betrieben. Zu einem guten Teil sind dies Daten aus neu in die Datenbank aufgenommenen engmaschigen Messnetzen in wenigen Regionen (z.B. in ausgewiesenen Belastungsgebieten in Nordrhein-Westfalen). Dies hat das auffällige Wachstum der abgebildeten Datensäulen insbesondere von Blei, Cadmium, Nickel und Arsen während der Projektlaufzeit und die bei diesen Spezies verhältnismäßig große Datenanzahl in der Datenbank als Ursache.

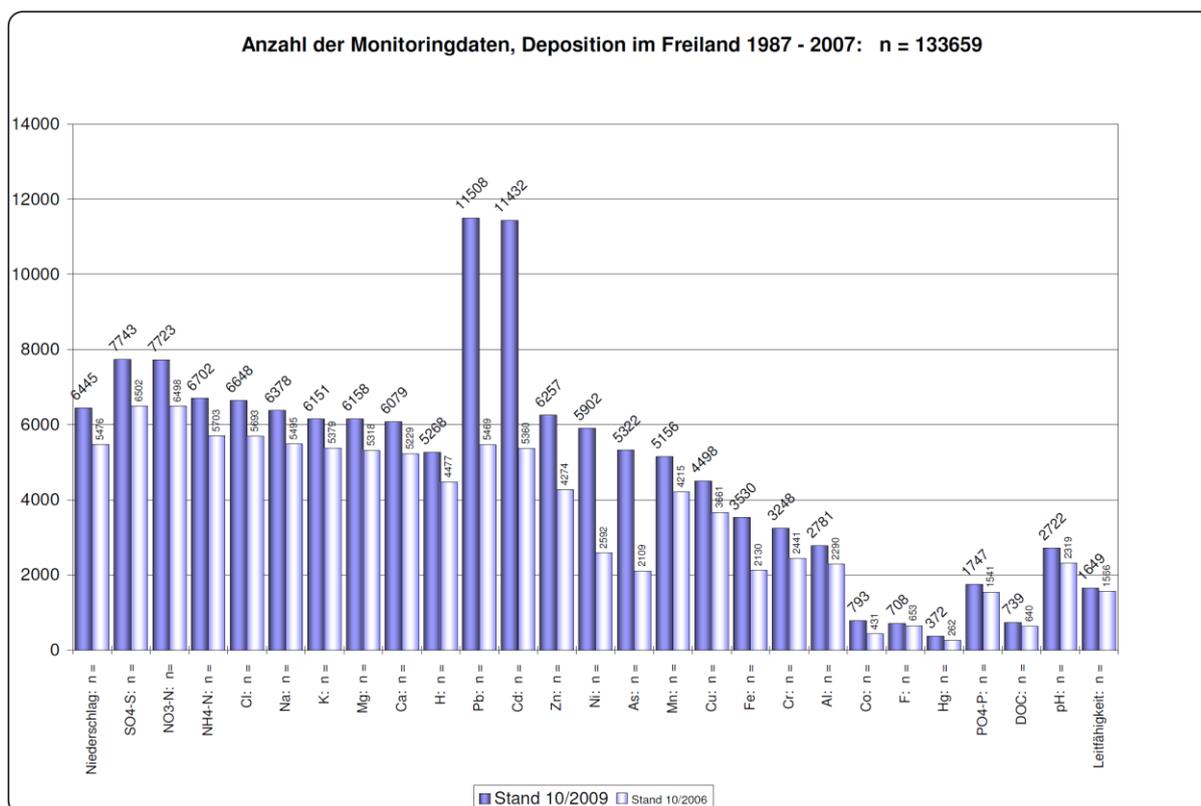


Abbildung 4: Datenbestand der Monitoringdaten der nassen Deposition im Freiland (Stand 10/2006: 1987-2004 und Stand 10/2009: 1987-2007)

1.2.3 Datenquellen der Modellierung der Nassdeposition

In der folgenden Tabelle 1 sind die Institutionen und Forschungseinrichtungen aufgelistet, die nach der erfolgten Recherche in Deutschland und dem grenznahen Österreich, Polen und Tschechien Depositionsmessungen durchführen und zur Einarbeitung in die Depositionsdatenbank Daten zur Verfügung gestellt, bzw. im Internet veröffentlicht haben. Weiterhin ist der Stand der Datenakquisition und Einarbeitung in die Datenbank gegen Ende des Forschungsauftrags vermerkt (Jahreszahl in der Spalte „aktuellster Datensatz“).

Tabelle 1: Betreiber von Depositionsmessungen in Deutschland, dem grenznahen Österreich, Tschechien und Polen, mit Angabe der wesentlichen Messkomponenten und der Aktualität der Daten (Stand: Oktober 2009)

Region	Institution	Kürzel	SO ₂	NO _x	NH ₃	Cl	Na	Ca	Mg	K	H	PO ₄	Pb	Cd	Ni	Fe	pH	Status: Freiland- monitoring	Status: Bestandes- monitoring	aktuellster Datensatz
Deutschland	Umweltbundesamt, Fg. II 6,5 Meßnetz-Datenzentrale; Langen	UBA-b (bulk)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	-	-	-	X	X	X	Messungen eingestellt	n. a.	2003
Deutschland	Umweltbundesamt, Fg. II 6.5; Meßnetz-Datenzentrale; Langen	UBA-w (wet-only)	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X	X	X	aktualisiert	n. a.	HK: 2007 HM: 2006
Ehem. DDR	Meteorologischer Dienst der DDR (via SLUG)	DDR-MD	X	X	-	X	X	X	X	X	X	-	-	-	X	-	-	Messungen eingestellt	n.a.	1990
Deutschland	Institut für Troposphärenforschung e.V., Abt. Chemie; Leipzig (ehem. Deutschlandweites Messnetz, sukzessive verkleinert)	IFT	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X			Messungen eingestellt	n. a.	2003
Deutschland	Umweltforschungszentrum Leipzig-Halle GmbH, Sektion Analytik; Leipzig	UFZ	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X	X	X	Messungen eingestellt	Messungen eingestellt	1994
Deutschland	Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft BS-Völknerode, Institut für agrarrelevante Klimaforschung; Müncheberg und Braunschweig; / FAL-IAO, Braunschweig	FAL	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	Messungen eingestellt	n.a.	1993, 1996
Deutschland	Bundesforschungsanstalt für Holz- und Forstwirtschaft; Eberswalde (Simon & Westendorff)	BFH-EB	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	Messungen eingestellt	Messungen eingestellt	1989
Deutschland	Bundesforschungsanstalt für Holz- und Forstwirtschaft; Eberswalde	BFH-EB	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	Akquisition erfolgrlos	Akquisition erfolgrlos	--
Deutschland	Johann Heinrich von Thünen-Institut Bundesforschungsinstitut für Ländliche Räume, Wald und Fischerei, Institut für Agrarrelevante Klimaforschung, vTI-AK (ehem. FAL-AOE); Braunschweig (Messnetz, sukzessive verkleinert)	vTI-AK (FAL-AOE)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	n.a.	2007
Schleswig-Holstein	Staatliches Umweltamt Itzehoe, Lufthygienische Überwachung Schleswig-Holstein (ehem. GAA-SH, Luftqualitätsüberwachung)	STUA-SH (GAA-SH)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	n.a.	2006
Schleswig-Holstein	Landesamt für Natur und Umwelt des Landes Schleswig-Holstein, Abteilung Gewässer; Flintbek	LANU-SH	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	n.a.	2007
Schleswig-Holstein	Christian-Albrechts-Universität Kiel, Ökologie-Zentrum (Jensen-Huß; Schimming; Spranger; Branding)	Univ. KI	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X			angefragt	angefragt	1989, 1990
Hamburg	Freie und Hansestadt Hamburg - Umweltbehörde, Amt für Naturschutz und Landschaftspflege / Universität Hamburg, Institut für Bodenkunde (W. Lux)	Univ. HH	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	Messungen eingestellt	Messungen eingestellt	1992
Hamburg	Deutscher Wetterdienst, Meteorologisches Observatorium Hohenpeißenberg	DWD	X	X	X	X									X	X	X	Messungen eingestellt	n.a.	1993
Mecklenburg-Vorpommern	Landesamt für Umwelt und Natur, Abt. Immissionsschutz; Güstrow-Gülzow (ehem. LUNG-MV)	LAUN-MV (LUNG-MV)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	n.a.	2007
Mecklenburg-Vorpommern	Landesamt für Forstplanung; Schwerin	LAFOP-MV	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	angefragt	angefragt	--
Niedersachsen	LÜN-Messnetz, GAA-HI, Dez. 43, Herr Dr. W. Günther (ehem. NLÖ, Dez.63, Dr. Giesen; Hannover); Hildesheim,	GAA-HI, (NLÖ-H)	X	X		X	X		X	X				X	X			aktualisiert	n.a.	2007
Niedersachsen	GÜN-Messnetz, Gewässerbewirtschaftung, Flussgebietsmanagement; Grundwasser, Frau A. Jankowski (ehem. NLÖ); Hildesheim	NLWKN (NLÖ-HI)	X	X	X	X	X		X						X			aktualisiert	aktualisiert	2007
Niedersachsen	Nordwestdeutsche Forstliche Versuchsanstalt NW-FVA (ehem. NFVA); Abt. Umweltkontrolle; Göttingen	NW-FVA (NFVA)	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X	X	X	aktualisiert	aktualisiert	2007
Niedersachsen	Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe; Hannover (Franken et. al)	BGR	X	X	X	X	X	X	X	X					X			Messungen eingestellt	Messungen eingestellt	1995/1996
Brandenburg	Landesumweltamt Brandenburg, Potsdam	LUA-BB	X	X	X	X	X	X	X	X					X	X	X	aktualisiert	n.a.	2005
Brandenburg	Landesumweltamt Brandenburg, Cottbus	LUA-BB												X	X			aktualisiert (download)	n.a.	2007
Brandenburg	Landesanstalt für Forstplanung, Brandenburg; Eberswalde	LAFOP-BB																aktualisiert	aktualisiert	2005
Berlin	Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umweltschutz, Abt. III A 31; Berlin	SenV-B.	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	Messungen eingestellt	Messungen eingestellt	1998
Sachsen-Anhalt	Landesamt für Umweltschutz Sachsen-Anhalt; Halle (Immissionsschutzberichte)	LfU-ST										X	X					aktualisiert (download)	n.a.	2007
Sachsen-Anhalt	Landesamt für Umweltschutz Sachsen-Anhalt, Abt.5, Halle	LfU-ST	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X	X	X	aktualisiert (download)	n.a.	2007
Sachsen-Anhalt	Nordwestdeutsche Forstliche Versuchsanstalt NW-FVA (ehem. Forstliche Versuchs- und Forschungsanstalt; Flechtingen)	NW-FVA (LFB-ST FVA-ST)	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X			aktualisiert	aktualisiert	2007

Region	Institution	Kürzel	SO ₂	NO _x	NH ₃	Cl	Na	Ca	Mg	K	H	PO ₄	Pb	Cd	Nickel	Leitf.	pH	Status: Freiland- monitoring	Status: Bestandes- monitoring	aktuellster Datensatz	
			X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X				X
Nordrhein-Westfalen	Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW, Dez. Forstliches Umweltmonitoring (ehem. LÖBF/LAFAO-NW); Recklinghausen	LANUV-NW (LÖBF/LAFAO-NW)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert	aktualisiert	2007	
Nordrhein-Westfalen	Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW, Dez. / Fb. 31 (ehem. Landesanstalt für Umweltschutz, Fb. 32); Essen	LANUV-NW (LUA-NW)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert	n.a.	2007	
Nordrhein-Westfalen	Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW; Essen (Immissionsberichte)	LANUV-NW	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert (download)	n.a.	2007	
Nordrhein-Westfalen	Fraunhofer Gesellschaft für Umweltchemie und Ökotoxikologie, Schmallenberg, Grafschaft	FhG	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	Messungen eingestellt	n.a.	1988	
Nordrhein-Westfalen	Universität Münster, Inst. f. Didaktik d. Geographie, Münster	Univ-MS	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert	aktualisiert	2006	
Hessen	Nordwestdeutsche Forstliche Versuchsanstalt NW-FVA, Abt. Umweltkontrolle, SG 1 (ehem. HLFWW); Hannover-Münden	NW-FVA (HLFWW)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	aktualisiert	2007	
Hessen	Universität Frankfurt, Zentrum für Umweltforschung (ZUF)	Univ. F	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			Messungen eingestellt	Messungen eingestellt	1989	
Hessen	Hessische Landesanstalt für Umwelt und Geologie, Wiesbaden (Staubberichte)	HLUG											X	X				aktualisiert (download)	n. a.	2007	
Hessen	Hessische Landesanstalt für Umwelt und Geologie (Dämmgen et al. 2003)	HLFUG	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			(Weitere Messungen s. vTI-AK)	n. a.	„2001“	
Sachsen	Institut für Troposphärenforschung e.V., Abt. Chemie; Leipzig (Deutschlandweites Messnetz verkleinert)	IFT	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			Messungen eingestellt	n. a.	2003	
Sachsen	Sächsische Landesanstalt für Umwelt und Geologie, Radebeul	SLUG	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert	n. a.	2006	
Sachsen	Sächsische Landesanstalt für Umwelt und Geologie, Freiberg	SLUG						X	X	X			X	X				aktualisiert	n. a.	2002	
Sachsen	Staatsbetrieb Sachsenforst, Kompetenzzentrum Wald und Forstwirtschaft, Ref. 43, Pirna, OT Graupa (ehem. SLAF)	SBS-SMUL (SLAF)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	aktualisiert	HK: 2007 HM: 2006	
Sachsen	Technische Universität Dresden, Institut für Pflanzen- und Holzchemie; Tharandt	TU-DD	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	Messungen eingestellt	Messungen eingestellt	1996	
Thüringen	Thüringer Landesanstalt für Wald, Jagd und Fischerei, Ref. 42, Waldzustandsüberwachung (ehem. TLWF); Gotha	TLWJF (TLWF)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	aktualisiert	2007	
Thüringen	Thüringer Landesanstalt für Umwelt und Geologie; Jena (Immissionsberichte)	TLUG											X	X				aktualisiert (download)	n. a.	2006	
Rheinland-Pfalz	Forstliche Versuchsanstalt Rheinland-Pfalz, Abt. Waldschutz; Trippstadt	FVA-RP	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert (download)	aktualisiert (download)	2007	
Bayern	Bayerische Landesanstalt für Wald- und Forstwirtschaft, Abt. Forsthydrologie, Freising	BLWF	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert	aktualisiert	2007	
Bayern	Bayerische Landesanstalt für Umweltschutz, Ref. 16, Medientübergreifende Umweltbeobachtung; Aussenstelle Kulmbach	BLFU	X	X	X			X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	n. a.	2007	
Bayern	Landesamt für Umwelt, Ref 83; Hof (ehem. BLFW; München)	BLFW	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	aktualisiert	2006	
Bayern	Bayerische Landesanstalt für Geologie; Wunsiedel	BLFG	X	X	X													Noch kein Kontakt	n. a.	--	
Saarland	Landesamt für Umwelt- und Arbeitsschutz; Saarbrücken (Immissionsberichte)	LUA-SL											X	X				aktualisiert (download)	n. a.	2007	
Saarland	Landesamt für Umwelt- und Arbeitsschutz, Fb. 5.2, Bodenschutz und Waldökologie; Saarbrücken (ehem. FPA-SB, Duttweiler)	LUA-SL (FPA-SB)	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	späte Lieferung	späte Lieferung	1999	
Baden-Württemberg	Forstliche Versuchs- und Forschungsanstalt Baden-Württemberg; Freiburg i. B.	FVA-BW	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	aktualisiert	2007	
Baden-Württemberg	Landesamt für Umwelt, Messungen und Naturschutz Baden-Württemberg (ehem. LFU-BW, UMEG); Karlsruhe	LUBW (LFU-BW)	X	X		X									X			aktualisiert (download)	n. a.	2007	
Österreich	Technische Universität Wien, Institut für Analytische Chemie, Abt. Umweltanalytik	TU Wien	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	kein aktueller Kontakt	n.a.	1998	
Czech Republic	Czech Hydrometeorological Institute et al. (download)	CHMI	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert (download)	n. a.	2006	
Polen	Czech Hydrometeorological Institute et al. (download)	IMGW	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X			aktualisiert (download)	n. a.	2005	
Polen	Institute of Meteorology and Water Management, (IMGW), Wroclaw Branch Główny Inspektorat Ochrony Środowiska (GIOS), Departament Monitoringu	IMGW GIOS	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	X	aktualisiert	n. a.	2003	
Kursiv: Literaturquelle (= i.d.R. Monitoring aufgegeben)																		n.a.: nicht analysiert	--: keine Daten verfügbar		
																			HK: Hauptkomponenten	HM: Schwermetalle	

1.2.4 Pre-processing der Input-Daten und Modellierung der Nassdeposition

Die flächenhafte Kartierung der Nass-Deposition basiert vollständig auf Monitoringdaten und wird am Institut für Navigation der Universität Stuttgart (INS) modelliert. Die flächendeckende Modellierung von Konzentrationen im Niederschlag und der Nass-Depositionsfrachten erfolgt mithilfe eines Geographischen Informations-Systems (GIS: ArcGIS, ArcMap, ArcInfo).

Die Modellierung erfolgt in folgenden 6 Bearbeitungsschritten:

- (1) Pre-Processing der Inputdaten: gelieferte Daten der einzelnen Messstationen erhalten eine Kenn-Nummer (ID) und werden einheitlich aufbereitet, so dass sie für alle betrachteten Spezies als Niederschlagskonzentrationen [meq l^{-1}] vorliegen. Daten aus Bulk-Depositionsmessungen werden mit Hilfe von Korrekturfaktoren aus dem mittleren Verhältnis von bulk zu wet-only Eintrag, die in Parallelmessungen in Deutschland ermittelt wurden (GAUGER ET AL. 2000 und 2008), auf den nass deponierten Eintrag reduziert (Tabelle 2). Die Lage-Koordinaten werden einheitlich auf geographische Dezimalgrad umgerechnet. Zur Berechnung der Konzentration im Niederschlag [in meq l^{-1}] aus den Jahresfrachten [$\text{in kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$] werden primär die mitgelieferten Niederschlagsmengen verwendet. Sollten diese nicht vorliegen, wird auf die Jahresniederschläge des DWD ($1 \times 1 \text{ km}^2$ Rasterkarten, modelliert auf Basis von Messungen an über 3000 Hellmann-Niederschlagssammlern) am Koordinatenpunkt der Messstation zurückgegriffen. Die Unterschiede zwischen der DWD-Modellierten und der im Depositions-Monitoring gemessenen Niederschlagsmenge liegt an den Messpunkten in der Regel mehrheitlich innerhalb $\pm 10\%$, die mittlere Übereinstimmung bei Betrachtung aller Messpunkte liegt bei 91% bis 94%. Zur Identifizierung von unplausiblen Datenreihen werden Ionenbilanzen der Summen der Haupt-Anionen und -Kationen berechnet und in der Datenbank abgelegt; unplausible Datenreihen werden von der weiteren Bearbeitung ausgeschlossen (Ausschlusskriterium: Abweichung $> \pm 20\%$). Außerdem werden unplausibel hohe Werte („Ausreißer“) einzelner Spezies mit dem ‚4-Sigma-Test‘ identifiziert und ebenfalls von der weiteren Bearbeitung ausgeschlossen (Ausschlusskriterium: Werte $> \text{Mittelwert} + 4 \times \text{Standardabweichung}$ aller Daten). Das Verfahren ist ausführlich in GAUGER ET AL. 2008 beschrieben.
- (2) Die Daten werden in das GIS eingelesen und es werden Punkt-Karten generiert. Die Lage der Mess-Punkte ist durch die Koordinaten jeder Freiland-Messstation gegeben, die vorliegenden jährlichen Niederschlagskonzentrationen sind als Attribute (Werte) mit den Lagekoordinaten der Mess-Punkte über eine ID verknüpft.
- (3) Die mittlere Konzentration im Niederschlag wird für alle Datenpunkte innerhalb einer Fläche von $5 \times 5 \text{ km}^2$ berechnet (s. GAUGER ET AL. 2000, 2002): Daten von nah nebeneinander liegenden bzw. bei Parallelmessungen mit identischen Koordinaten gelieferten Messpunkten werden gemittelt und auf einen Punkt bezogen, um einerseits alle Information zu erhalten (identische Koordinaten führen zum automatischen Ausschluss der Daten beim Kriging) und

Tabelle 3: Verhältnisse von S, Cl, Ca, K, and Mg zu Na im Meerwasser [eq/eq] und Berechnung von nicht-Seesalz Einträgen (ICP MODELLING&MAPPING 2004)

Na_{sw}/Na_{sw}	Ca_{sw}/Na_{sw}	Mg_{sw}/Na_{sw}	K_{sw}/Na_{sw}	S_{sw}/Na_{sw}	Cl_{sw}/Na_{sw}
1	0,043	0,278	0,021	0,120	1,166
--	$Ca_{nss} = Ca_{dep} - (Na_{dep} \cdot 0,043)$	$Mg_{nss} = Mg_{dep} - (Na_{dep} \cdot 0,278)$	$K_{nss} = K_{dep} - (Na_{dep} \cdot 0,021)$	$S_{nss} = S_{dep} - (Na_{dep} \cdot 0,120)$	$Cl_{nss} = Cl_{dep} - (Na_{dep} \cdot 1,166)$

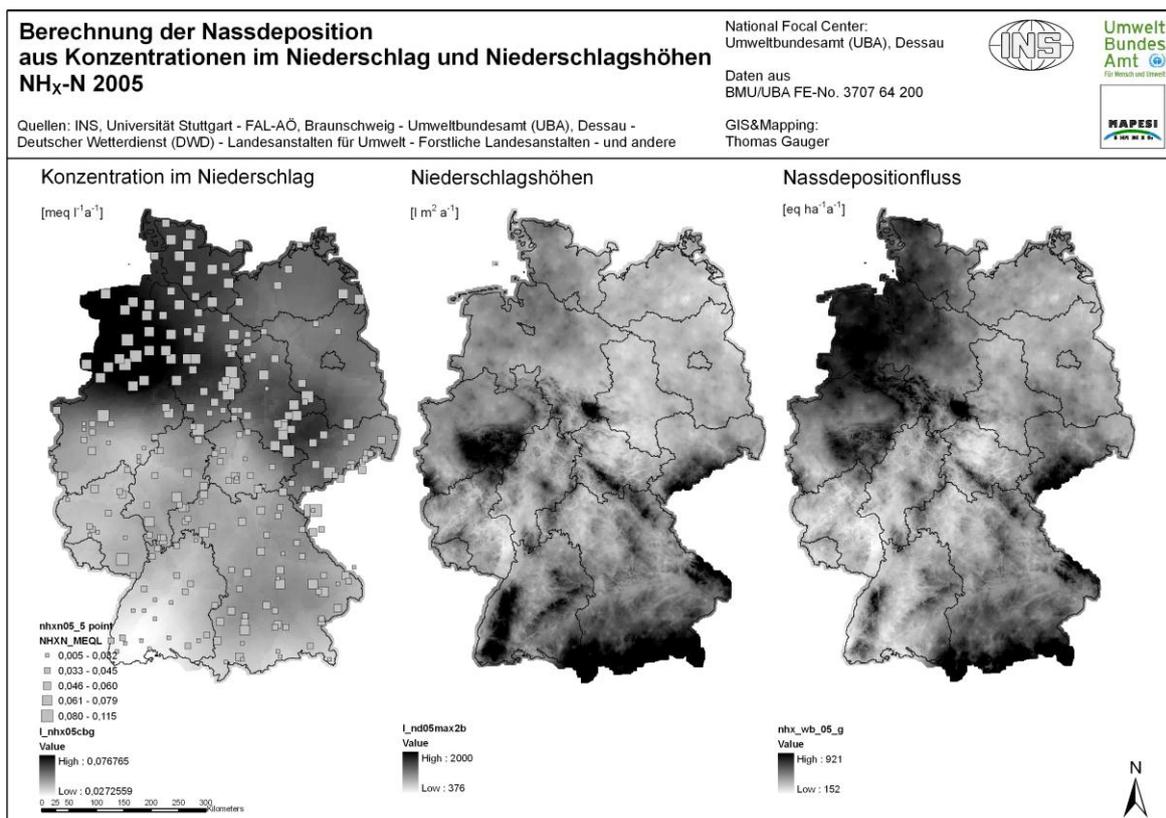


Abbildung 5: Illustration der flächenhaften Berechnung der Nass-Deposition (Bsp. NH_x-N 2005)

1.2.5 Qualitätssicherung und Fehlerdiskussion der Modellierung der Nass-Deposition

Die Validierung der Kartierungsergebnisse der Nass-Deposition erfolgt in der Regel in drei Schritten, durch

- (1) den Vergleich zwischen Kartenwerten und Monitoringdaten am Ort der Messpunkte
- (2) einen Konsistenztest, der durch die flächenhafte Berechnung der Ionenbilanz der Hauptkomponenten im Niederschlag erfolgt. Hierbei wird flächenhaft die Qualität der 1 x 1 km²-Raster-Datensätze geprüft
- (3) die Überprüfung des Kriging-Fehlers (vgl. GAUGER ET AL., 2000, 2008)

Der Vergleich zwischen Messwert aus dem Depositionsmonitoring und dem entsprechenden Rasterwert in der flächenhaft modellierten Karte der Konzentrationen im Niederschlag [meq l⁻¹] 2005 für die neun Hauptkomponenten im Niederschlag (*SO₄-S, NO₃-N, NH₄-N, Ca, K, Mg, H, Cl, Na*) ist in den Streudiagrammen der Abbildung 6 dargestellt, Parameter des Vergleiches für die Hauptkomponenten im Niederschlag der Jahre 2005 sind in Tabelle 4 angegeben. Dieser Vergleich gibt den Effekt der Kriging-Modellierung (Glättung der Daten bei der Erzeugung von Konzentrationsfeldern, durch Minimierung von Extremwerten) wider.

Als Größenordnung der Fehler bei der Messung sind etwa ±30 % zugrunde zu legen (DÄMMGEN ET AL. 2005, ERISMAN ET AL. 2003). Je höher die Variation der Messergebnisse innerhalb kurzer Distanz, das heißt u. a. je geringer die räumliche Gültigkeit der Messung ist, und je ungleichmäßiger die Messdaten über die Kartierungs-Fläche verteilt sind, desto größer sind die Nivellierungen durch die flächendeckende Modellberechnung und damit die Verhältnisse zwischen Mess- und Kartenwert.

Das Modellierungs- und Kartierungsergebnis liefert sehr gut übereinstimmende Ergebnisse. In Abbildung 6 bleibt folglich die Streuung der Werte um das Verhältnis 1:1 zwischen Mess- und Kartenwert sehr eng, die Trendlinien (lineare Regression in pink) decken sich weitestgehend mit der (gestrichelten) 1:1 Linie und die Korrelationen der Wertepaare sind hoch, was sich in Tabelle 4 durch die Pearson-Korrelationen (*r* zwischen 0,67 und 0,99) und die Regressionskoeffizienten (*R*² zwischen 0,45 und 0,99) ausdrückt.

Tabelle 4: Vergleich von Messwerten und Kartenwerten in 1x1km² Rasterfeldern der Modellierung, lineare Regressionen der Niederschlagskonzentrationen der Hauptkomponenten im Niederschlag 2005

2005	SO _x -S	NO _y -N	NH _x -N	Ca	K	Mg	H	Na	Cl
n	328	321	297	233	217	226	239	237	249
y=ax; a=	1,00	1,00	1,01	1,03	1,01	1,01	1,06	1,00	1,00
r	0,84	0,67	0,72	0,82	0,68	0,88	0,72	0,99	0,99
R ²	0,71	0,45	0,51	0,67	0,46	0,77	0,53	0,98	0,99

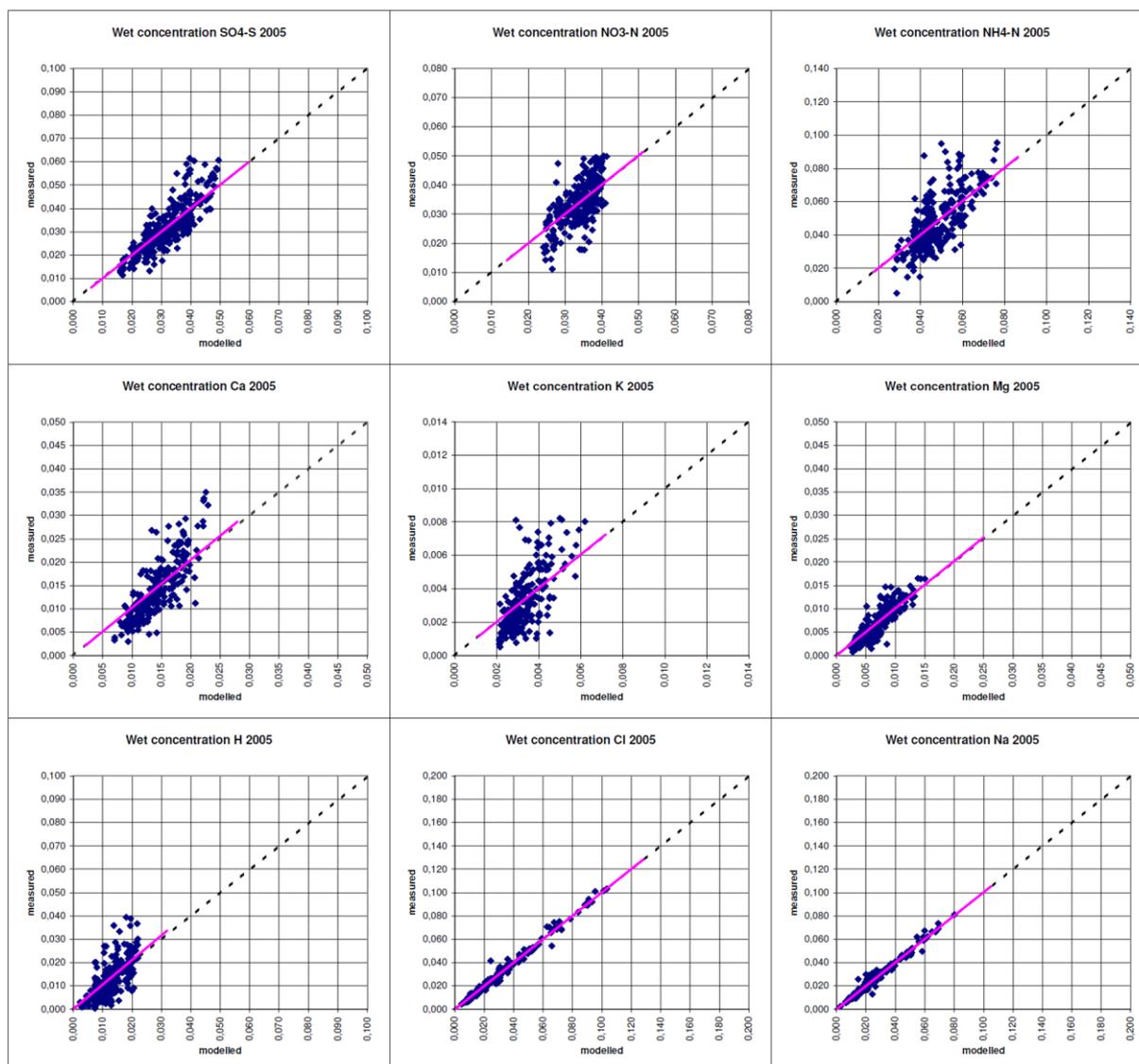


Abbildung 6: Vergleich von Karten- und Messwerten der Konzentrationen im Niederschlag 2005 [meq l⁻¹]

Ein weiterer Vergleich zwischen Messwert aus dem Depositionsmonitoring und dem entsprechenden Rasterwert in der flächenhaft modellierten Karte der Nass-Deposition 2005, also nach der multiplikativen Verschneidung der Niederschlagskonzentrationen mit der DWD-Niederschlagskarte, ebenfalls für die neun Hauptkomponenten im Niederschlag (SO_4-S , NO_3-N , NH_4-N , Ca , K , Mg , H , Cl , Na), ist in den Streudiagrammen der Abbildung 7 dargestellt. Die Parameter des Vergleiches für die Hauptkomponenten im Niederschlag der Jahre 2005 bis 2007 sind in Tabelle 5 angegeben. Dieser Vergleich spiegelt den Gesamt-Effekt der Berechnung wider, der sich aus dem processing der Input-Daten (vgl. Kapitel 1.2.4), der Kriging-Modellierung (s.o., Kriging-Fehler) und der Verschneidung mit Niederschlagsfeldern des DWD zur Frachten-Berechnung ergibt.

Das Modellierungs- und Kartierungsergebnis liefert auch hier noch gut übereinstimmende Ergebnisse. In Abbildung 7 bleibt folglich die Streuung der Werte um das Verhältnis 1:1 zwischen Mess- und Kartenwert auch noch recht eng und die Korrelationen der Wertepaare sind relativ hoch (vgl. Tabelle 5: $r > 0,52$).

Tabelle 5: Vergleich von Messwerten und Kartenwerten in 1x1km² Rasterfeldern der Modellierung, lineare Regressionen der Nassdepositions-Frachten der Hauptkomponenten im Niederschlag 2005, 2006 und 2007

2005	SO _x -S	NO _y -N	NH _x -N	Ca	K	Mg	H	Na	Cl
n	328	321	297	233	217	226	239	237	249
y=ax; a=	0,93	0,92	0,90	0,92	0,89	0,92	1,08	0,91	0,92
r	0,73	0,67	0,56	0,70	0,52	0,79	0,77	0,95	0,96
2006	SO _x -S	NO _y -N	NH _x -N	Ca	K	Mg	H	Na	Cl
n	352	351	306	244	231	241	239	246	263
y=ax; a=	0,89	0,84	0,83	0,98	0,86	0,96	1,08	0,99	0,99
r	0,59	0,48	0,42	0,68	0,26	0,80	0,75	0,97	0,97
R ²	0,35	0,23	0,18	0,46	0,07	0,65	0,56	0,94	0,94
2007	SO _x -S	NO _y -N	NH _x -N	Ca	K	Mg	H	Na	Cl
n	267	267	252	198	175	185	171	193	215
y=ax; a=	0,93	0,94	0,84	0,79	0,84	0,92	1,03	0,94	0,98
r	0,76	0,71	0,54	0,24	0,29	0,83	0,86	0,96	0,96
R ²	0,58	0,50	0,29	0,06	0,09	0,69	0,74	0,93	0,92

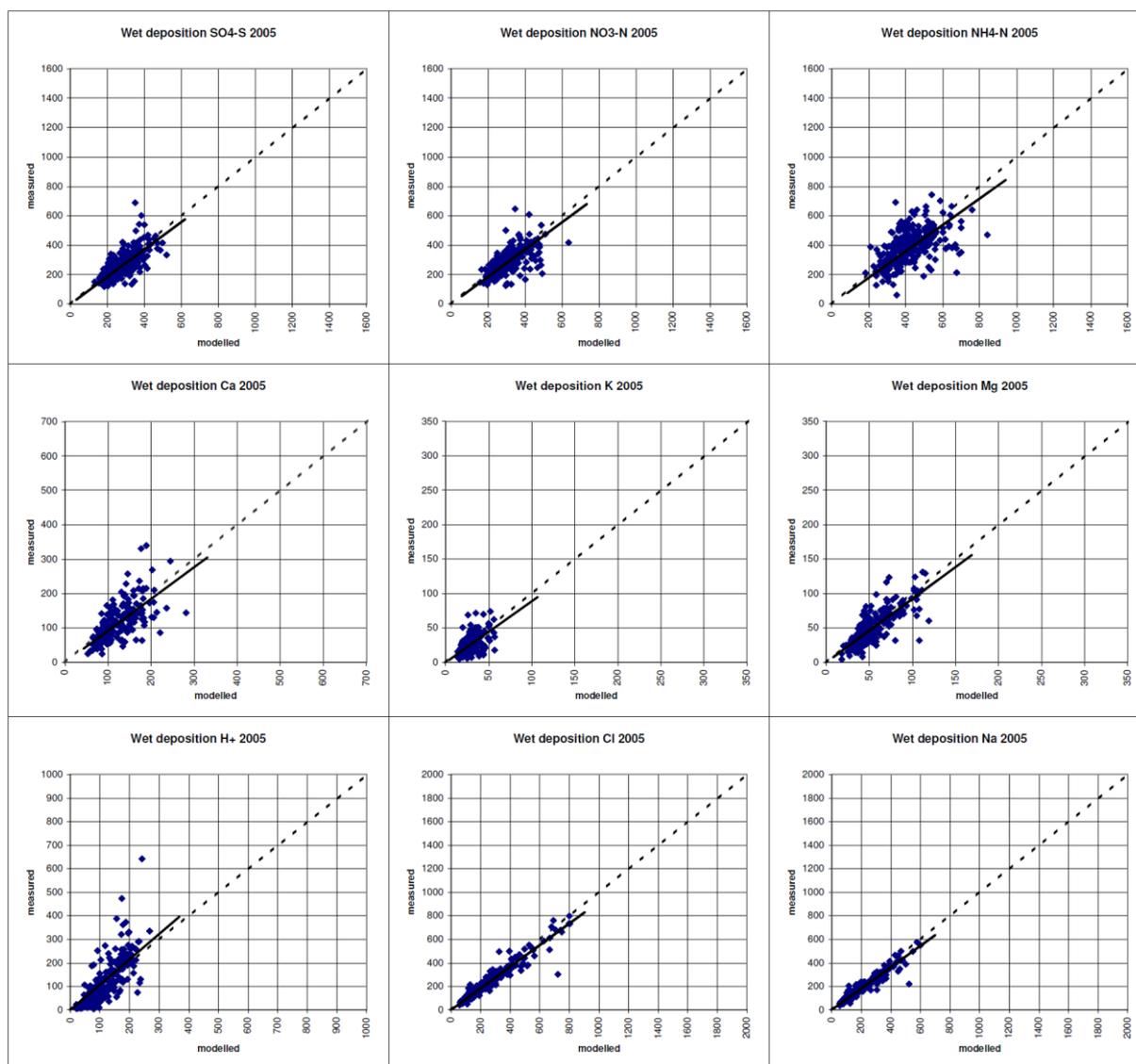


Abbildung 7: Vergleich von Karten- und Messwerten der nassen Depositionsfrachten im Jahr 2005 [eq ha⁻¹ a⁻¹]

Der Zusammenhang zwischen gemessenen Daten (Abbildungen 6, 7 ‚measured‘) und den Modellierungsergebnissen (Abbildungen 6, 7 ‚modelled‘) ist bei Betrachtung der Depositions-Frachten schwächer als beim anfangs dargestellten Vergleich der Niederschlagskonzentrationen. Zurückzuführen ist dies einerseits darauf, dass sich aufgrund des sog. Verdünnungseffektes bei zunehmend höheren Niederschlagsmengen die Fracht nicht durchgängig linear mit der Niederschlagsmenge erhöht. Ferner bestehen deutliche Unterschiede bei den einzelnen Spezies hinsichtlich der Korrelation zwischen Niederschlagsmenge und Konzentrationen (vgl. DÄMMGEN ET AL. 2006) und damit auch zwischen Niederschlagskonzentration und Nassdepositions-Fracht. Die Niederschlagsbestimmung bei der Probennahme im Monitoring führt zu Ergebnissen, die vom ausgewiesenen Niederschlag der DWD-Karte abweichen (s. o. Kap. 1.1 Nasse Deposition). Analysen bei der Verfahrensentwicklung der flächendeckenden Modellierung und Kartierung der Nass-Deposition haben allerdings ergeben, dass die Kriging-Modellierung der Konzentrationen und anschließende Frachtenberechnung mit den flächendeckenden hoch aufgelösten Niederschlagskarten des DWD zu deutlich besseren Ergebnissen führt, als die direkte flächenhafte Kriging-Modellierung von gemessenen Depositions-Frachten (GAUGER ET AL. 1997). Dies liegt daran, dass die horizontale Variation des Niederschlags in der Regel deutlich höher ist als diejenige der Spezies-Konzentration im Niederschlag. Außerdem unterliegt die Bestimmung von Nassdepositions-Frachten mit de facto regional nicht ganz einheitlichen Verfahren des Monitoring (Unterschiede z.B. bei Sammlertypen, Probennamezeiten, Analyse und Niederschlagsbestimmung) Unsicherheiten, die bei einheitlichen Verfahren bereits in der Größenordnung von etwa $\pm 30\%$ liegen (DÄMMGEN ET AL. 2005, ERISMAN ET AL. 2003) und beim angewendeten deutschlandweit einheitlichen Modellierungs- und Kartierungsverfahren nicht größer sind oder sogar unterschritten werden. Das flächendeckende Ergebnis den angewendeten Kartierungsverfahrens der Nass-Deposition kann bei den Hauptkomponenten im Niederschlag somit als hinreichend belastbar und den Ergebnissen des nur punktuell verfügbaren Depositionsmonitoring gleichwertig eingestuft werden.

Die Analyse der prozentualen Ionenungleichgewichte in den Rastern der flächenhaften Verteilung (vgl. Abbildung 7) zeigt den Einfluss von Ausgangsdatenqualität und räumlicher Messdatendichte für die einzelnen Komponenten. Die Darstellung basiert auf der Verrechnung der Flächendaten nach *Formel 1*, ohne jedoch zwischen positiven und negativen Ungleichgewichten (Kationen-, Anionendefizite) zu unterscheiden. Die Karten der prozentualen Ionenungleichgewichte entsprechen einem Test der Konsistenz der flächenhaften Schätzung der Karten für die Hauptkomponenten im Niederschlag. D.h. die räumliche Variation von Unsicherheiten, die auf der Anwendung des einheitlichen Kartierungsverfahrens auf mit möglicherweise uneinheitlicher Qualität erhobenen Inputdaten oder Messdaten unterschiedlicher räumlicher Repräsentativität beruht, wird dargestellt. Die Ionenbilanzkarten der Jahre 2004 bis 2007 sind in Abbildung 8 dargestellt.

$$\text{Ionenungleichgewicht} [\%] = \frac{(\text{NH}_4^+ + \text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+} + \text{K}^+ + \text{Na}^+ + \text{H}^+) - (\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- + \text{Cl}^-)}{(\text{NH}_4^+ + \text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+} + \text{K}^+ + \text{Na}^+ + \text{H}^+) + (\text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^- + \text{Cl}^-)} \cdot 100 \quad [\text{in } eq] \quad \text{Formel 1}$$

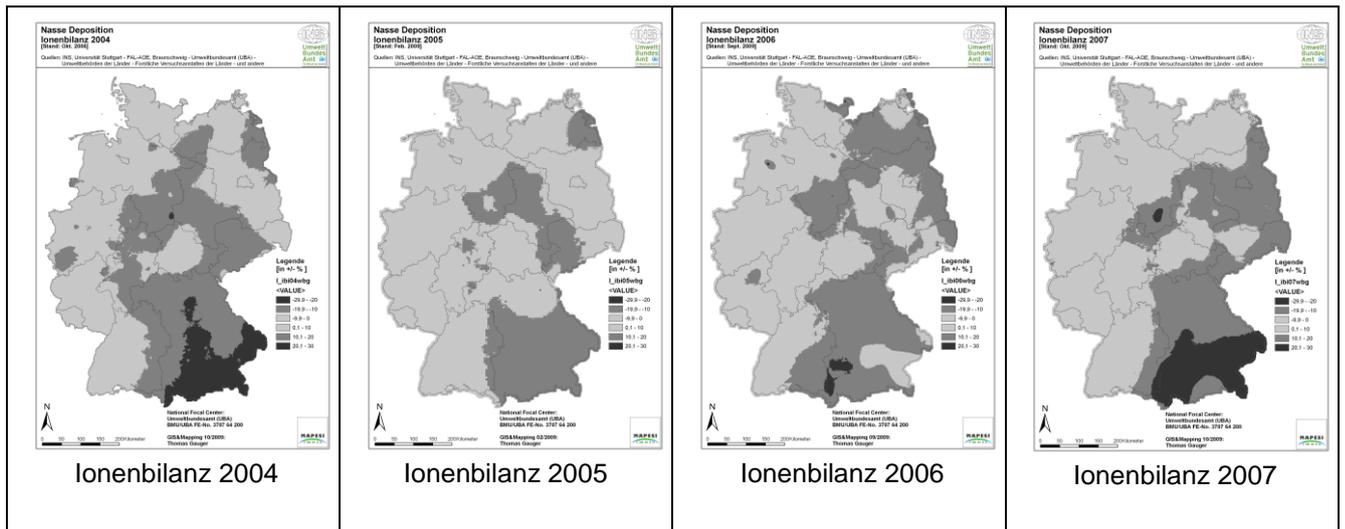


Abbildung 8: Ionenbilanz der Ergebnisse der Modellierung der Nass-Deposition 2004 – 2007

Die Ungleichgewichte in der Ionenbilanz liegen für den überwiegenden Teil der Fläche Deutschlands in allen betrachteten Jahren unter 10% (helles Grau in Abbildung 8). Im Süden, in der Mitte und im Osten Deutschlands treten Regionen mit einem Ionenungleichgewicht zwischen 10% und 20% auf (dunkles Grau in Abbildung 8). In Süd und Ostdeutschland deckt dieser Wertebereich meist ein größeres zusammenhängendes Gebiet ab und in 2004, 2006 und 2007 sind hier teilweise auch größere Gebiete mit einem Ionenungleichgewicht von über 20% zu beobachten (schwarz-grau in Abbildung 8), ebenso in den beiden Jahren 2004 und 2007 auf einer kleinen Fläche in Südostniedersachsen.

Der Fehler des Interpolationsverfahrens lässt sich flächenhaft als Schätzfehler angeben. Die Werte jeder 1x1km² Rasterzelle werden bei der Kriging-Interpolation aus einer bestimmten Anzahl benachbarter Messwerte aufgrund ihres Abstandes zueinander und ihres Wertebereichs geschätzt. Die Schätzung wird einerseits mit zunehmender Distanz zu den Messwert-Punkten unsicherer, andererseits vergrößert sich die Unsicherheit des Schätzwertes bei Rasterzellen, die aus Messungen mit untereinander stark variierenden Werten geschätzt werden. Schließlich hat die räumliche Anordnung und Dichte der Messwerte einen Einfluss auf die Schätzgenauigkeit, da räumliche Muster nur insoweit realitätsnah durch die Geostatistische Modellierung wiedergegeben werden können, wenn sie ausreichend in den Messwerten repräsentiert sind. Gleichmäßig verteilte engmaschige Messnetze minimieren den Schätzfehler, während mit nur wenigen Messungen abgedeckte Gebiete, räumlich unregelmäßig verteilte oder unregelmäßig gehäufte Messstationen (räumlich geclusterte Messwerte) zu weniger zuverlässigen Interpolationsergebnissen führen.

Der Schätzfehler wird als Krigevarianz angegeben, d.h. als durch die Schätzung bedingte Varianz der Werte jeder Rasterzelle. Unter der Annahme normal verteilter Schätzfehler lässt sich die Schätzgenauigkeit als Wertebereich oder prozentualer Fehlerwert (Streuungsmaß) für jede Rasterzelle bestimmen. Die Berechnung des Standardfehlers ($\sigma(\theta)$) erfolgt als die Wurzel der

Kriging-Varianz (θ), also als Standardabweichung der Schätzfunktion:

$$\sigma(\theta) = (\text{Wurzel}\{\theta\}) \quad [\pm \%]$$

Formel 2

In Abbildung 9 ist die Auswertung der prozentualen Interpolationsfehler der Konzentrationen im Niederschlag für die neun Hauptkomponenten 2005 dargestellt. Dunkle Bereiche in der Kartendarstellung geben Regionen mit einer größeren Streuung der Schätzwerte (höhere Schätzfehler) wider, in hellen Bereichen der Abbildung liefert die Interpolation sicherere Schätzwerte.

Die Ungenauigkeit der Schätzung ist bei relativ niedrigen Werten höher als bei über größere Gebiete des Kartierungsgebietes mehr oder weniger gleichmäßig hohen Werten. Damit hat auch die absolute Höhe gemeinsam mit der gesamten Wertespanne (Range) der verwendeten Messwerte eine gewisse Bedeutung für die ermittelte Schätzgenauigkeit. Deutlich wird dies bei Na und Cl, den ganz überwiegend aus Seesalz stammenden Spezies mit höchsten Niederschlagskonzentrationen im nahen Hinterland der Deutschen Bucht und geringsten Konzentrations-Werten in weiter Entfernung zur Küste.

Es ergeben sich für die Schätzung der $\text{SO}_x\text{-S}$ -, $\text{NH}_x\text{-N}$ - und $\text{NO}_y\text{-N}$ -Konzentrationen im Niederschlag in 2005 bei einem Vertrauensbereich von 68% Unsicherheiten in einer Spanne zwischen etwa $\pm 15\%$ und $\pm 54\%$ (vgl. Legendenwerte in den dargestellten Karten in Abbildung 9). Die Mittelwerte der prozentualen Schätzfehler für 2005 sind ebenfalls in den Legenden der Karten in Abbildung 9 angegeben und in Tabelle 6 für 2004 bis 2007 aufgelistet.

Die ermittelten Schätzfehler sind ein qualitatives Gütemaß zur Einschätzung und Beurteilung sowohl der Kartierungsergebnisse, als auch der regionalen Gültigkeit oder Belastbarkeit der Messungen und der Messnetzdicke hinsichtlich der flächendeckenden Kartierungsaussage. Die Verringerung der auftretenden Schätzfehler wäre durch eine Erhöhung der Messwerte-Dichte (zusätzliche Messungen) in denjenigen Gebieten möglich, in denen eine genauere Kartierungsaussage mit dem angewendeten Kartierungsverfahren erreicht werden soll.

Tabelle 6: Mittlerer prozentualer Schätzfehler für Konzentrationen im Niederschlag 2004-2007

	Ca	K	Mg	Na	Cl	H	$\text{NO}_3\text{-N}$	$\text{NH}_4\text{-N}$	$\text{SO}_4\text{-S}$
2004	59%	55%	43%	21%	25%	70%	17%	35%	29%
2005	43%	49%	42%	30%	40%	64%	18%	32%	24%
2006	56%	61%	46%	47%	36%	68%	31%	36%	33%
2007	57%	77%	81%	60%	103%	58%	15%	37%	29%

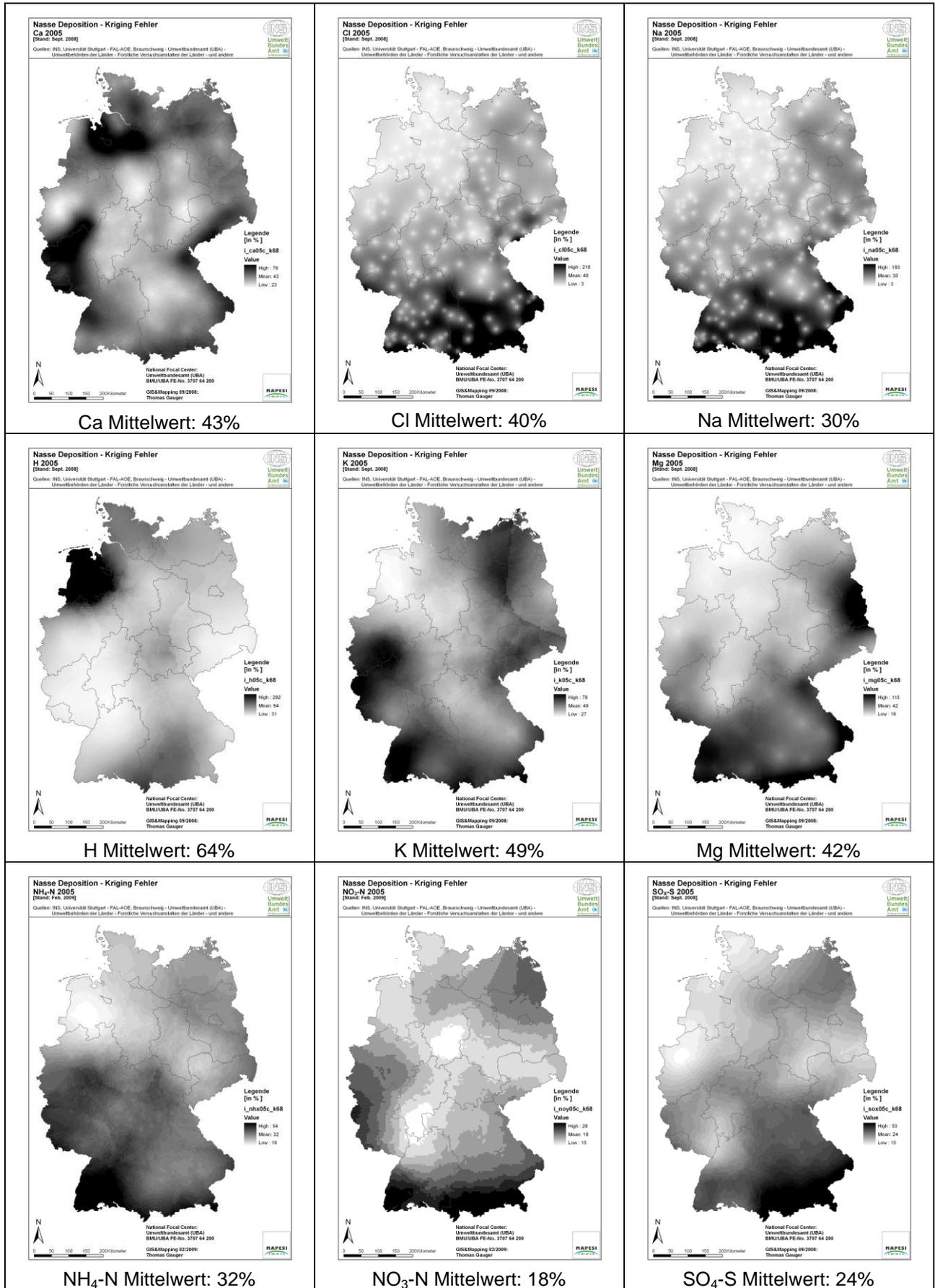


Abbildung 9: Kriging-Fehler [in %] der Konzentrationen im Niederschlag 2005

1.2 Modellierung der Trocken-Deposition basischer Kationen

Für die basischen Kationen Calcium (Ca), Kalium (K), Magnesium (Mg) und Natrium (Na) sowie den um Seesalzanteile korrigierten Spezies (Ca_{nss} , K_{nss} , Mg_{nss} ; $nss =$ ‚nicht-seesalz‘) liegen – hauptsächlich auf Grund noch fehlender geeigneter Emissionsdaten für basische Kationen und Seesalz-Spezies und weiterhin ausstehender Modellanpassungen – bisher noch keine verwendbaren Konzentrationsfelder aus LOTOS-EUROS Modellergebnissen vor. Deshalb wird auf die messnetzbasierten Kartierungsergebnisse der hoch aufgelösten Konzentrationen im Niederschlag als Datenbasis zur Modellierung der Trocken-Deposition der basischen Kationen zurückgegriffen. Mit Hilfe von Auswaschungsverhältnissen (‚scavenging ratios‘), die unter Berücksichtigung des herrschenden Luftdrucks das Verhältnis der Konzentrationen im Niederschlag zur atmosphärischen Konzentrationen beschreiben, kann auf letztere geschlossen werden (DRAAIJERS ET AL. 1996). Die so ermittelten atmosphärischen Konzentrationen von Ca , Ca_{nss} , K , K_{nss} , Mg , Mg_{nss} und Na , liegen als mittlere Jahreswerte im $1 \times 1 \text{ km}^2$ Raster vor und werden zur Berechnung der Trocken-Deposition dieser Spezies verwendet (s. u. Abschnitt ‚Trockene Deposition basischer Kationen‘).

Der Trocken-Depositionsfluss (F) zum Rezeptor ist das Produkt aus der Konzentration der betrachteten Luftinhalstoffe (c) in der Atmosphäre und deren Depositionsgeschwindigkeit (v_d). Wie im IDEM Modell (s. GAUGER ET AL. 2008) bildet ein Widerstandsmodell (DEPAC) in LOTOS-EUROS das Kernmodul für die Modellierung der Trocken-Deposition. Dabei werden einzelne Prozesse verknüpft, die durch die Rezeptoroberfläche einerseits, die Luftinhalstoffe andererseits sowie durch deren Wechselwirkungen bestimmt werden. Die Berechnung der Depositionsgeschwindigkeiten erfolgt durch Parametrisierung der wesentlichen beteiligten Prozesse. Dazu wurden Beobachtungen und Ergebnisse zahlreicher Studien zu meteorologischen Untersuchungen der Trocken-Deposition angewandt. Die Untersuchungsergebnisse zu physikalischen Kenngrößen, welche die Eigenschaften der unteren Atmosphäre und der Rezeptoroberflächen wiedergeben, bilden somit die Grundlage der Modellberechnungen. Die Parametrisierung der Prozesse erfolgt nach der Widerstandsanalogie (Ohmsches Gesetz) durch die Berechnung aller wichtigen Widerstände beim Transport zu den unterschiedlichen Rezeptoren. Der Gesamtwiderstand R setzt sich aus Komponentenwiderständen (R_a , R_b , R_c) zusammen. Die drei Widerstände repräsentieren zusammenfassend die Eigenschaften der unteren Atmosphäre und der Rezeptoroberfläche und lassen sich in der Depositionsgeschwindigkeit v_d ausdrücken ($v_d = 1/(R_a + R_b + R_c)$). Die wichtigsten Widerstände sind hierbei:

- R_a : aerodynamischer Widerstand gegen turbulenten Transport zur Rezeptoroberfläche
- R_b : quasi-laminarer Widerstand gegen den molekularen Transport durch die oberflächennahe Grenzschicht
- R_c : Oberflächenwiderstand gegen Aufnahme bzw. Absorption am Rezeptor insgesamt.

Die genannten Widerstände wirken fallweise, parallel oder in Serie und ergeben aufsummiert den Wert des Gesamtwiderstandes. Sie werden jeweils modifiziert durch die meteorologischen Verhältnisse, die exponierte Blattfläche, die Physiologie der Stomata, den Zustand von Boden und Blattoberfläche (z. B. pH-Wert), das Vorhandensein und den Chemismus von Wasserfilmen bzw. von Schneebedeckung etc.. Der zeitlichen Variabilität der bestimmenden Faktoren wird bei der Parametrisierung der Widerstände (R) bzw. Depositionsgeschwindigkeiten ($v_d=1/R$) durch die zeitliche Auflösung der Eingangsdaten (Immissionen, Meteorologie, Blattflächenindex) Rechnung getragen.

Bei der Modellierung für Basische Kationen ist nur der atmosphärische Widerstand (R_a) für diese partikelförmig vorliegenden Spezies relevant. Ergebnisse für die Trocken-Deposition basischer Kationen liegen für die Jahre 2004, 2005, 2006 und 2007 vor.

1.2.1 Angewandter Modellansatz der Berechnung der Trocken-Deposition basischer Kationen

Die Berechnung der Trockenen Deposition erfolgt nach einem empirischen Modellansatz, dem sog. ‚Scavenging Ratio Ansatz‘ nach DRAAIJERS ET AL. 1996. Dabei werden die Konzentrationen in der Atmosphäre aus den Spezies-Konzentrationen im Niederschlag ermittelt. Die Trocken-Deposition der basischen Kationen (Ca , K , Mg , Na) und der basischen Kationen ohne Seesalzbestandteile (Ca_{nss} , K_{nss} , Mg_{nss}) werden dann mit Hilfe von LOTOS-EUROS Modelldaten der Depositionsgeschwindigkeiten (v_d) für Partikel ($v_{d(Part.)}=1/R_a$) berechnet. Die Berechnung erfolgt auf der Grundlage von Jahreswerten. Die Berechnung der Trocken-Deposition der basischen Kationen wird als Modellierung im GIS (Geographisches Informationssystem) am INS der Universität Stuttgart realisiert.

Grundlagen der Berechnung sind dabei

- die jährlichen Konzentrationen im Niederschlag ($[C]_{rain}$), die aus den Depositions-Monitoringdaten mit Hilfe der Kriging-Technik flächenhaft zu Konzentrationsfeldern als $1 \times 1 \text{ km}^2$ Rasterkarten berechnet werden (s. o. Kap. 1.1 Nasse Deposition)
- die Konstanten A und B , die das Verhältnis von mittlerem Partikeldurchmesser und Niederschlagskonzentrationen beschreiben (nach DRAAIJERS ET AL. 1996; s. Tabelle 7)
- die für Basische Kationen aus dem atmosphärischen Widerstand (R_a) für Partikel auf Basis von Daten des Jahres 2005 modellierten Jahresmittelwerte der Depositionsgeschwindigkeit (v_d) für jede der betrachteten 9 Landnutzungsklassen
- Rasterkarten der mittleren Dichte der Luft (ρ in g m^{-3}) auf Basis von Daten des Jahres 2005

Die Konzentration in der Atmosphäre ($[C]_{air}$) wird bestimmt als:

$$[C]_{air} = (\rho * [C]_{rain}) / (188 * e^{0.227} * (A * [C]_{rain} + B)) \quad \text{Formel 3}$$

Der Trocken-Depositionsfluss ($[F]_{dd}$) wird berechnet als:

$$[F]_{dd} = [C]_{air} * v_d \quad \text{Formel 4}$$

Tabelle 7: Best-fit-Konstanten des linearen Verhältnisses aus mittlerem Partikeldurchmesser (Mean Mass Diameter, MMD) und den Niederschlagskonzentrationen für Na, Mg, Ca and K. DRAAIJERS ET AL. (1996).

$MMD = A * C_{rain} + B$	A	B
Na	0,574	6,082
Mg	2,778	5,694
Ca	1,52	6,316
K	2,74	4,096

In Abbildung 10 ist beispielhaft die Berechnung der Trocken-Deposition für nicht-seesalz Calcium (Ca_{nss}) im Bezugsjahr 2005 und die Landnutzungsklasse Laubwald anhand der Karten der berechneten atmosphärischen Konzentration (c_{air}), der verwendeten mittleren Depositionsgeschwindigkeiten (v_d) für Partikel bei der Landnutzungsklasse Laubwald aus dem LOTOS-EUROS Modell und das Ergebnis der Trocken Depositionsflüsse (F_{dd}) für nicht-seesalz Calcium (Ca_{nss}) für Laubwald in Deutschland dargestellt.

Die entsprechende Darstellung in Abbildung 11 zeigt die Berechnung für alle 9 Landnutzungsklassen in Deutschland im CORINE Land Cover (CLC₂₀₀₀) Mosaik, d.h. die Trocken-Depositionsfracht in die verschiedenen Landnutzungen, die für diese ‚sub-grid‘ Berechnung in einer Auflösung von 1 ha innerhalb jeder 1x1km² Rasterzelle vorliegen, gehen hierzu in die GIS-Modellierung der in Abbildung 10 dargestellten Karten der mittleren Depositionsgeschwindigkeit (v_d) und der Trocken-Deposition ein.

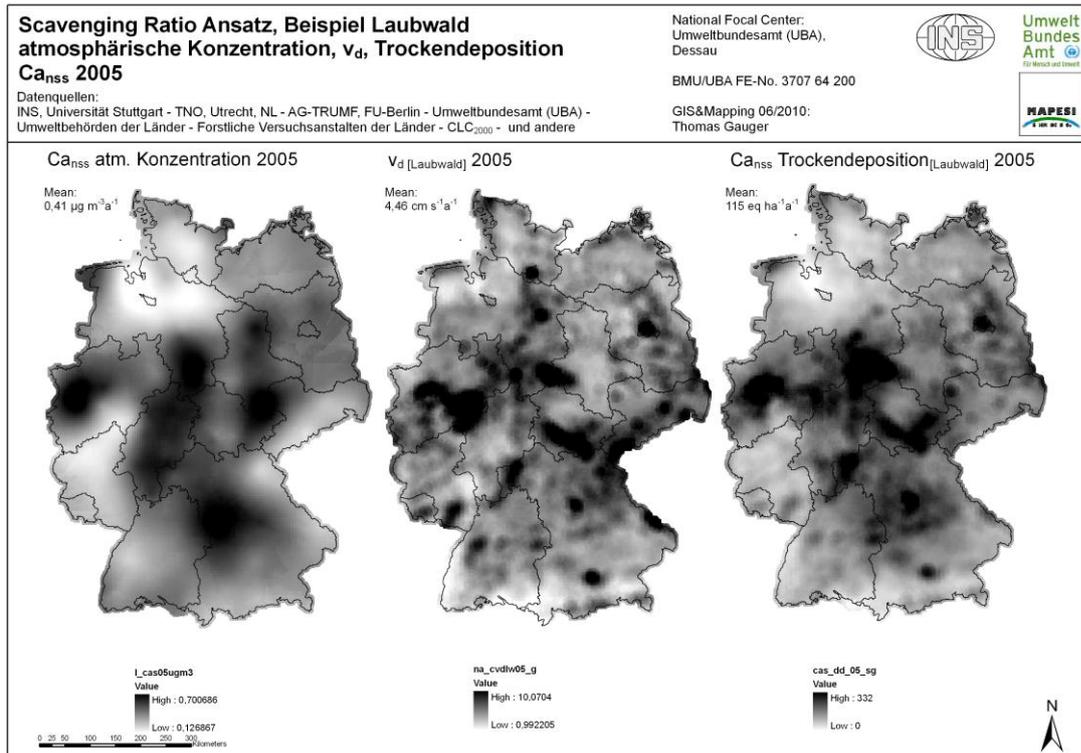


Abbildung 10: Illustration der flächenhaften Berechnung der Trocken-Deposition basischer Kationen (Bsp. Laubwald, nicht-seesalz Calcium (Ca_{nss}) 2005)

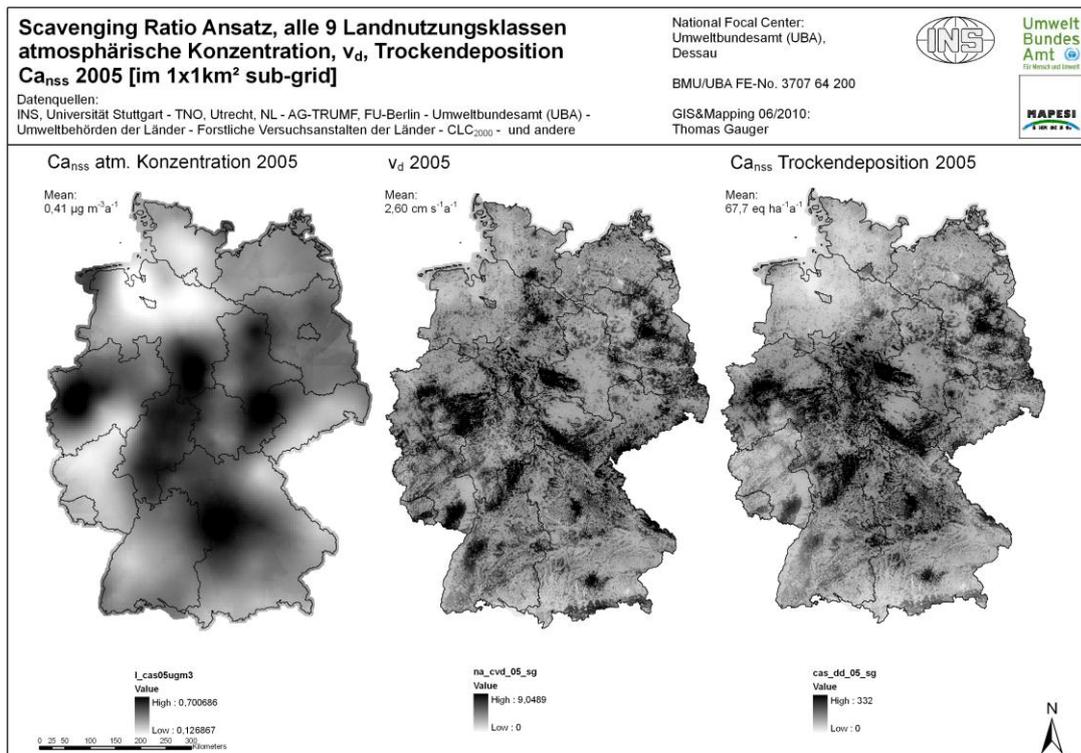


Abbildung 11: Illustration der flächenhaften Berechnung der Trocken-Deposition von Ca_{nss} für alle 9 Landnutzungsklassen im CORINE Land Cover Mosaik ($1 \times 1 km^2$ sub-grid)

1.3 Feuchte Deposition

Unter feuchter Deposition (in der Literatur auch: ‚okkulte‘ Deposition) wird der Depositionsfluss verstanden, bei dem der Spezies-Eintrag aus der Atmosphäre direkt mit (Wolken-)Wassertropfen in die betrachteten Rezeptorsysteme abgeschieden wird. Die Berechnung der feuchten Deposition besteht in der rechnerischen Verknüpfung verschiedener notwendiger Eingangsdaten nach BLEEKER ET AL. 2000, und erfolgt als Modellierung im GIS (Geographisches Informationssystem) am INS der Universität Stuttgart.

Die hier modellierte feuchte Deposition ist an orographischen Nebel gebunden, d.h. an das Auftreten von niedrigen Wolken in Folge von aufsteigender Bewegung feuchter Luftmassen. Die Berechnung der Feuchten Deposition beruht auf dem Ansatz von BLEEKER ET AL. 2000. Die feuchte Deposition kann mit dieser Methode nur für Gebiete in einer Höhenlage oberhalb von 250m berechnet und ausgewiesen werden, weil die gegebenen Funktionen für niedriger gelegene Gebiete ungültig sind. Weitere Details zur Verfahrensentwicklung und Anwendung sind ausführlich in BLEEKER ET AL. 2000, und kurz in GAUGER ET AL. 2002 und GAUGER ET AL. 2008 beschrieben.

Grundlagen der Berechnung sind

- die Konzentrationen im Niederschlag ($[C]_{rain}$), die aus Depositions-Monitoringdaten mit Hilfe der Kriging-Technik flächenhaft zu Konzentrationsfeldern im 1x1 km² Rasterkarten berechnet werden (vgl. oben, Abschnitt ‚Nasse Deposition‘)
- die Parameter a und b , die die Konzentration im Wolkenwasser ($[C]_{cloud}$) bei gegebener Niederschlagskonzentration ($[C]_{rain}$) beschreiben (nach BLEEKER ET AL. 2000; s. Tabelle 8)
- die Geländehöhe (z) in Deutschland aus einem Digitalen Höhenmodell (DHM des BGR, 1998)
- die mittleren Flüssigwassergehalte der Atmosphäre in 2005 (LWC , *Liquid Water Content*) nach einer Berechnung der FU-Berlin, AG-TRUMF
- die aus dem atmosphärischen Widerstand für Partikel auf Basis von Daten des Jahres 2005 modellierten Jahreswerte der Depositionsgeschwindigkeit (v_d)

Die Berechnung der Feuchten Deposition (nach BLEEKER ET AL. 2000) lässt sich in den nachfolgenden Formeln 5 und 6 beschreiben.

Die Konzentration in der Atmosphäre ($[C]_{air}$) wird bestimmt als:

$$[C]_{cloud} = a * z^b * [C]_{rain} \quad \text{Formel 5}$$

Der feuchte Depositionsfluss ($[F]_{cloud}$) wird berechnet als:

$$[F]_{cloud} = [C]_{cloud} * LWC * v_d \quad \text{Formel 6}$$

Tabelle 8: Best-fit-Parameter a und b nach BLEEKER ET AL. 2000:

Spezies	a	b
SO ₄	341	-0,64
NO ₃	912	-0,77
NH ₄	25,6	-0,24
H	15,3	-0,24
Na	9,1 10 ⁵	-1,90
Mg	6,0 10 ⁷	-2,50
Ca	1,3 10 ⁵	-1,60
K	2,2 10 ³	-0,99
Cl	3,0 10 ⁶	-2,09

Die Gesamtdeposition jeder der betrachteten Spezies ist als Summe der drei Teilflüsse von Nass-, Trocken- und Feucht-Deposition zu berechnen (vgl. Abbildungen 12 und 13).

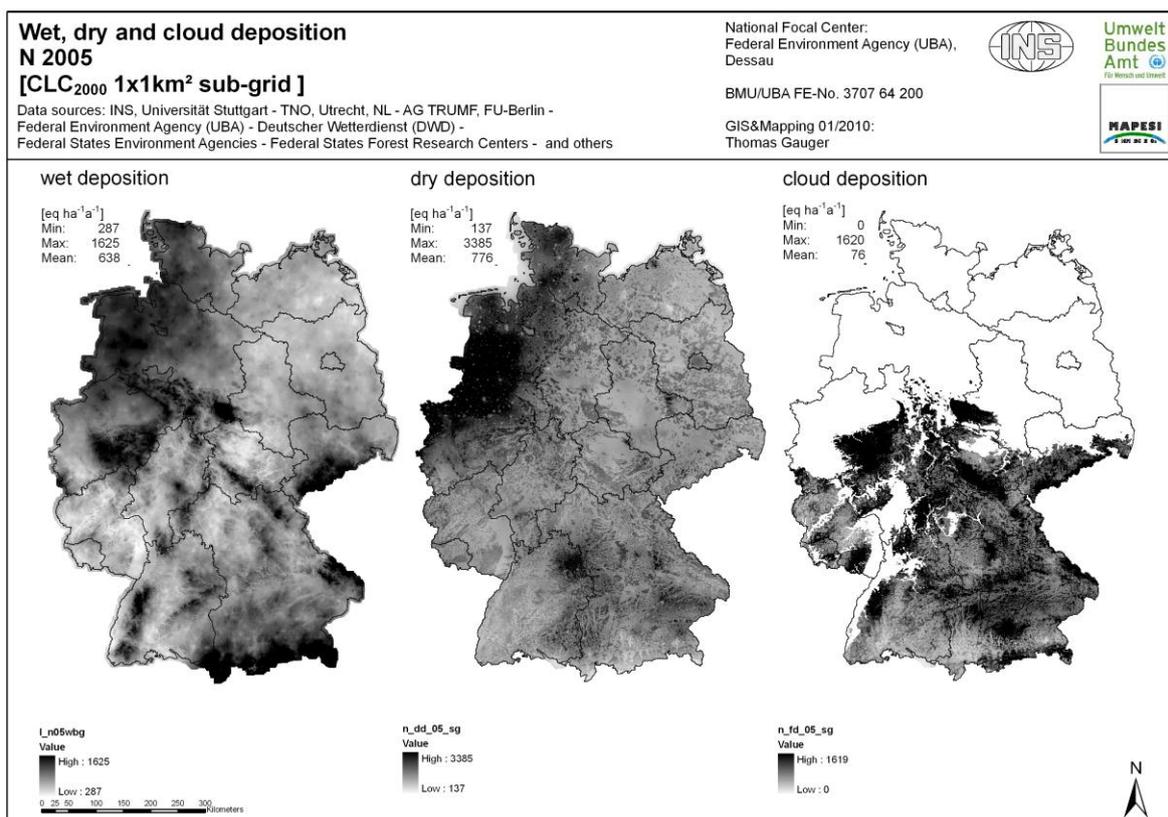


Abbildung 12: Ergebnisse der flächenhaften Kartierung von Nass-, Trocken- und Feucht-Deposition, Beispiel: Gesamt-Stickstoff (N) 2005

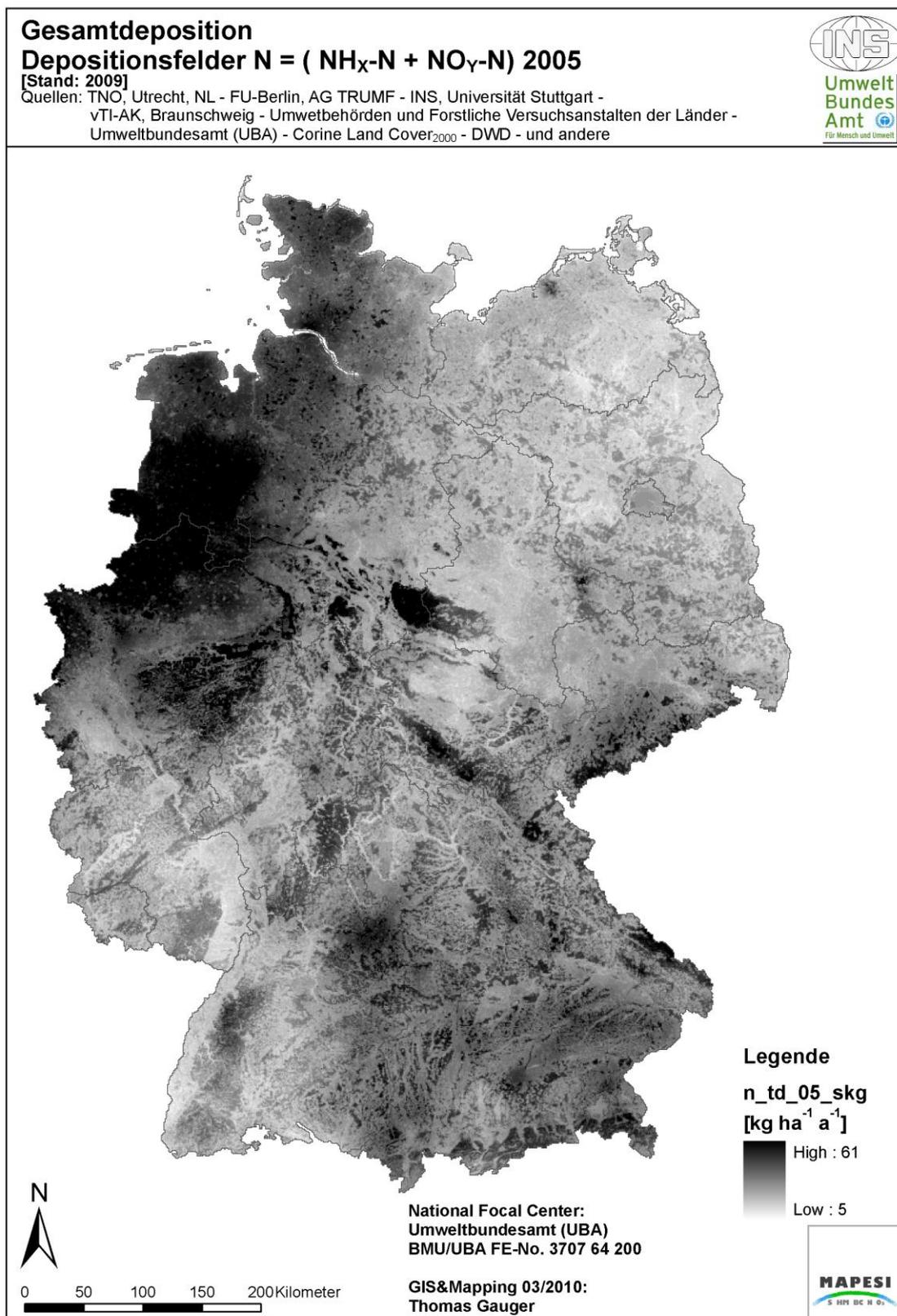


Abbildung 13: Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Gesamtdeposition als Summe von Nass-, Trocken- und Feucht-Deposition, Beispiel: Gesamt-Stickstoff (N) 2005

1.4 Umrechnung der LOTOS-EUROS Rasterkarten der Trocken-Deposition von TNO in ökosystemspezifische Karten im 1x1km² Standard-Raster

Die flächendeckende Kartierung der Gesamtdeposition in Deutschland auf Ökosystemebene setzt voraus, dass die einzelnen Depositionsflüsse in gleicher hoher räumlicher Auflösung vorliegen und hinreichende Gültigkeit für die regionale und lokale Anwendungs- und Interpretationsebene besitzen. Die räumliche Auflösung der aus LOTOS-EUROS gelieferten Modellergebnisse der Trocken-Depositionsflüsse erfüllt dieses Kriterium nicht. Deshalb ist eine Nachbereitung und Bearbeitung dieser Modellberechnungen erforderlich. Diese erfolgt als Modellierung im GIS (Geographisches Informationssystem) am INS der Universität Stuttgart und resultiert in der notwendigen maßstäblich einheitlichen Darstellung der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse aller betrachteten Depositionsflüsse (Nass-, Trocken-, Feucht- und Gesamtdeposition). Für die nationale Kartierung wird seit etwa Mitte der 1990er Jahre dieses 1 x 1 km² Standard-Raster verwendet, was sowohl den Anforderungen des reibungslosen projektinternen Datenflusses, als auch denjenigen der Nutzung der Daten in weiteren nach geordneten internationalen, nationalen, regionalen und lokalen Anwendungen und Fragestellungen (vgl. GAUGER ET AL. 2005) entgegenkommt.

Die GIS-Modellierung am INS erfolgt unter der Prämisse der Verbesserung der Aussage- und Anwendungs-Schärfe bei gleichzeitiger Wahrung der flächenhaften quantitativen Bilanz und damit der Massenkonsistenz der LOTOS-EUROS Modellergebnisse. Diese Daten-, bzw. Ergebnis-Konsistenz ist analysiert worden und wird im Folgenden als Vergleich zwischen LOTOS-EUROS Modell-Output und hoch aufgelösten Daten nach der GIS-Modellierung auf der statistischen Ebene von Bundesländern und von Landkreisen in Deutschland dargestellt.

INS Methodik und Vorgehensweise:

Die Berechnung für das Jahr 2005 mit der hier beschriebenen INS-Methodik hat in Februar/März 2009 stattgefunden. Die Berechnung erfolgt für alle 9 Landnutzungsklassen (1x1km² flächendeckende landnutzungsspezifische Layer) im Einzelnen und in dem Landnutzungsmosaik des CORINE Land Cover Datensatzes (CLC₂₀₀₀) in einer 1x1km² sub-grid Auflösung, bei der die Depositionsfrachten auf eine 100x100m² Landnutzungsverteilung bezogen und in die 1x1km² Rasterzellen des Standard-Rasters aggregiert werden.

Folgende Daten und Berechnungen werden zur Generierung von 1x1km² Depositions-Rasterkarten in der Anwendung der INS-Methodik genutzt:

- $C_{air}(Y)$, atmosphärische Konzentration für die Spezies (Y):
 NH_3 , NH_4 , NO , NO_2 , NO_3 , HNO_3 , SO_2 , SO_4
Datenquelle: TNO, LOTOS-EUROS Modell, 2,5m Surface Layer Daten als $0,0625^\circ \times 0,125^\circ$ Raster-Mittelpunkte,
Bearbeitung am INS mit dem GIS (ArcGIS/ArcInfo):
einlesen der Daten als Punkt-coverage, Transformation von geographischem Gitternetz in metrische Standard-Projektion, Anwendung geostatistischer Modellierung (Kriging-Modell) zur Generierung von Konzentrationsfeldern aus Punkt-Daten, Output als $1 \times 1 \text{ km}^2$ Raster-Karten [$\mu\text{g m}^{-3}$]
- $f_{dry(X) LU(1...9)}$, trockener (dry), landsnutzungsspezifischer (LU) Depositionsfluss für die Spezies (X):
 NH_3-N , NH_4-N , $NO-N$, NO_2-N , NO_3-N , HNO_3-N , SO_2-S , SO_4-S
berechnet für die neun Landnutzungsklassen (LU) nach CLC₂₀₀₀:
1) Agrarflächen (ag), 2) Bebautes Gebiet (bg), 3) Laubwald (lw), 4) Mischwald (mw),
5) semi-natürliche Vegetation (nv), 6) Nadelwald (nw), 7) schütterere Vegetation, Restfläche (re),
8) Wasserflächen (wa), 9) Wiesen und Weiden (ww)
Datenquelle: TNO, LOTOS-EUROS Modell, Daten als $0,0625^\circ \times 0,125^\circ$ Raster-Mittelpunkte,
Bearbeitung am INS mit dem GIS (ArcGIS/ArcInfo):
einlesen der Daten als Punkt-coverage, Transformation von geographischem Gitternetz in metrische Standard-Projektion, Anwendung geostatistischer Modellierung (Kriging-Modell) zur Generierung von Trocken-Depositionsfeldern aus Punkt-Daten, Output als $1 \times 1 \text{ km}^2$ Raster-Karten [$\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$]
- $V_d LU(X) \text{ eff.}$ effektive landnutzungsspezifische Depositionsgeschwindigkeit für die Spezies (X):
 NH_3-N , NH_4-N , $NO-N$, NO_2-N , NO_3-N , HNO_3-N , SO_2-S , SO_4-S
Daten: $C_{air}(Y)$ und $f_{dry(X) LU(1...9)}$ aus vorangegangener Berechnung
Weitere Bearbeitung am INS mit dem GIS (ArcGIS/ArcInfo):
Berechnung der effektiven Depositionsgeschwindigkeit nach

$$V_d LU(X) \text{ eff.} = f_{dry(X) LU(1...9)} / C_{air}(X)$$
Output als $1 \times 1 \text{ km}^2$ Raster-Karten [cm s^{-1}] in metrischer Standard-Projektion
- $f_{dry(X) (CLC2000)}$, Trockene Deposition im CLC₂₀₀₀ sub-grid Landnutzungs-Mosaik für die Spezies (X):
 NH_3-N , NH_4-N , $NO-N$, NO_2-N , NO_3-N , HNO_3-N , SO_2-S , SO_4-S
Daten: $f_{dry(X) LU(1...9)}$ aus vorangegangener Berechnung, Anteile der neun CORINE Land Cover Landnutzungsklassen (CLC_{2000(sub-grid 1...9)}) in der Auflösung von $100 \times 100 \text{ m}^2$ innerhalb jeder $1 \times 1 \text{ km}^2$ Rasterzelle in Deutschland aus eigener Berechnung am INS
Weitere Bearbeitung am INS mit dem GIS (ArcGIS/ArcInfo):
Berechnung der Trocken landnutzungsspezifischen Depositionsflüsse nach

$$f_{dry(X) (CLC2000)} = f_{dry(X) LU(1...9)} [\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}] * CLC_{2000(\text{sub-grid } 1...9)} [\%] / 100;$$
Output als $1 \times 1 \text{ km}^2$ Raster-Karten [$\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$] in metrischer Standard-Projektion
- Aggregation der Trocken-Deposition der Spezies (X) zu oxidiertem Stickstoff (NO_Y-N), reduziertem Stickstoff (NH_X-N), Gesamtstickstoff (N) und oxidiertem Schwefel (SO_X-S)
Daten: $f_{dry(X) LU(1...9)}$ und $f_{dry(X) (CLC2000)}$ und aus vorangegangener Berechnung
Weitere Bearbeitung am INS mit dem GIS (ArcGIS/ArcInfo):
Flächenhafte Berechnung nach

$$NO_Y-N = NO-N + NO_2-N + NO_3-N + HNO_3-N$$

$$NH_X-N = NH_3-N + NH_4-N$$

$$N = NO_Y-N + NH_X-N$$

$$SO_X-S = SO_2-S + SO_4-S$$
Output als $1 \times 1 \text{ km}^2$ Raster-Karten [$\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ und $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$] in metrischer Standard-Projektion
- Generierung von Kartenstatistiken (map statistics, zonal statistics) für Deutschland, Bundesländer und das CLC₂₀₀₀ Landnutzungs mosaik der neun Landnutzungsklassen
- Erstellung von Karten-Layouts und graphische Darstellung der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse
- Generierung von Output-files
Bearbeitung INS GIS: ARC-ASCII-files und ARC-Exportfiles;
Datenweitergabe an ÖKO-DATA über den INS-Daten-Server zur Berechnung von ökosystemspezifischen Critical Loads und deren Überschreitung
Vorbereitung zur Datenweitergabe per DVD-ROM (Archivierung der ARC-ASCII-files)

Ein entsprechendes Vorgehen wird auch für die Schwermetalle Blei (Pb) und Cadmium (Cd) angewendet.

1.5 Vergleich und Auswertung unterschiedlicher Rasterauflösungen (1 x 1km² INS-Raster, 0,0625° x 0,125° TNO-Raster) auf Basis der Bundesländer

Die beiden Versionen der Rasterkarten, d.h. die Berechnung von TNO und die Berechnung des INS auf der Basis der landnutzungs- und speziesspezifischen Depositionsberechnung der Modellierung durch TNO mit dem LOTOS-EUROS Modell, werden unter Nutzung des GIS verglichen. Zweck ist es zu prüfen, ob sich die Modellierungsschritte der angewandten INS Methodik mit Umrechnungen und Transformation von Projektion und Rasterauflösung bei der Erstellung der endgültigen Ergebniskarten im kleinen Raster mit räumlicher Auflösung von 1x1km² auf die ausgewiesene insgesamt deponierte Fracht quantitativ auswirken (Test der Konsistenz der Modellergebnisse und Massenerhaltung).

Der Unterschied der von TNO im LOTOS-EUROS Modell verwendeten Landnutzungsdaten (nach SMIA TEK, 1998) und dem ansonsten in diesem und vorangegangenen Forschungsvorhaben gleicher Thematik verwendeten Standard-Landnutzungsdatensatz CORINE LAND COVER (CLC₂₀₀₀) ist hier nicht explizit in die vergleichende Betrachtung einbezogen. Die Differenzen beider Landnutzungsdatensätze wurden zu Beginn des Forschungsvorhabens im Rahmen dieses und des „PAREST“-Projektes analysiert. Die Unterschiede beider Datensätze fallen im Ganzen deutlich gering aus. Durch die Verwendung des Smiatek 1998 ausschließlich in den LOTOS-EUROS Modellanwendungen und der Aggregation auf nur 9 Landnutzungsklassen bei der Datenübergabe an das INS zur weiteren Bearbeitung werden vorhandene Differenzen zu CLC₂₀₀₀ zudem minimiert.

Für den Vergleich unterschiedlicher Raster-Auflösungen der Trockendeposition werden Karten-Statistiken (zonal statistics) generiert. Grundlage sind hierbei Datensätze der Grenzen der 16 Bundesländer Deutschlands als zonal coverage (räumliche Basis der im GIS ArcGIS/ArcMap/ArcInfo ausgegebenen Statistik). Zum Vergleich herangezogen werden die zu Spezies-Gruppen aggregierten Rasterkarten der Deposition von reduzierten Stickstoffverbindungen (NH_x-N) oxidierten Stickstoffverbindungen (NO_y-N) und von oxidierten Schwefelverbindungen (SO_x-S) des Jahres 2005.

Die Kartierungsergebnisse in den beiden unterschiedlichen Rasterauflösungen und Ergebnisse des berechneten Vergleichs sind in den im Text folgenden Karten-Abbildungen (TNO-Raster in 0,0625°x0,125°; INS-Raster in 1x1km²; Verhältnisse INS-Raster/TNORaster) und Grafiken (Diagramme der Verhältnisse und Differenzen in Deutschland und den Bundesländern) dargestellt.

1.5.1 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für $\text{NH}_x\text{-N}$ in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Bundesländer

Die Textur der Karten zeigt eindeutig, dass die räumlichen Muster der trockenen Deposition in beiden Rasterauflösungen (TNO grid, INS 1x1km² sub-grid) nahezu identisch sind.

Dem entsprechend sind die Unterschiede der insgesamt deponierten Frachten für die Gesamtfläche Deutschlands mit im Mittel knapp 2% höheren Ergebnissen, entsprechend im Mittel 0,01 kg ha⁻¹ a⁻¹ $\text{NH}_x\text{-N}$, in der 1x1km² sub-grid Auflösung sehr gering (vgl. Abbildung 14 und 15).

Der rechnerische Vergleich der Karten auf Basis jeder einzelnen 1x1km² Rasterzelle (INS 1x1km² sub-grid / TNO grid) zeigt, wie sich Abweichungen nach oben und nach unten in benachbarten Rasterzellen kompensieren. In den meisten Fällen, d.h. bei ca. 75% aller Rasterzellen, sind die Unterschiede zwischen der originalen Berechnung durch TNO und nach der Umrechnung durch das INS kleiner als $\pm 20\%$.

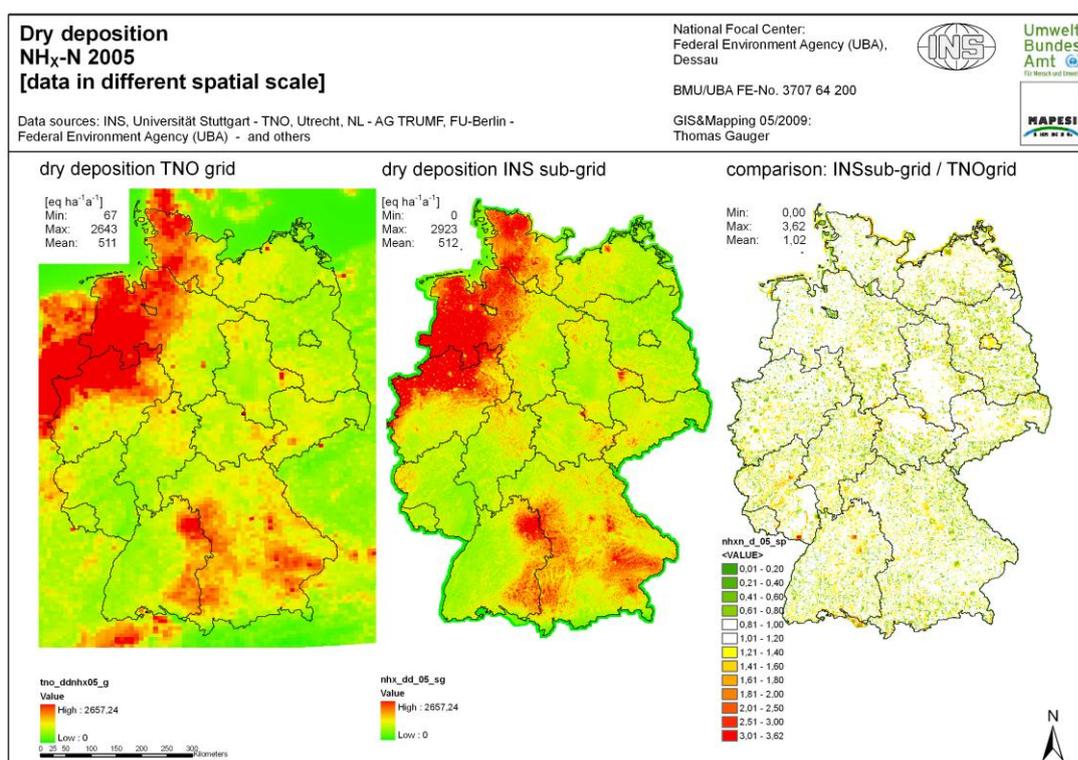


Abbildung 14: Darstellung und Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NH}_x\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster

Die Mittleren Unterschiede (s. Abbildung 15) sind in denjenigen Bundesländern mit den kleinsten Flächenanteilen in Deutschland mit zugleich geringen Quelldichten landwirtschaftlicher Emissionen (HH, HB, BE) am größten, in den großen Bundesländern dagegen relativ klein. Die Unterschiede liegen in den einzelnen Bundesländern zwischen -21% (Bremen; -2,13 kg ha⁻¹a⁻¹) und +24% (Berlin; +0,94 kg ha⁻¹a⁻¹), in den meisten Bundesländern liegen die im Vergleich berechneten Unterschiede zwischen den $\text{NH}_x\text{-N}$ Kartierungsergebnissen beider Rasterauflösungen im Vergleich bei unter +3%

(Abbildung 14 und 15).

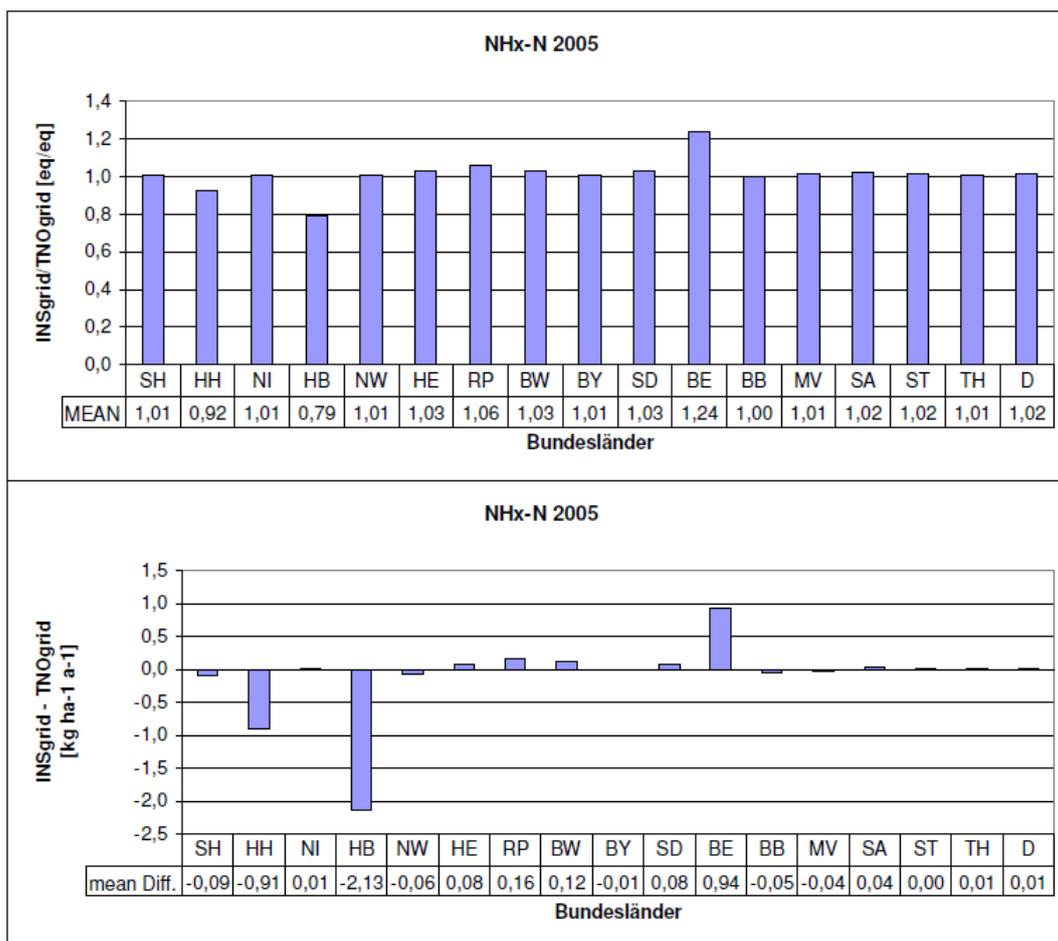


Abbildung 15: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von NH_x-N 2005 im TNO-Raster im INS-Raster in den Bundesländern und in Deutschland

1.5.2 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für $\text{NO}_Y\text{-N}$ in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Bundesländer

Auch bei $\text{NO}_Y\text{-N}$ sind die räumlichen Muster der trockenen Deposition in beiden Rasterauflösungen (TNO grid, INS sub-grid) weitestgehend identisch (Abbildung 16).

Die Unterschiede der insgesamt trocken deponierten Frachten für die Gesamtfläche Deutschlands sind mit im Mittel 2% höheren Ergebnissen (entsprechend im Mittel $0,02 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ NO}_Y\text{-N}$) in der $1 \times 1 \text{ km}^2$ Auflösung sehr gering (Abbildung 17).

Der rechnerische Vergleich der Karten auf Basis jeder einzelnen $1 \times 1 \text{ km}^2$ Rasterzelle (INS sub-grid / TNO grid) zeigt, wie sich auch bei $\text{NH}_X\text{-N}$ Abweichungen nach oben und unten in benachbarten Rasterzellen kompensieren (vgl. Abbildung 17). In den meisten Fällen, d.h. bei ca. 76% aller Rasterzellen, sind die Unterschiede zwischen der Berechnung durch TNO und der Umrechnung durch das INS kleiner als $\pm 20\%$.

Abbildung 17 weist aus, dass die Unterschiede in den einzelnen Bundesländern im Mittel zwischen -4,4% (Bremen; $-0,31 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) und +4,5% (Rheinland-Pfalz; $+0,11 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) liegen.

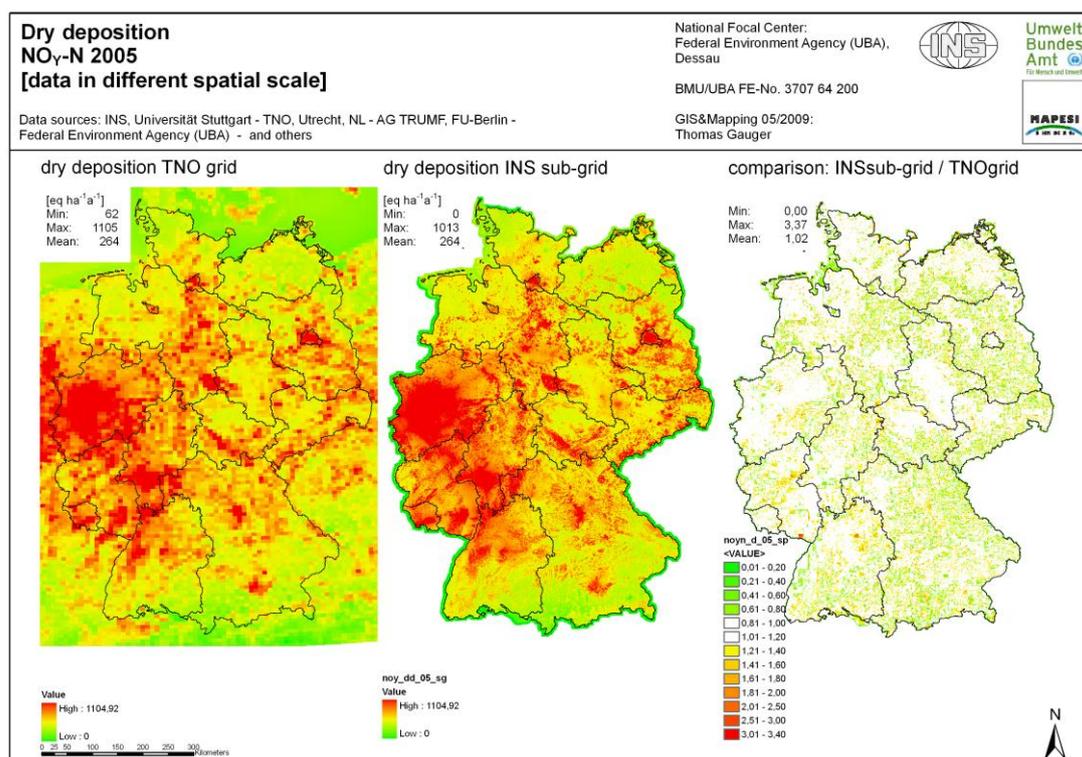


Abbildung 16: Darstellung und Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von $\text{NO}_Y\text{-N}$ 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster



Abbildung 17: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von NO_y-N 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Bundesländern und in Deutschland

1.5.3 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für SO_x-S in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Bundesländer

Bei SO_x-S sind die räumlichen Muster der trockenen Deposition in beiden Rasterauflösungen (TNO grid, INS sub-grid) ebenfalls nahezu identisch (Abbildung 18).

Die Unterschiede der insgesamt deponierten Frachten für die Gesamtfläche Deutschlands sind mit im Mittel 3,5% höheren Ergebnissen (entsprechend im Mittel 0,11 kg ha⁻¹ a⁻¹ SO_x-S) in der 1x1km² Auflösung sehr gering (Abbildung 19). Der rechnerische Vergleich der Karten auf Basis jeder einzelnen 1x1km² Rasterzelle (INS sub-grid / TNO grid) zeigt, wie sich auch bei SO_x-S Abweichungen nach oben und unten in benachbarten Rasterzellen kompensieren. In den meisten Fällen, d.h. bei ca. 73% aller Rasterzellen, sind die Unterschiede zwischen der Berechnung durch TNO und der Umrechnung durch das INS kleiner als ±20%.

Die Unterschiede in den einzelnen Bundesländern (s. Abbildung 19) liegen im Mittel zwischen -18,1% (Bremen; -2,10 kg ha⁻¹ a⁻¹) und +7,2% (Rheinland-Pfalz; +0,32 kg ha⁻¹ a⁻¹).

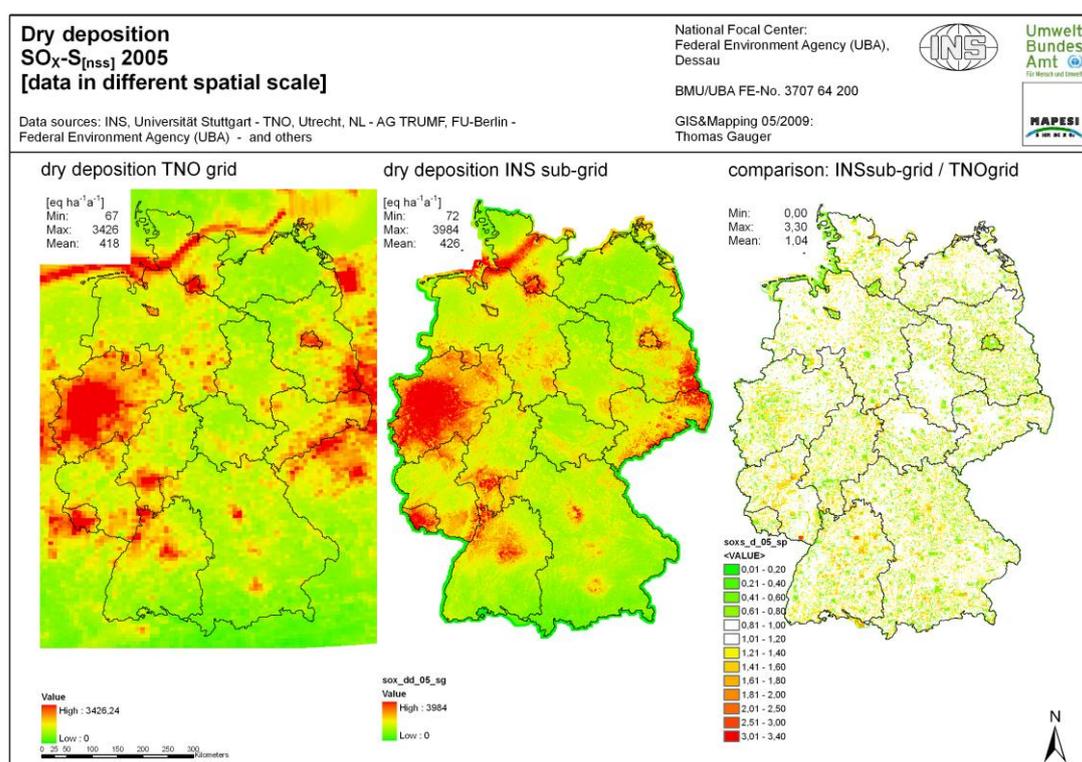


Abbildung 18: Darstellung und Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von SO_x-S 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster

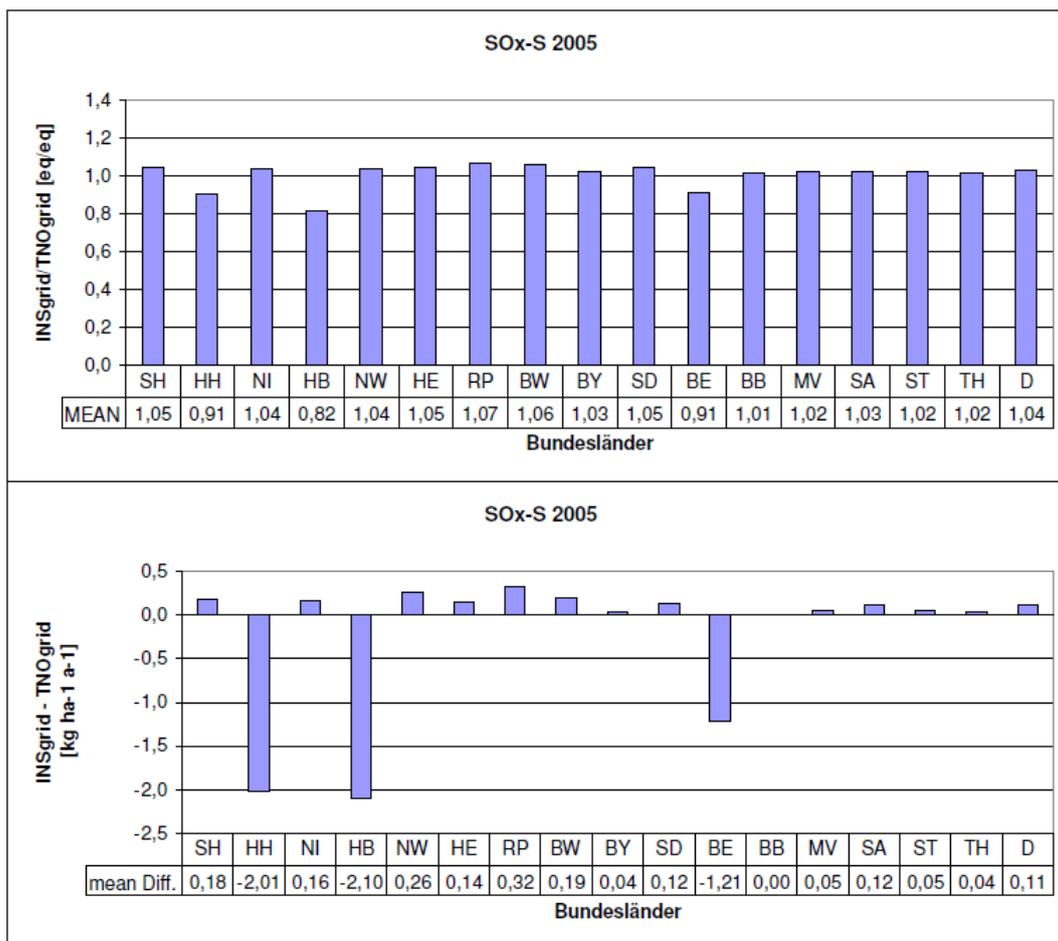


Abbildung 19: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von SO_x-S 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den einzelnen Bundesländern und in Deutschland

1.6 Vergleich und Auswertung der unterschiedlichen Rasterauflösungen (1 x 1km² INS-Raster, 0,0625°x 0,125° TNO-Raster) auf Basis der Landkreise in den einzelnen Bundesländern

Auch für den Vergleich auf der räumlichen Ebene der Landkreise in Deutschland werden im GIS Karten-Statistiken (zonal statistics) generiert. Grundlage sind die Polygone der Grenzen der Landkreise der 16 Bundesländer (Stand 1996) als zonales coverage als räumliche Basis der ausgegebenen Statistik für die 1x1 km² Rasterkarten. Zum Vergleich herangezogen und im Folgenden dargestellt werden wiederum die zu Spezies-Gruppen aggregierten Rasterkarten der Trocken-Deposition von reduzierten Stickstoffverbindungen (NH_x-N) oxidierten Stickstoffverbindungen (NO_y-N) und von oxidierten Schwefelverbindungen (SO_x-S) des Jahres 2005.

Die Ergebnisse des berechneten Vergleichs der Kartierungsergebnisse in den beiden unterschiedlichen Rasterauflösungen sind in den im Text folgenden Karten und Grafiken der Mittelwerte der Verhältnisse in den Landkreisen in Deutschland und den Bundesländern dargestellt.

1.6.1 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für NH_x-N in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Landkreise in Deutschland

Die Mittelwerte des Vergleichs für die einzelnen Landkreise in Deutschland sind in Abbildung 21 grafisch zusammenfassend als Verhältnisse in den Bundesländern und in ganz Deutschland dargestellt und liegen zwischen +/- 30% für NH_x-N (-23% - +29%).

Die Unterschiede beider Rasterauflösungen sind im Mittel für alle Landkreise in Deutschland ca. 1% höheren Ergebnissen für das INS sub-grid sehr gering. In den einzelnen Landkreisflächen liegen die absoluten Unterschiede im Bereich zwischen 1,0 kg ha⁻¹ a⁻¹ NH_x-N höheren Ergebnissen im INS sub-grid (Berlin-West, Stadt) und 3,1 kg ha⁻¹ a⁻¹ NH_x-N höheren TNO grid Ergebnissen (Bottrop, Stadt) für die NH_x-N Trocken-Deposition (vgl. Abbildung 20).

Die relativen Unterschiede liegen in den einzelnen Landkreisen im Mittel zwischen -23% (Ludwigshafen am Rhein, Stadt; -1,9 kg ha⁻¹ a⁻¹) und +29% (Aschaffenburg, Stadt; +0,8 kg ha⁻¹ a⁻¹).

In den meisten Landkreisen (398 von 440; > 90%) liegen die mittleren Abweichungen der Ergebnisse der Berechnungen für die NH_x-N Trockendeposition in den beiden Rasterauflösungen unter +/- 10%.

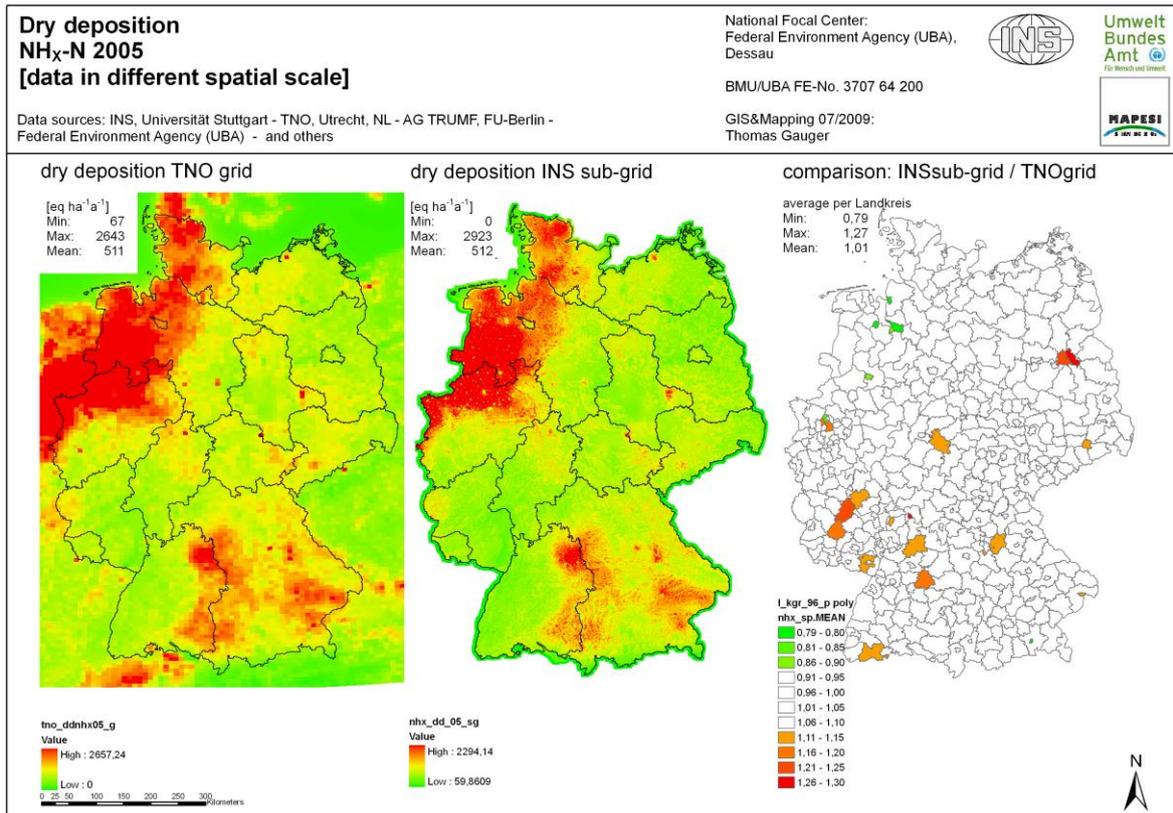


Abbildung 20: Darstellung der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von NH_x-N 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster und Vergleich in den Landkreisen Deutschlands

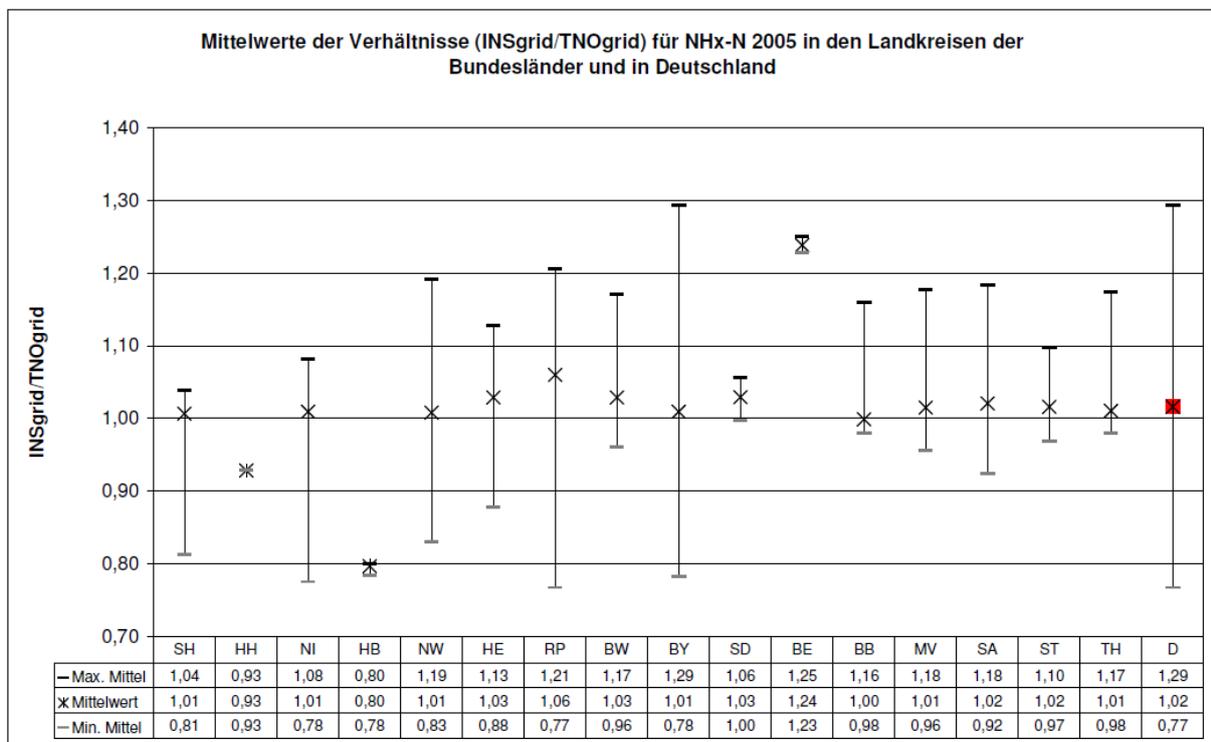


Abbildung 21: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von NH_x-N 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Landkreisen

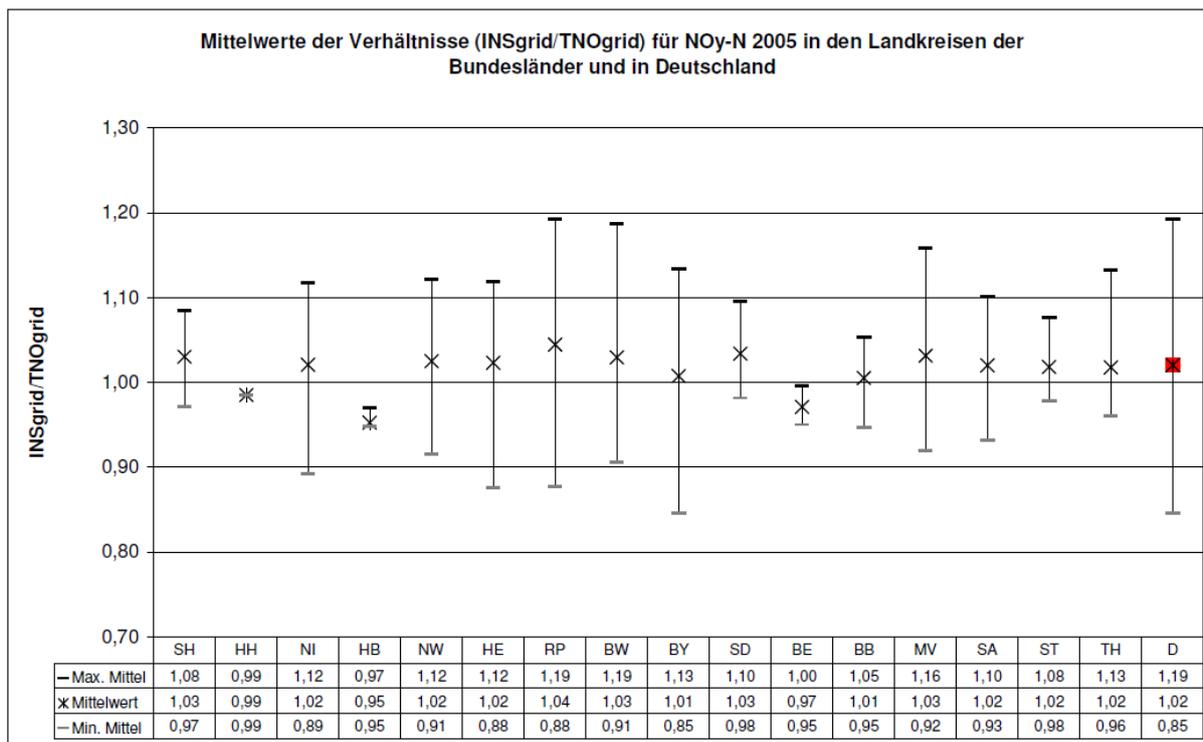


Abbildung 23: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von NO_y-N 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Landkreisen

1.6.3 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse für SO_x-S in unterschiedlicher räumlicher Auflösung auf Basis der Landkreise in Deutschland

Die Mittelwerte des Vergleichs für die einzelnen Landkreise in Deutschland sind in Abbildung 25 grafisch zusammenfassend als Verhältnisse in den Bundesländern und in ganz Deutschland dargestellt und liegen zwischen +/- 30% für SO_x-S (-29% bis +22%).

Die Unterschiede der Ergebnisse beider Rasterauflösungen sind mit im Mittel für alle Landkreise in Deutschland ca. 4% höheren Ergebnissen für das INS sub-grid ebenfalls sehr gering. In den einzelnen Landkreisflächen liegen die absoluten Unterschiede im Bereich zwischen 2,4 kg ha⁻¹ a⁻¹ SO_x-S höheren Ergebnissen im INS sub-grid (Ennepe-Ruhr-Kreis) und 6,3 kg ha⁻¹ a⁻¹ SO_x-S höheren TNO grid Ergebnissen (Bottrop; Stadt) für die SO_x-S Trocken-Deposition (vgl. Abbildung 24).

Die relativen Unterschiede liegen in den einzelnen Landkreisen im Mittel zwischen -29% (Flensburg; Stadt; -2,0 kg ha⁻¹ a⁻¹) und +22% (Rhein-Hunsrück-Kreis; +1,0 kg ha⁻¹ a⁻¹).

In den meisten Landkreisen (354 von 440; > 80%) liegen die mittleren Abweichungen der Ergebnisse der Berechnungen für die SO_x-S Trocken-Deposition in den beiden Rasterauflösungen zwischen +/- 10%.

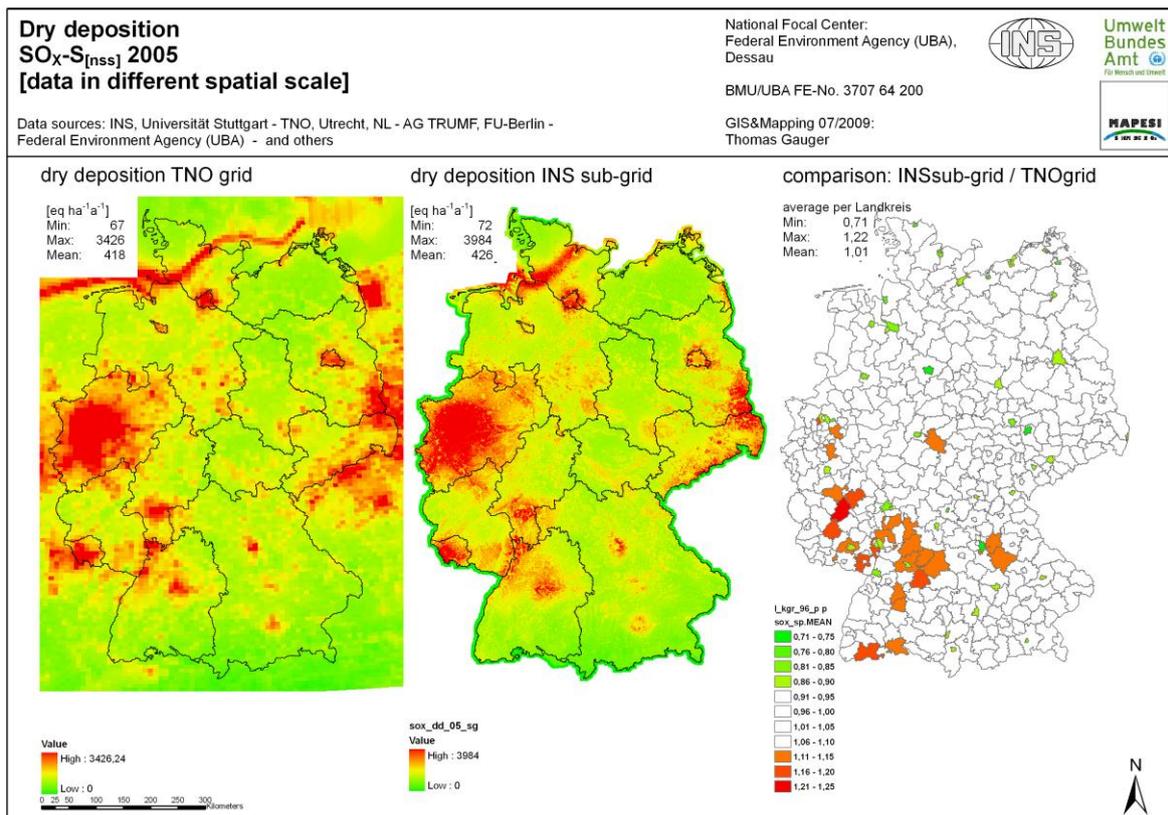


Abbildung 24: Darstellung der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von SO_x-S 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster und Vergleich in den Landkreisen Deutschlands

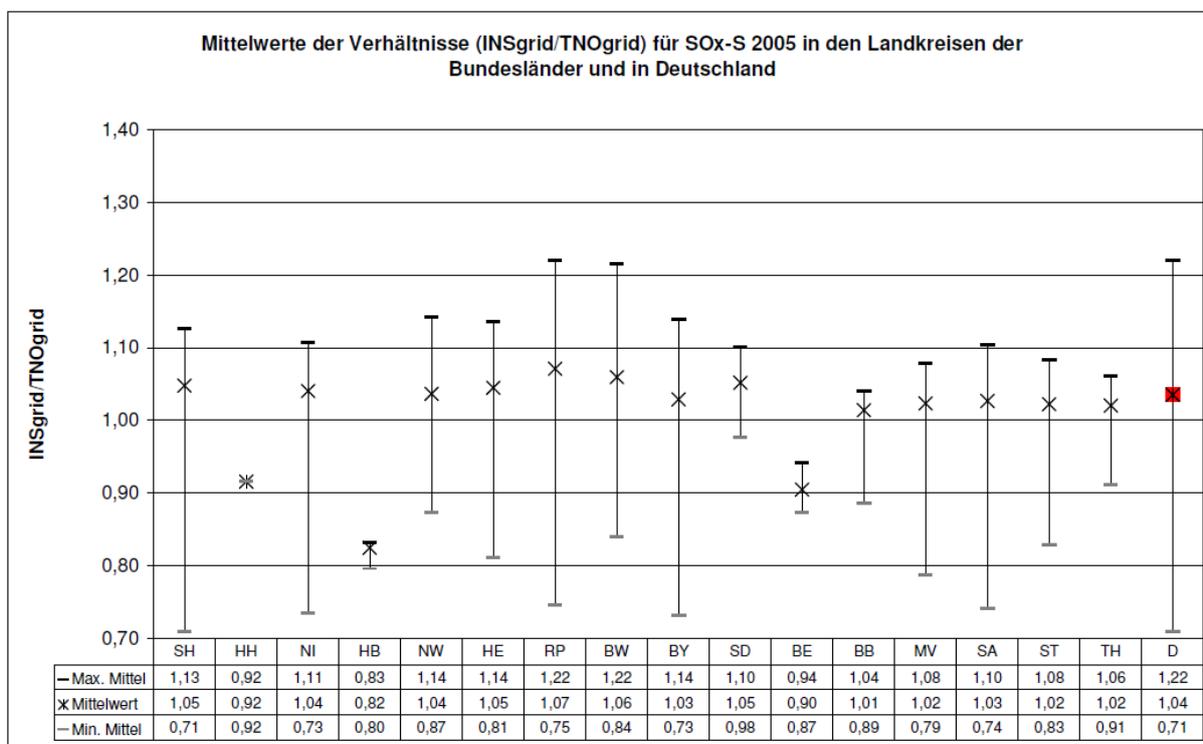


Abbildung 25: Vergleich der Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Trocken-Deposition von SO_x-S 2005 im TNO-Raster und im INS-Raster in den Landkreisen

1.7 Vergleich der Modellierung der Gesamtdeposition mit Ergebnissen von Kronenraumbilanz-Berechnungen

Für das Gebiet der Bundesrepublik Deutschland liegt ein ausreichend flächenrepräsentatives Messnetz für die Kartierung der Nassdeposition vor. Trockene und feuchte Deposition jedoch werden nur selten in episodischen Messkampagnen und nur an einzelnen wenigen Orten erfasst. Damit liegen für die komplett erfasste Gesamt-Deposition in der Regel keine bis einzelne wenige Messungen vor.

Für standörtliche Abschätzungen der Gesamtdeposition in Waldökosysteme sind Bestandesdepositionsmessungen in Verbindung mit Kronenraumbilanzen (KRB), z.B. nach ULRICH 1994 oder nach der Modifikation von DRAAIJERS 1995 unter bestimmten Voraussetzungen geeignet.

Regelmäßige Kronentraufen- und Stammabflussmessungen werden in Deutschland seit deutlich mehr als einem Jahrzehnt vor allem von Forstlichen Forschungs- und Versuchsinstitutionen der Länder u. a. an den über 80 ICP Forest Level II Stationen durchgeführt (vgl. www.icp-forests.org).

Hierbei handelt es sich um Messungen unter Baumbeständen. Die Eintragsmenge wird unter dem Kronendach und vor allem bei Laubbäumen zusätzlich auch als Stammabfluss gemessen. Die Grundannahme dieser Messkonstruktion ist, dass über das Jahr gesehen die Interzeptionsdeposition (trocken und feucht) im Kronenraum durch nachfolgende Regenniederschläge in die Bulk-Sammler im Traufbereich der Waldbäume eingetragen werden. Kronenrauminteraktionen mit den deponierten Stoffen führen jedoch dazu, dass der so gemessene Bestandesniederschlag trotzdem nicht der Gesamtdeposition entspricht. Während Stickstoff-Spezies und freie Protonen teilweise in die Pflanze aufgenommen werden, d. h. die gemessene Bestandes-Deposition unterschätzt hier die Gesamtdeposition, kommt es bei Kalium, Mangan, Calcium und Magnesium zu einer Auswaschung aus dem Kronenraum und deshalb zu Befunden, die in der Bestandesdepositionsmessung größer sind als die tatsächliche Gesamt-Deposition. Eine Bilanzierung dieser Prozesse ist jedoch möglich. So ergibt sich in der Kronenraumbilanz (KRB) die Gesamt-Deposition aus der um die Kronenraumaufnahme bzw. -auswaschung korrigierte Bestandesdeposition.

Bestandesdepositionsmessungen bilden somit grundsätzlich eine Validierungsbasis für andere Bestimmungsverfahren der Gesamt-Deposition in Waldbestände. Allerdings gilt die vollständige Erfassung der Gesamt-Deposition mit KRB-Verfahren aus konzeptionellen Gründen als ausschließlich für partikelförmige Spezies möglich (vgl. Zusammenstellung bei PETERS 1995). Der trockene gasförmige Eintrag wird deutlich unterschätzt. Dies gilt für die für Versauerung und Eutrophierung relevanten Schwefel- und Stickstoff-Spezies, die an inneren (Stomata) oder äußeren Bestandesoberflächen abgeschieden werden (NH_3 , NO_2 , SO_2 , HNO_3) und so der Erfassung und Bilanzierung entzogen werden (vgl. Mohr et al. 2005).

Im Rahmen einer Zusammenarbeit des INS mit dem Bund-Länder Arbeitskreis B (AK-B) zur Thematik Deposition, Versauerung, Eutrophierung und Stickstoffhaushalt von Waldökosystemen werden die Möglichkeiten, Modellierungsansätze über Messungen im Rahmen des forstlichen Umweltmonitorings

zu verbessern erörtert sowie Daten und Informationen zu unterschiedlichen Ansätzen der Depositions-Modellierung ausgetauscht. Unter anderem erfolgte durch das Johann Heinrich von Thünen Institut, Institut für Waldökologie und Waldinventuren (vTI-WOI) in Eberswalde eine Datenlieferung der bundesweiten Erfassung der Freiland- und Bestandesdeposition einschließlich einer vorläufigen Berechnung von Kronenraumbilanzen für die in Deutschland betriebenen ICP Forest Level II Stationen. Diese Daten wurden zu einer Gegenüberstellung mit den Modellierungs- und Kartierungsergebnissen der Gesamt-Deposition aufbereitet. Ergebnis dessen ist der hier dargestellte Vergleich der Modell-Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Gesamt-Deposition des Jahres 2005 für NH_x-N , NO_y-N , N , SO_x-S und der Basischen Kationen Ca , Mg und K mit den entsprechenden Schätzungen der Gesamt-Deposition aus Kronenraumbilanz-Berechnungen (Abbildung 26 und 27 und Tabelle 9).

Im Kronenraumbilanzmodell ist eine unabhängige massenbilanzbasierte Schätzung, bei der die Trockendeposition (dry deposition, DD) und die Gesamt-Deposition (total deposition, TD) aus langzeit Messungen der Freiland-Bulk-Deposition (bulk-flux, BF), Stammablauf-Messungen (stemflow, SF) und Kronentraufe-Messungen (throughfall, TF) im Waldbestand ermittelt werden. Weit verbreitet ist der Bilanzansatz nach Ulrich (1983), bei dem ein festes Verhältnis zwischen der Nass-/Bulk-Deposition (=BF) und der Trocken-Deposition von Partikeln (=DD_{part}) angenommen wird, das aus der Bulk-Deposition und der Analyse der Kronentraufe von Na als BF_{Na}/DD_{Na} bestimmt wird. Na wird somit bei diesem ‚Natrium-Kalibrierungs-Ansatz‘ als ‚Zeiger‘-Element oder ‚Tracer‘-Spezies verwendet, unter der Grundannahme, dass Na sich im Kronenraum vollkommen inert gegenüber Aufnahme und Auswaschung verhält. Das Anreicherungs-Verhältnis wird zur Berechnung der partikulären Trockenen Deposition (DD_{part}) von Ca, K, Mg, Cl, NH₄, NO₃ und SO₄ auf diese Spezies ($DD_{partX} = DD_{Na}/BF_{Na} BF_X$) übertragen. Die gasförmige Trocken-Deposition von HCl, SO₂, NH₃ und NO_x wird aus der jeweiligen Differenz zwischen der Auswaschung von Cl, NH₄, NO₃ und SO₄ aus dem Kronenraum (canopy leaching, CL), die aus der Kronentraufe-Messung plus Stammablauf-Messung abzüglich der Bulk-Deposition ($CL = TF+SF-BF$) berechnet wird, und der partikulären Trocken-Deposition bestimmt ($DD_{gas} = DD_{part}-CL$). Die Aufnahme von Cl, SO₄ und NO₃ in den Bestand wird dabei als vernachlässigbar gering angesehen, die Aufnahme von H und NH₄ wird (nach DRAAIJERS ET AL. 1998) der gesamten Auswaschung der Basischen Kationen (Ca, Mg, K) gleichgesetzt.

KRB Berechnungen werden als gleichwertig zu mikrometeorologischen Messungen angesehen, ihr Anwendungs- und Aussagebereich ist allerdings durch die gesetzten Grundannahmen des Verfahrens begrenzt (vgl. SPRANGER 1992, DRAAIJERS ET AL. 1994, DRAAIJERS & ERISMAN 1995, ERISMAN & DRAAIJERS 1995, PETERS 1995, DRAAIJERS ET AL. 1998, MOHR ET AL. 2005). Insbesondere ist die Erfassung gasförmiger Spezies unsicher, die bei Kronenrauminteraktionen metabolisiert und so in den Bestand eingebaut werden. Dies äußert sich im Vergleich mit mikrometeorologischen Messungen mit deutlichen Minderbefunden nach dem KRB-Verfahren bei der Bestimmung der Gesamt-Deposition von Stickstoff-Spezies, die nicht unerheblichem Maß gasförmig eingetragen werden (vgl. MOHR ET AL. 2005 und Abbildung 28).

Tabelle 9: Vergleich von Kronenraumbilanz- und Kartenwerten der Modellierung, lineare Regressionen der Gesamt-Deposition von SO_x-S, NO_y-N, NH_x-N, Ca, K, Mg 2005 (86 Waldstandorte)

2005	SO _x -S	NO _y -N	NH _x -N	N	Ca	K	Mg
n	86	86	86	86	86	86	86
y=ax; a=	0,76	0,77	0,69	0,74	0,82	0,53	0,78
r	0,68	0,46	0,40	0,44	-0,03	0,10	0,41
R ²	0,47	0,21	0,16	0,19	0,00	0,01	0,17

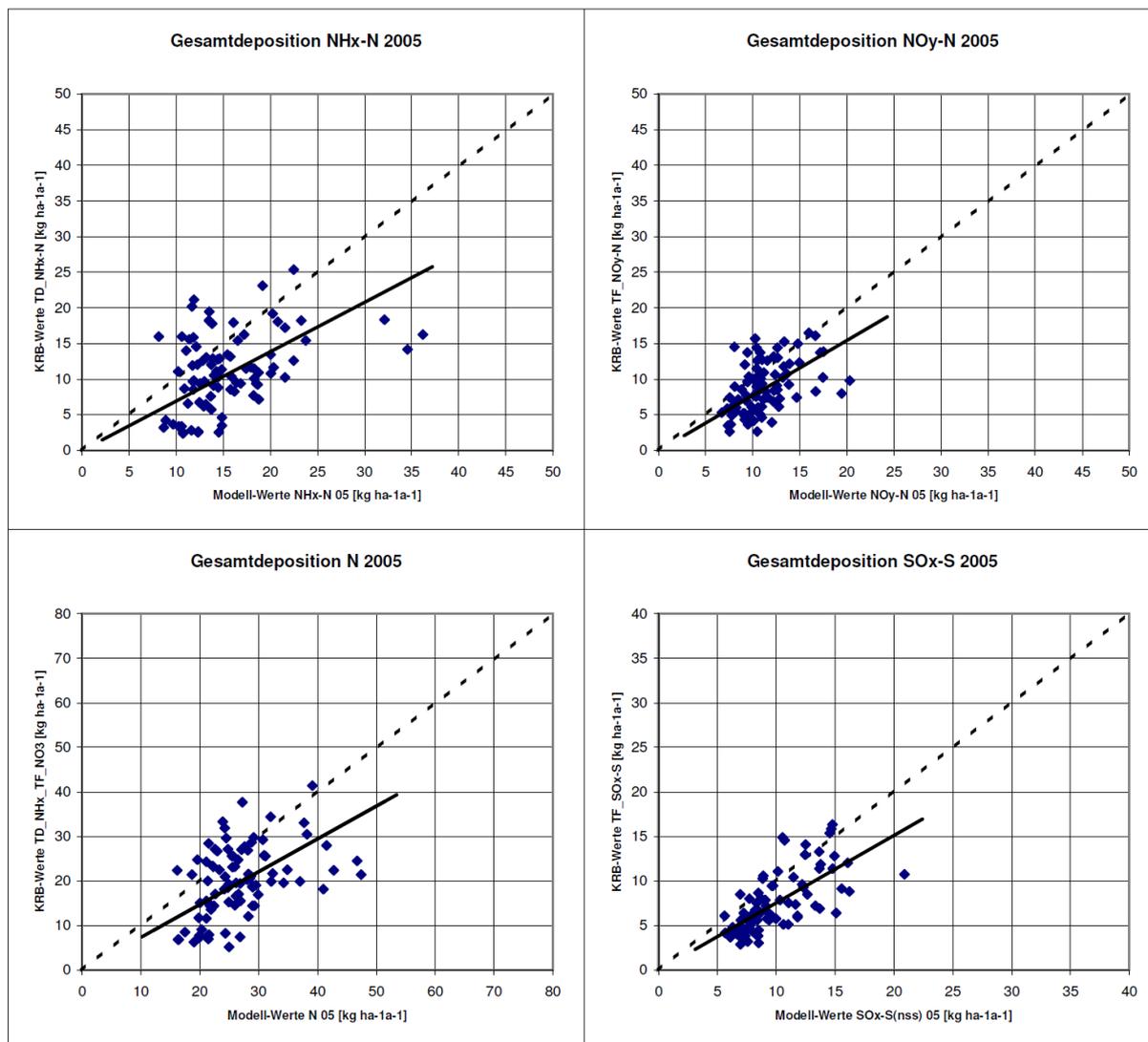


Abbildung 26: Vergleich der Modell-Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Gesamt-Deposition für NH_x-N, NO_y-N, N und SO_x-S 2005 mit Schätzungen der Gesamt-Deposition aus Kronenraumbilanz-Berechnungen

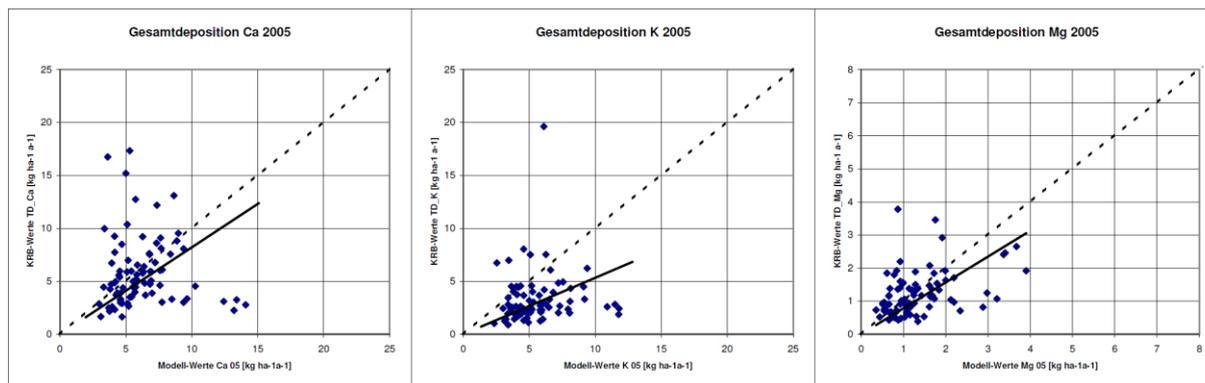


Abbildung 27: Vergleich der Modell-Ergebnisse der flächenhaften Kartierung der Gesamt-Deposition für Ca, K und Mg 2005 mit Schätzungen der Gesamt-Deposition aus Kronenraumbilanz-Berechnungen

Die vergleichende Gegenüberstellung der KRB-Ergebnisse nach den vorläufigen Berechnungen des vTI-WOI einerseits und der Modellierungs- und Kartierungs-Ergebnisse dieses Forschungsvorhabens andererseits, ist in den Diagrammen der Abbildung 26 für $\text{NH}_x\text{-N}$, $\text{NO}_y\text{-N}$, N und $\text{SO}_x\text{-S}$, in Abbildung 27 für Ca, K und Mg dargestellt. Die Statistik der Daten dieses Vergleichs (Anzahl der Daten, Steigung der linearen Trendlinie zwischen Modell- und KRB-Werten, Korrelation und Bestimmtheitsmaß) sind in Tabelle 9 aufgeführt.

Das Vergleichsergebnis ist für die Stickstoffspezies und für Schwefel verhältnismäßig gut. Die Hälfte der zum Vergleich herangezogenen Wald-Punkte (50%) liegt in der Gegenüberstellung im Bereich einer Differenz von $\pm 50\%$.

Bei der Gesamt-Deposition oxidierter Stickstoff-Verbindungen ($\text{NO}_y\text{-N}$) weist der Vergleich für die deutliche Mehrzahl (62%) der Wald-Punkte Ergebnisse beider Methoden innerhalb einer Differenz-Spanne von $\pm 50\%$ aus.

Beim Vergleich für die Gesamt-Deposition von Gesamt-Stickstoff ($\text{N} = \text{NH}_x\text{-N} + \text{NO}_y\text{-N}$) liegt immer noch die Mehrheit der Ergebnisse (56%) innerhalb dieser $\pm 50\%$ Spanne.

Bei der Gesamt-Deposition oxidiertem Schwefel ($\text{SO}_x\text{-S}$) weist der Vergleich ähnlich wie für $\text{NO}_y\text{-N}$ die deutliche Mehrzahl (62%) der Wald-Punkte Ergebnisse beider Methoden innerhalb einer Differenz-Spanne von $\pm 50\%$ aus. Bei $\text{SO}_x\text{-S}$ kann die beste Übereinstimmung ($r = 0,68$, $R^2 = 0,47$) zwischen beiden Schätzungen festgestellt werden (vgl. Tabelle 9).

Der Vergleich zwischen dem Modellierungs-Ergebnis und den KRB-Berechnungen der Gesamt-Deposition für die Basischen Kationen Ca, K und Mg ist grafisch in Abbildung 27 dargestellt. Die Streuung der Werte ist relativ groß. Bei Ca liegt die deutliche Mehrzahl (64%) der Ergebnisse der Gesamt-Deposition an den verglichenen Wald-Punkten im Differenz-Intervall von $\pm 50\%$. Der Zusammenhang der beiden betrachteten Ergebnisse ist jedoch insgesamt gering. Dies gilt auch für K, bei dem nur 23% der verglichenen Ergebnisse innerhalb eines Differenz-Intervalls von $\pm 50\%$ liegen. Bei Mg ist dieses Verhältnis besser, es liegen 62% aller verglichenen Gesamt-Depositions-Frachten

innerhalb einer Spanne der Abweichung von $\pm 50\%$.

Im Gegensatz zu SO_x -S und den N-Spezies, bei welchen höhere Befunde für die Gesamt-Depositions-Fracht im KRB-Ergebnisses nur innerhalb einer Spanne von bis zu +50% verglichen mit den Modellierungs-Ergebnissen vorliegen, finden sich bei den Basischen Kationen im KRB-Ergebnis zum Teil sehr deutlich höhere Gesamt-Depositionen als nach dem Modellierungs- und Kartierungsergebnis. Dies kann auf standörtlichen Besonderheiten beruhen, wie z. B. durch höhere Auswaschungsraten in Folge von kurzfristigen Mobilisierungen Basischer Kationen durch Boden-Kalkungen. Informationen die dies belegen sind bisher jedoch nicht verfügbar. Ein Zusammenhang mit der Waldform (Laub- oder Nadelwald) oder deutliche regionale Zusammenhänge innerhalb des Datenkollektivs können nicht festgestellt werden.

1.7.1 Vergleich der Modellierungs- und Kartierungsergebnisse mit mikrometeorologischen Messungen und Kronenraumbilanz-Berechnungen für Stickstoff-Spezies am Wald-Standort Augustendorf

In Abbildung 28 sind die Nass- und Trocken-Depositions-Flüsse von Stickstoff ($N = NH_x-N + NO_y-N$) am Kiefernwaldstandort Augustendorf in Niedersachsen als Kuchendiagramme in den Varianten der Modellierung in diesem Projekt für das Jahr 2005 (Abbildung 28, oben), nach der Messung in 2002 und 2003 mit Hilfe von mikrometeorologischen Methoden (Abbildung 28, Mitte) aus dem ANSWER-Projekt (MOHR ET AL. 2005) und ebenfalls für 2002-2003 nach den Berechnungen durch die Kronenraumbilanzmethode (MOHR ET AL. 2005) dargestellt (Abbildung 28, unten).

Der Anteil der Trocken-Deposition an der Gesamt-Deposition von N umfasst im Mittel 2002 und 2003 bei der mikrometeorologischen Messung 79%, der der Nass-Deposition 21% (Abbildung 28, Mitte).

Bei dem Kronenraumbilanz-Verfahren liegt Anteil der Trocken-Deposition an der Gesamt-Deposition von N bei nur 58% der Gesamt-Deposition, der der Nass-Deposition bei 42% (Abbildung 28, unten). Die N Gesamt-Deposition liegt nach der mikrometeorologischen Messung bei $55,0 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$, nach den KRB Ergebnissen bei $30,2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$, und ist damit um $24,8 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$, bzw. rund 45% niedriger als das Ergebnis der mikrometeorologischen Messung.

Die Ergebnisse dieses Forschungsvorhabens weisen im Jahr 2005 am Kiefernwald-Standort Augustendorf (Abbildung 28, oben) die N Gesamt-Deposition von $46,7 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ aus, mit einem Anteil der Trocken-Deposition von $33,2 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$, bzw. 71% und der Nass-Deposition von $13,6 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$, bzw. 29%. Die KRB-Berechnung weist für das gleiche Jahr 2005 am Standort Augustendorf eine N Gesamt-Deposition von $24,5 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$ aus.

Trotz der unterschiedlichen Bezugsjahre von mikrometeorologischer Messung (2002-2003) und Modellergebnis (2005) zeigt die Gegenüberstellung eine gute Übereinstimmung. Das Modellierungs- und Kartierungsergebnis der N-Gesamt-Deposition liegt leicht unterhalb des Befundes der mikrometeorologischen Messung am Nadelwald-Standort Augustendorf. Dies folgt jedoch dem Trend der KRB-Ergebnisse an diesem Standort zu geringeren Gesamtstickstoff-Einträgen im zeitlichen Verlauf.

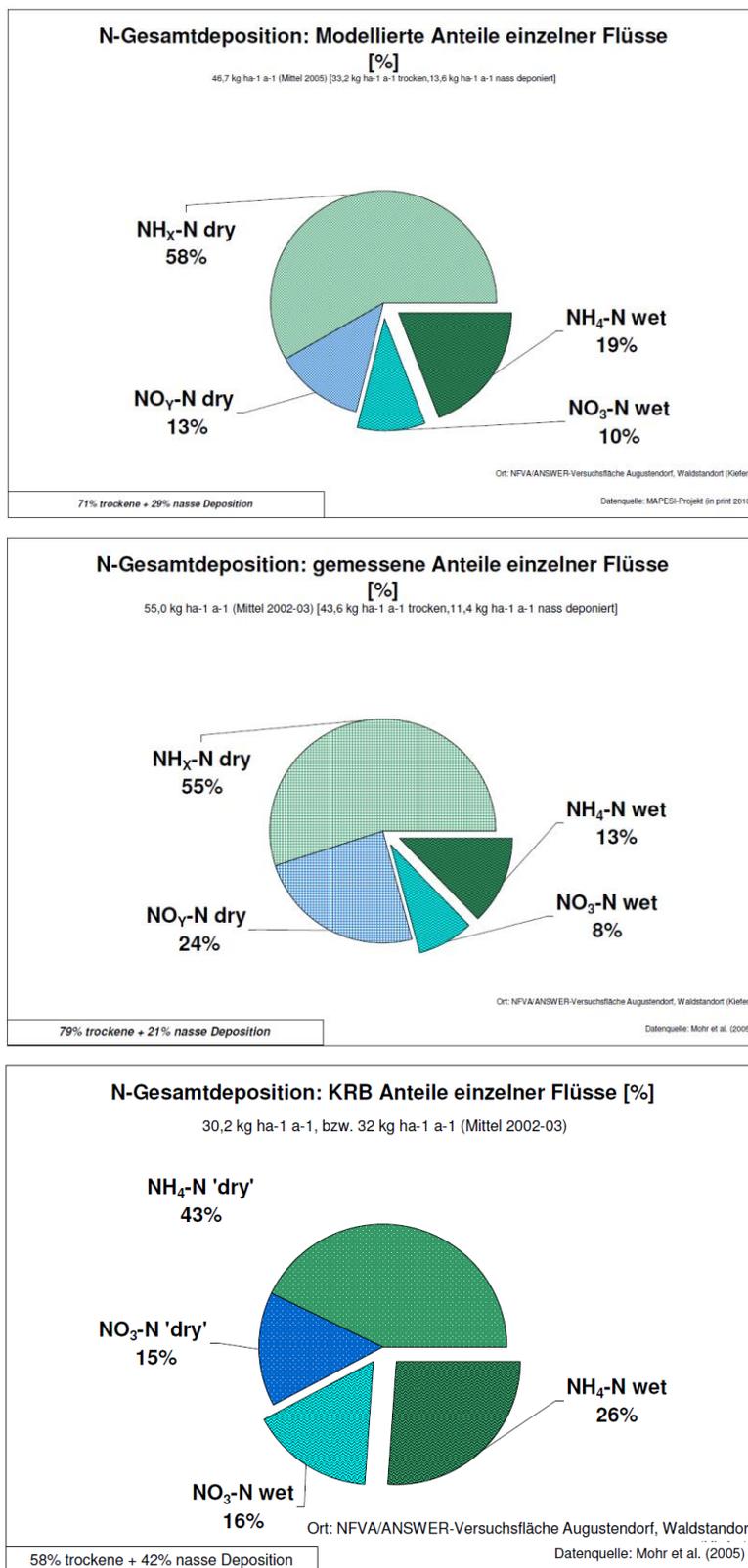


Abbildung 28: Stickstoff Gesamt-Deposition am Kiefernwaldstandort Augustendorf als Ergebnis dieses Projektes für 2005 (oben), nach mikrometeorologischen Methoden, Mittelwert aus 2002 u. 2003 (nach Mohr et al. 2005, Mitte) und nach Kronenraumbilanz-Berechnungen, Mittelwert aus 2002 u. 2003 (nach Mohr et al. 2005, unten)

Einheiten und Umrechnungsfaktoren

Verschiedene Umrechnungen sind notwendig zur Realisierung eines konsistenten Datenmanagements innerhalb des Gesamt-Projektes.

Notwendige Umrechnungen bei Daten der Nass-Deposition ergeben sich durch die Datenlieferung, die entweder als Depositions-Fluss [in $\mu\text{g ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{mg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{g ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ oder $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$], als Tagesmittel [in $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$, $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ or $\mu\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$], Konzentration im Niederschlag [in $\mu\text{g l}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{mg l}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{g l}^{-1} \text{a}^{-1}$] oder als Äquivalente [in $\text{meq l}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{eq l}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{keq l}^{-1} \text{a}^{-1}$; $\text{meq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{keq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$] vorliegen. Der Depositions-Fluss für Schwefel (S) und Stickstoffspezies (N) wird entweder als Sulfat (SO_4^{2-}), Nitrat (NO_3^-) und Ammonium (NH_4^+) oder als Stickstoff und Schwefel ($\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{SO}_4\text{-S}$) angegeben.

Daten der freien Protonen (H^+) werden entweder als Frachten [e.g. $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1} \text{H}^+$] oder als niederschlagsgewichteter pH (negativer Logarithmus der H^+ Ionen-Konzentration) angegeben. Die Einheiten für Jahres-Niederschlagsmengen sind gewöhnlich [$\text{mm a}^{-1} = \text{l m}^{-2} \text{a}^{-1}$].

Bei der Eingabe in die INS-Nass-Depositionsdatenbank erfolgt die einheitliche Umrechnung in Jahresfrachten [in $\text{g ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$] für alle Spezies. Zur weiteren Bearbeitung werden daraus Ionen-Äquivalente aller Spezies berechnet [in $\text{meq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$].

Die Berechnung von Niederschlags-Konzentrationen aus Jahres-Frachten [in $\text{g ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$] und dem Jahres-Niederschlag in [$\text{mm a}^{-1} = \text{l m}^{-2} \text{a}^{-1}$] an jeder Monitoring-Station wird schließlich die Einheit [$\text{meq l}^{-1} \text{a}^{-1}$] benutzt.

Die verwendeten Umrechnungsfaktoren der beschriebenen Datenumrechnungen sind in den Tabellen 10 und 11 aufgelistet.

Tabelle 10: Umrechnungsfaktoren für Elemente und Verbindungen von S- und N-Spezies:

$\text{SO}_2\text{-S}$	=	SO_2	·	0,5005	SO_2	=	$\text{SO}_2\text{-S}$	·	1,9981
$\text{SO}_4\text{-S}$	=	SO_4	·	0,3338	SO_4	=	$\text{SO}_4\text{-S}$	·	2,9961
$\text{HNO}_3\text{-N}$	=	HNO_3	·	0,2223	HNO_3	=	$\text{HNO}_3\text{-N}$	·	4,4988
NO-N	=	NO	·	0,4668	NO	=	NO-N	·	2,1423
$\text{NO}_2\text{-N}$	=	NO_2	·	0,3045	NO_2	=	$\text{NO}_2\text{-N}$	·	3,2845
$\text{NO}_3\text{-N}$	=	NO_3	·	0,2259	NO_3	=	$\text{NO}_3\text{-N}$	·	4,4268
$\text{NH}_3\text{-N}$	=	NH_3	·	0,8224	NH_3	=	$\text{NH}_3\text{-N}$	·	1,2159
$\text{NH}_4\text{-N}$	=	NH_4	·	0,7765	NH_4	=	$\text{NH}_4\text{-N}$	·	1,2879

Tabelle 11: Umrechnung zwischen Mol-Masse [g, kg] und Äquivalent-Masse [eq = mol_e]

	Wertigkeit	Molare Masse [g/mol]	Äquivalent-Masse [g/eq, g/mol _e]	Faktor mol _e → g	Faktor g → mol _e
Ca	2 ⁺	40.08	20.04	20.04	0.050
Cd	2 ⁺	112.40	56.20	56.20	0.018
Cl	1 ⁻	35.45	35.45	35.45	0.028
H	1 ⁺	1.01	1.01	1.01	0.992
K	1 ⁺	39.10	39.10	39.10	0.026
Mg	2 ⁺	24.31	12.15	12.15	0.082
Na	1 ⁺	22.99	22.99	22.99	0.043
N	1 ⁺	14.01	14.01	14.01	0.071
Pb	2 ⁺	207.20	103.60	103.60	0.010
S	2 ⁻	32.06	16.03	16.03	0.062

Literatur:

- Bleeker A, Draaijers GPJ, Klap JM, van Jaarsveld JA (2000) Deposition of acidifying compounds and base cations in Germany in the period 1978-1995. RIVM, Bilthoven, NL, Report no. 722108027.
- Dämmgen U, Erisman JW, Cape JN, Grünhage L, Fowler D (2005) Practical considerations for addressing uncertainties in monitoring bulk deposition. *Environmental Pollution* 134. 535-548
- Dämmgen U (2006) Atmospheric nitrogen dynamics in Hesse, Germany: Creating the data base – 1. Bulk deposition of acidifying and eutrophying species. *Landbauforschung Völkenrode* Vol. 56 No. 3-4 S. 117-138
- Draaijers GPJ, Van Ek R, Beuten W (1994) Atmospheric deposition in complex forest landscapes. *Boundary-Layer Meteorology* 69: 343-366.
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to estimate atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water Air and Soil Pollution* 85: 122-134.
- Draaijers GPJ, van Leeuwen EP, de Jong PGH, Erisman JW (1996) Deposition of base-cations in Europe and its role in acid neutralization and forest nutrition. RIVM, Bilthoven, NL, Report no. 722108017.
- Draaijers GPJ, Erisman JW, Spranger T, Vel E (1998) Quality and uncertainty aspects of forest deposition estimation using throughfall, stemflow and precipitation measurements. TNO-report TNO-MEP – R 98/093, Apeldoorn, 73p.
- Erisman JW, Draaijers GPJ (1995) Atmospheric deposition in relation to acidification and eutrophication. *Studies in Environmental Science*, 63, Elsevier, Amsterdam.
- Erisman JW, Möls H, Fonteijn P, Geusebroek M, Draaijers G, Bleeker A, van der Veen D (2003) Field intercomparison of precipitation measurements performed within the framework of the Pan European Intensive Monitoring Program of EU/ICP Forest. *Environmental Pollution* 125, 139–155.
- Gauger Th, Köble R, Smiatek G (1997) Kartierung kritischer Belastungskonzentrationen und –raten für empfindliche Ökosysteme in der Bundesrepublik Deutschland und anderen ECE-Ländern. Endbericht zum Forschungsvorhaben 106 01 061 im Auftrag des Umweltbundesamtes. Institut für Navigation der Universität Stuttgart. - Teil 1: Deposition Loads. 126 p. - Teil 2: Critical Levels. 75 p. - Teil 3: Informationssystem CANDIS. 27 p.
- Gauger Th, Köble R, Anshelm F (2000) Kritische Luftschadstoff-Konzentrationen und Eintragsraten sowie ihre Überschreitung für Wald- und Agrarökosysteme sowie naturnahe waldfreie Ökosysteme. Teil 1: Deposition Loads. Teil 2: Critical Levels. Forschungsvorhaben im Auftrag des BMU/UBA, FE-Nr. 297 85 079. Institut für Navigation, Universität Stuttgart.
[http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/INS_UBA29785079_1.pdf]
- Gauger Th, 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 concentrations of air pollutants in Germany and their comparison with Critical Loads and Critical Levels. Final Report on behalf of Federal Environmental Agency (Umweltbundesamt), Berlin. BMU/UBA FE-Nr. 299 42 210. [http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/EB_29942210_T1.pdf]

Gauger Th (2005) Nationale Luftreinhaltestrategie – Umsetzung von EU Anforderungen; Teilvorhaben 02: Aufbereitung, Nutzung und Weiterentwicklung nationaler, hochauflösender Datensätze zu Konzentrationen und Depositionen von Luftschadstoffen. Forschungsvorhaben im Auftrag des Umweltbundesamtes BMU/UBA 203 43 257/02.
[http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/EB_20343257_02.PDF]

Gauger Th, Haenel HD, Rösemann C, Dämmgen U, Bleeker A, Erisman JW, Vermeulen AT, Schaap M, Timmermanns RMA, Bultjes PJH, Duyzer JH (2008) National Implementation of the UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution (Effects) / Nationale Umsetzung UNECE-Luftreinhaltekonvention (Wirkungen): Part 1: Deposition Loads: Methods, modelling and mapping results, trends. BMU/UBA FE-Nr. 204 63 252. UBA-Texte 38/08 (1). ISSN 1862-4804 . Teil 2: Wirkungen und Risikoabschätzungen: Critical Loads, Biodiversität, Dynamische Modellierung, Critical Levels Überschreitungen, Materialkorrosion. BMU/UBA 204 63 252. UBA-Texte 38/08 (2). ISSN 1862-4804.
[<http://www.umweltdaten.de/publikationen/fpdf-l/3646.pdf> & <http://www.umweltdaten.de/publikationen/fpdf-l/3647.pdf>]

ICP Modelling and Mapping (1996) Manual on Methodologies and Criteria for Mapping Critical Levels/Loads and geographical areas where they are exceeded. UBA-Texte 71/96
[http://www.umweltdaten.de/uid/manual/manual_mapping.pdf]

ICP Modelling and Mapping (2004) Manual on Methodologies and Criteria for Mapping Critical Levels/Loads and geographical areas where they are exceeded. UBA-Texte 52/
[<http://www.icpmapping.org/>]

Lövblad G, Erisman JW, Fowler D (eds.) (1993) Models and methods for the quantification of atmospheric input to ecosystems. Proceedings of an international workshop on the deposition of acidifying substances, Göteborg (Sweden), 3-6 November 1992. The Nordic Council of Ministers. Copenhagen. Report No. Nord 1993:573

Mohr K, Meesenburg H, Horváth B, Meiwes KJ, Schaaf S, Dämmgen U (2005) Bestimmung von Ammoniak-Einträgen aus der Luft und deren Wirkungen auf Waldökosysteme (ANSWER-Projekt). Schlussbericht. IM AUFTRAG DES UMWELTBUNDESAMTES BMU/UBA 200 88 213. Oldenburg, Göttingen und Braunschweig, März 2005. Landbauforschung Völkenrode. Sonderheft 279. 113 S.

Peters K (1995) Methoden zur Bestimmung der trockenen Deposition auf Pflanzenoberflächen. UWSF- Z. Umweltchem. Okotox. 7 (6) S. 337-352

Smiatek G (1998) Mapping land use for modelling biogenic and anthropogenic emissions. The Proceedings of Symposium '98, Boston Southampton 2000. Borrell, P. M. and Borrell P. [Hrsg.] WIT press, UK, ISBN 1-85312-743-4, 1765 pp., 1998.

Smiatek G, Köble R(1996) Mapping land use and land cover in Europe. In: The Proceedings of the EUROTRAC Symposium '96 (ed.: P.M. Borrell, P. Borrell, K. Kelly, T. Cvitas, W.Seiler), Vol. 2, 69 - 72. Computational Mechanics Publications, Southampton.

Spranger T (1992) Erfassung und ökosystemare Bewertung der atmosphärischen Deposition und weiterer oberirdischer Stoffeinträge im Bereich der Bornhöveder Seenkette. EcoSys, Beiträge zur Ökosystemforschung. Suppl. Bd. 4. 153 S.

