texte 107/2018

Auswirkungen der Schwermetall-Emissionen auf Luftqualität und Ökosysteme in Deutschland – Quellen, Transport, Eintrag, Gefährdungspotenzial

Teil 2: Integrative Datenanalyse, Erheblichkeitsbeurteilung und Untersuchung der gegenwärtigen Regelungen und Zielsetzungen in der Luftreinhaltung und Vergleich mit ausgewählten Anforderungen, die sich in Bezug auf den atmosphärischen Schadstoffeintrag aus den verschiedenen Rechtsbereichen ergeben Abschlussbericht

TEXTE 107/2018

Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit

Forschungskennzahl 3713 63 253 UBA-FB 002635

Auswirkungen der Schwermetall-Emissionen auf Luftqualität und Ökosysteme in Deutschland - Quellen, Transport, Eintrag, Gefährdungspotenzial

Teil 2: Integrative Datenanalyse, Erheblichkeitsbeurteilung und Untersuchung der gegenwärtigen Regelungen und Zielsetzungen in der Luftreinhaltung und Vergleich mit ausgewählten Anforderungen, die sich in Bezug auf den atmosphärischen Schadstoffeintrag aus den verschiedenen Rechtsbereichen ergeben

Abschlussbericht

von

Prof. Dr. Winfried Schröder, Dr.-Ing. Stefan Nickel Universität Vechta, Vechta

Dr. Angela Schlutow, unter Mitarbeit von Dr. Hans-Dieter Nagel, Thomas Scheuschner ÖKO-DATA, Ahrensfelde

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Impressum

Herausgeber:

Umweltbundesamt Wörlitzer Platz 1 06844 Dessau-Roßlau Tel: +49 340-2103-0 Fax: +49 340-2103-2285 info@umweltbundesamt.de Internet: www.umweltbundesamt.de

Durchführung der Studie:

Universität Vechta, Lehrstuhl für Landschaftsökologie (LLÖK) Postfach 1553 49364 Vechta

ÖKO-DATA, Ökosystemanalyse und Umweltdatenmanagement / IBE GmbH Lessingstraße 16 16356 Ahrensfelde

Abschlussdatum:

April 2017

Redaktion:

Fachgebiet II 4.3 Luftreinhaltung und terrestrische Ökosysteme Gudrun Schütze

Publikationen als pdf: http://www.umweltbundesamt.de/publikationen

ISSN 1862-4359

Dessau-Roßlau, Dezember 2018

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autorinnen und Autoren.

Kurzbeschreibung

Die Erfassung der atmosphärischen Deposition, der Ökosysteme ausgesetzt sind, kann mit technischen und biologischen Sammlern oder auch mit chemischen Transportmodellen (CTM) erfolgen. In dieser Studie wurden Expositionsdaten der Bioindikation mit Moosen, Blättern, Nadeln und Auflagehorizonten von Böden mit anhand von Messungen aus technischen Depositionssammlern validierten Ergebnissen zweier Depositionsmodelle (LOTOS-EUROS, EMEP) zusammengeführt und ausgewertet.

Die Vergleiche zeigen, dass die Depositionsmodellierungen beider CMT (Cd, Pb, 2005, 2007-2011) in Deutschland voneinander abweichen, insbesondere in Bereichen mit hoher atmosphärischer Schadstoffbelastung (z.B. Pb im Ruhrgebiet oder Cd in Nordrhein-Westfalen). Weiter zeigt sich, dass die räumliche Verteilung geostatistisch geschätzer Schwermetallgehalte in Moosen bei Cd, Cu, Ni, Pb und Zn (2005) mit den entsprechenden Depositionsmodellierungen (LOTOS-EUROS) gut übereinstimmen, während dieses bei As, Cr und V nicht der Fall ist. Ferner ergeben sich gute Übereinstimmungen der zeitlichen Trends (Verringerungen) der modellierten Cd- und Pb-Depositionen (EMEP, 1998-2011) sowie der Elementgehalte in einjährigen Fichtentrieben (Cd, Pb) bzw. Kiefernnadeln (Pb) aus der Umweltprobenbank des Bundes.

Die in Deutschland zur Verfügung stehenden Beurteilungswerte für Schwermetallflüsse zum Schutz der menschlichen Gesundheit und der terrestrischen Ökosysteme wurden analysiert, hinsichtlich der Möglichkeiten und Verwendbarkeit zur Gefährdungsabschätzung bewertet und für die Beurteilung im Vergleich zu den mit LOTOS-EUROS modellierten Einträgen (Berichtsteil 1 dieses Projektes) aufbereitet. Für einen Vergleich der Beurteilungswerte wurden deutschlandweit Critical Loads für Cadmium-, Blei- und Quecksilber-Einträge auf Basis neuerer Eingangsdaten im Maßstab 1:1 Mio. aktualisiert und für weitere Schwermetalle (Arsen, Kupfer, Zink, Chrom und Nickel) neu berechnet. Aufgrund der methodischen Unterschiede ihrer Ableitung und aufgrund unterschiedlicher Schutzniveaus, Schutzziele und Wirkungsbezügen sind die Beurteilungswerte der einzelnen gesetzlichen und sonstigen Regelungen nur bedingt untereinander und mit den Critical Loads vergleichbar. Für zwei bisher nicht regulierte Metalle (Thallium und Vanadium) wurde eine Bilanz von Ein- und akzeptablen Austrägen berechnet, um das Besorgnispotenzial grob abzuschätzen.

Eine Unsicherheitsanalyse ergab die höchste mögliche Unsicherheit bei der Schätzung der Metallgehalte in der Biomasse, die durch Ernte dem Ökosystem entzogen wird. Die höchste Sensitivität hat die Critical Loads-Berechnung gegenüber Änderungen des pH-Wertes. Die Critical Loads zum Schutz der menschlichen Gesundheit (CL(M)_{drink}) und zum Schutz der Ökosysteme CL(M)_{eco}) für Arsen, Nickel, Zink und Chrom wurden deutschlandweit 2009-2011 nicht überschritten. CL(M)_{drink} und CL(M)_{eco} werden durch Quecksilber- und Bleidepositionen in einigen Regionen Deutschlands (insbesondere Brandenburg, Leipziger Bucht, Sachsen-Anhalt, Ruhrgebiet) mit Waldvegetation nicht eingehalten. Hinzu kommt eine Überschreitung des CL(Cu)_{eco} durch Kupfereinträge 2010 im Berliner Umland und im Ruhrgebiet. Nicht auszuschließen sind auch Überschreitungen von $CL(Cd)_{drink}$ und CL(Cd)_{food} im worst case (maximale Deposition trifft auf kleinste CL), wie er zwar im deutschen Datensatz maßstabsbedingt nicht vorkommt, aber kleinräumig vorkommen könnte. Diese Risikobewertung basiert auf dem Depositionsdatensatz, der nur atmosphärische Einträge enthält, aber nicht die weiteren Einträge z. B. aus der Düngung.

Die Untersuchungen legen schlussfolgernd die Empfehlung nahe, die Erfassung und Bewertung atmosphärischer Stoffeinträge methodisch breiter und tiefer abzusichern. Dies gilt insbesoondere für die räumlich differenzierte Validierung und die Spezifikation der Exposition für Ökosystemtypen. Hierzu bedarf es der Verwendung identischer Daten für die Emissionen und die Meteorologie zur Depositionsmodellierung mit chemischen Transportmodellen wie EMEP und LOTOS-EUROS. Für die damit abgebildeten Zeiträume gültige Daten der atmosphärischen Deposition, die mit technischen Sammlern und mit Biomonitoring-Verfahren methodisch jeweils harmonisiert erhoben wurden, müssten werden verwendet. Für diese durch den integrativ-komplementären Ansatz ermittelten Expositionsdaten sollte geprüft werden, ob diese sich für die in den Ökosystemintegritätsvorhaben des UBA klassifizierten und kartierten Ökosysteme (Jenssen et al. 2013, 2015; Nickel et al. 2015, 2016, 2017 a, 2017 b; Schröder et al. 2015, 2016, 2017) fachlich sinnvoll spezifizieren lasssen.

Abstract

Atmospheric deposition of heavy metals (HM) can be determined by use of chemical transport models (CTM), technical devices and biomonitors. In the present study, data on HM concentration in mosses, leaves, needles and soil, as well as data on HM deposition derived from two CTM (LOTOS-EUROS, EMEP) have been compiled and investigated for their statistical relationships.

A comparison of total atmospheric deposition in Germany modelled by LOTOS-EUROS and EMEP (Cd, Pb, 2005, 2007-2011) shows that both CTM differs significantly, primarily in highly impacted regions as for instance in the Ruhr district (Pb) and in North Rhine-Westfalia (Cd). It is found that the spatial patterns of geostatistically estimated Cd, Cu, Ni, Pb und Zn concentrations in moss (2005) and respective total modelled HM deposition (LOTOS-EUROS) are in good agreement, while this is not in case with As, Cr und V. Temporal declining trends of modelled total deposition of Cd and Pb (EMEP, 1998-2011) correspond well with respective concentrations in one-year old shoots from spruce (Cd, Pb) and pine needles (Pb) from the German Environmental Specimen Bank.

The critical values for heavy metal fluxes for protecting the human health and ecosystem's integrity, which are available in Germany, were analyzed, assessed with regard to the possibilities and applicability of the risk assessment, and were prepared for evaluation in comparison to the LOTOS-EUROS-modelled inputs (Part 1 of this report). For a comparison of the critical values, the critical loads for cadmium, lead and mercury inputs were updated for Germany on a scale of 1:1 Mio, and critical loads for additional heavy metals (arsenic, copper, zinc, chromium and nickel) were computed respectively. Due to the methodological differences of their derivation, the critical loads. The sometimes major differences exist due to different levels of protection, various protective goods and the effect relation-ship.

For 2 unregulated metals (Thallium and Vanadium) a preliminary rough estimate of the risk of inputs in the receptors was provided as a calculated balance for in- and acceptable outputs.

The uncertainty analysis shows, that the highest deviations occurred in the metal contents in plants used to calculate the output through the harvesting of the biomass. The critical load calculation has the highest sensitivity to changes in the pH value. The critical loads for heavy metal fluxes for protecting the human health ($CL(M)_{drink}$) and ecosystem's integrity $CL(M)_{eco}$) for arsenic, nickel, zinc and chromium were not exceeded in Germany for 2009-2011. $CL(M)_{drink}$ and $CL(M)_{eco}$ are exceeded by Hg and Pb inputs, especially in the low rainfall regions of Germany (Brandenburg, lowlands of Saxony-Anhalt, Leipzig Bay, Ruhr valley) with wood vegetation; in addition $CL(Cu)_{eco}$ is exceeded by copper deposition 2010 in the area surrounding Berlin and in the Ruhr valley. The Critical Loads for cadmium for the protection of drinking water $CL(Cd)_{drink}$ and for the protection of human food from wheat products $CL(Cd)_{food}$ are not exceeded in the German data set 2016 due to atmospheric depositions in 2010, but in the worst case scenario the maximum atmospheric deposition in 2010 could exceeded the lowest $CL(Cd)_{drink}$ and $CL(Cd)_{food}$. That assessment of risks is based on deposition from the atmosphere, which represents only a fraction of the inputs compared to the inputs from the use of fertilizers.

This study suggests the conclusive recommendation to methodically deepen and broaden the assessment and evaluation of atmospheric deposition. This is especially true for the spatial validation and specification of exposure for ecosystem types. To this end, identical data for emission and meteorology are needed for comparatively model atmospheric deposition with chemical transport models such as LOTOS-EUROS and EMEP. For the respective time intervals empirical deposition data collected according harmonized methods by of technical and biological samples, respectively, have to be used for validation. The results yielded by this integrative and complementary approach should be examined whether they enable to differentiate the exposure of the ecosystem types (ANOEST) classified and mapped in the UBA research project on ecosystem integrity (Jenssen et al. 2013, 2015; Nickel et al. 2015, 2016, 2017 a, 2017 b; Schröder et al. 2015, 2016, 2017).

Inhaltsverzeichnis

Inhal	tsverzeich	nis	VI
Abbil	dungsverz	zeichnis	VIII
Tabe	llenverzei	chnis	XII
Abkü	rzungsver	zeichnis	XVII
1	Einleitun	g	1
2	Integrati	ve Datenanalyse	1
	2.1	Hintergrund und Ziele	1
	2.2	Überblick über Material und Methodik	2
	2.2.1	Chemische Transportmodelle	2
	2.2.2	Bioindikationsmessnetze	2
	2.2.3	Methodik der integrativen Datenanalyse	8
	2.3	Vergleich unterschiedlicher Modellierungen der atmosphärischen Schwermetalldeposition (LOTOS-EUROS, EMEP)	13
	2.3.1	Material und Methoden	13
	2.3.2	Ergebnisse	14
	2.3.3	Diskussion und Schlussfolgerungen	21
	2.4	Vergleich von LOTOS-EUROS und EMEP-Modellierungen mit gemessenen Schwermetallkonzentrationen in Moosen	22
	2.4.1	Material und Methoden	23
	2.4.2	Ergebnisse	23
	2.4.3	Diskussion und Schlussfolgerungen	32
	2.5	Vergleich von LOTOS-EUROS- und EMEP-Modellierungen mit geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallkonzentrationen in Moosen	34
	2.5.1	Material und Methoden	34
	2.5.2	Ergebnisse	35
	2.5.3	Diskussion und Schlussfolgerungen	48
	2.6	Vergleich von LOTOS-EUROS- und EMEP-Modellierungen mit Daten aus der Umweltprobenbank	49
	2.6.1	Material und Methoden	50
	2.6.2	Ergebnisse	51
	2.6.3	Diskussion und Schlussfolgerungen	58
	2.7	Vergleich von LOTOS-EUROS- und EMEP-Modellierungen mit Daten aus der Level- II-Datenbank	59
	2.7.1	Material und Methoden	59
	2.7.2	Ergebnisse	60

	2.7.3	Diskussion und Schlussfolgerungen	70
	2.8	Statistische Modellierung und Berechnung hochauflösender Depositionskarten mittels Regression Kriging	71
	2.8.1	Material und Methoden	71
	2.8.2	Ergebnisse	73
	2.8.3	Diskussion und Schlussfolgerungen	78
	2.9	Synoptischer Vergleich	79
	2.9.1	Korrelationsanalytische Vergleiche	79
	2.9.2	Vergleich unterschiedlicher Depositionsschätzungen	81
	2.9.3	Flächenschätzungen der atmosphärischen Deposition mittels Regression-Kriging	81
3	Erheblio	chkeitsbeurteilung	85
	3.1	Einführung	85
	3.2	Zusammenstellung von Beurteilungswerten für Schwermetalle	86
	3.2.1	Vorgaben von Beurteilungswerten aus gesetzlichen Regelungen und Empfehlungen	86
	3.2.2	Besorgnispotenzial bisher nicht regulierter Metalle	93
	3.2.3	Zusammenfassung und Vergleich der Beurteilungswerte	95
	3.3	Ermittlung von Critical Loads für Schwermetalleinträge	100
	3.3.1	Einleitung	100
	3.3.2	Geografische Datengrundlagen für den deutschen Critical Load-Datensatz	101
	3.3.3	Ableitungen und Regionalisierung der ökologischen Rezeptoren	102
	3.3.4	Methodischer Ansatz und allgemeine Grundlagen	103
	3.3.5	Erhebung und Berechnung der Eingangsdaten	104
	3.3.6	Ergebnisse und regionale Verteilung der Critical Loads in Deutschland	121
	3.3.7	Statistische Verteilung der Critical Loads	138
	3.3.8	Unsicherheiten analyse	139
	3.3.9	Überschreitung der Critical Loads	155
	3.4	Vergleich und Diskussion der Beurteilungswerte, Risikobewertung der Schwermetalleinträge	172
	3.4.1	Schutz der menschlichen Gesundheit	172
	3.4.2	Schutz der terrestrischen Ökosysteme, insbesondere des Bodens, vor schädlichen Veränderungen	177
	3.5	Zusammenfassende Schlussfolgerungen	182
4	Queller	verzeichnis	185
5	Anhang	sverzeichnis	197

Abbildungsverzeichnis*

Abbildung 1:	Übersichtskarte der LE und EMEP-Grids bzw. Messnetze ausgewählter Biomonitoringprogramme	3
Abbildung 2:	Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für den Zeitraum 2007-2011 gemittelten Cd-Deposition (links) bzw. Pb-Deposition (rechts)	18
Abbildung 3:	Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für das Jahr 2011 berechneten nutzungsspezifischen Cd-Deposition (links) bzw. Pb- Deposition (rechts) für Grasland	18
Abbildung 4:	Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für das Jahr 2011 berechneten nutzungsspezifischen Cd-Deposition (links) bzw. Pb- Deposition (rechts) für Nadelwald	19
Abbildung 5:	Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für das Jahr 2011 berechneten nutzungsspezifischen Cd-Deposition (links) bzw. Pb- Deposition (rechts) für Laubwald	19
Abbildung 6:	Zeitliche Trends der mit LE- bzw. dem EMEP-Modell berechneten Cd- Depositionen (oben) bzw. Pb-Depositionen (unten)	20
Abbildung 7:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten im Moos in Deutschland (oben) bzw. Europa (unten) und modellierter Cd- Gesamtdeposition aus dem EMEP-Modell (links) bzw. LE (rechts)	27
Abbildung 8:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Pb-Gehalten im Moos in Deutschland (oben) bzw. Europa (unten) und modellierter Pb- Gesamtdeposition aus dem EMEP-Modell (links) bzw. LE (rechts)	29
Abbildung 9:	Zeitliche Trends der mittels EMEP berechneten Depositionen mit Trendgeraden und Cd-/Pb-Gehalte von Moosen in Deutschland (Cd: oben; Pb: unten)	30
Abbildung 10:	Streudiagramm für die Beziehung zwischen den geostatistischen Flächenschätzungen der Cd-Gehalte im Moos in Deutschland (oben) bzw. Europa (unten) und modellierter Cd-Gesamtdeposition aus dem EMEP-Modell (links) bzw. LE (rechts)	38
Abbildung 11:	Abweichungen der modellierten Cd-Gesamtdeposition (Mittelwerte der Jahre 2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Cd-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	39
Abbildung 12:	Abweichungen der modellierten Pb-Gesamtdeposition (Mittelwerte der Jahre 2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Pb-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	39
Abbildung 13:	Streudiagramm für die Beziehung zwischen den geostatistischen Flächenschätzungen der Pb-Gehalte im Moos in Deutschland (oben) bzw. Europa (unten) und modellierter Pb-Gesamtdeposition aus dem EMEP-Modell (links) bzw. LE (rechts)	40
Abbildung 14:	Korrelation zwischen den geostatistischen Flächenschätzungen der Cd-Konzentrationen (links) und Pb-Konzentrationen im Moos (2005)	

	und der entsprechenden LE-Depositionsmodellierung in Abhängigkeit vom EMEP/LE-Quotienten	41
Abbildung 15:	Abweichungen der modellierten As-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten As-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	44
Abbildung 16:	Abweichungen der 50%-Perzentile der As-Gehalte im Oberboden (LABO 1998, 2003) vom bundesweiten Median	44
Abbildung 17:	Abweichungen der modellierten Cr-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Cr-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	45
Abbildung 18:	Abweichungen der modellierten Cu-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Cu-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	45
Abbildung 19:	Abweichungen der modellierten Ni-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Ni-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	46
Abbildung 20:	Abweichungen der modellierten V-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten V-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	46
Abbildung 21:	Abweichungen der modellierten Zn-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Zn-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	47
Abbildung 22:	Räumliche Verteilung der Gesamtschwermetallindizes als mittlere Abweichungen der modellierten As-, Cd-, Cr-, Cu-, Ni-, Pb-, V- und Zn- Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten As-, Cd-, Cr-, Cu-, Ni-, Pb-, V- und Zn-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median	47
Abbildung 23:	Unterschiede der Gesamtschwermetallindizees (LE, Moos- Monitoring) bezogen auf die einzelnen Bundesländer	48
Abbildung 24:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) bzw. EMEP-Modellierung (unten)	52
Abbildung 25:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Pb-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) bzw. EMEP-Modellierung (unten)	53
Abbildung 26:	Zeitliche Trends der mittels EMEP berechneten Depositionen und Cd- Gehalte in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) mit Trendgeraden	54
Abbildung 27:	Zeitliche Trends der mittels EMEP berechneten Depositionen und Pb- Gehalte in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) mit Trendgeraden	54
Abbildung 28:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) und EMEP-Modellierung (unten)	62
Abbildung 29:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Pb-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) und LE-Modellierung,	

	nutzungsspezifisch (oben), LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) und EMEP-Modellierung (unten)	62
Abbildung 30:	Zeitliche Trends der mittels EMEP berechneten Depositionen und Cd- /Pb-Gehalte in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) mit Trendgeraden (Cd: oben; Pb: unten)	63
Abbildung 31:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten in der Auflagehorizonten (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) und EMEP-Modellierung (unten)	67
Abbildung 32:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Pb-Gehalten in der Auflage (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) und EMEP-Modellierung (unten)	67
Abbildung 33:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cu-Gehalten in der Auflage (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel	69
Abbildung 34:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cr-Gehalten in der Auflage (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel	69
Abbildung 35:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Ni-Gehalten in der Auflage (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel	69
Abbildung 36:	Streudiagramme für die Beziehung zwischen Zn-Gehalten in der Auflage (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel	70
Abbildung 37:	Kenngrößen der Variogramm-Analyse	72
Abbildung 38:	Regressionsmodell für den Zusammenhang zwischen Flächenschätzungen der Cd-Gehalte (links) und Pb-Gehalte (rechts) im Moos (Jahr 2005) und entsprechend mit LE modellierter Gesamtdeposition (Jahr 2005)	73
Abbildung 39:	Räumliche Verteilung der atmosphärischen Cd-Deposition in Deutschland (2005), berechnet mittels Regression-Kriging	74
Abbildung 40:	Räumliche Verteilung der atmosphärischen Pb-Deposition in Deutschland (2005), berechnet mittels Regression-Kriging	75
Abbildung 41:	Regressionsmodell für den Zusammenhang zwischen Flächenschätzungen der As-Gehalte (links) und Ni-Gehalte (rechts) im Moos (Jahr 2005) und entsprechend mit LE modellierter Gesamtdeposition (Mittel der Jahre 2009-2011)	76
Abbildung 42:	Räumliche Verteilung der atmosphärischen As-Deposition in Deutschland (2005), berechnet mittels Regression-Kriging	77
Abbildung 43:	Räumliche Verteilung der atmosphärischen Ni-Deposition in Deutschland (2005), berechnet mittels Regression-Kriging	78
Abbildung 44:	Korrelationskoeffizienten nach Spearman (r _s) für die Beziehung zwischen LE-Depositionsberechnung (2009-2011) und gemessener Schwermetallkonzentration im Moos des Jahres 2005 (links) bzw. geostatistischer Flächenschätzung der Schwermetallkonzentration im Moos des Jahres 2005 (rechts)	79
Abbildung 45:	Korrelationskoeffizienten nach Spearman (rs) für die Beziehung zwischen LE-Depositionsberechnung und geostatistischer	

	Flächenschätzung der Schwermetallkonzentration im Moos gruppiert nach Trocken-, Nass- und Gesamtdeposition	79
Abbildung 46:	Vergleich der Zentraltendenzen (Medianwerte) der Cd- und Pb- Gesamtdeposition (μg/m²a), für das Jahr 2005 jeweils mit fünf unterschiedlichen Methoden berechnet	83
Abbildung 47:	Critical Load für Blei mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität	123
Abbildung 48:	Critical Load für Blei mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion	124
Abbildung 49:	Critical Load für Cadmium mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität	125
Abbildung 50:	Critical Load für Cadmium mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion.	126
Abbildung 51:	Critical Load für Cadmium mit dem Schutzziel Nahrungsmittelqualität	127
Abbildung 52:	Critical Load für Quecksilber mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität	128
Abbildung 53:	Critical Load für Quecksilber mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion	129
Abbildung 54:	Critical Load für Arsen mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität.	130
Abbildung 55:	Critical Load für Arsen mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion	131
Abbildung 56:	Critical Load für Kupfer mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität	132
Abbildung 57:	Critical Load für Kupfer mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion	133
Abbildung 58:	Critical Load für Nickel mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion	134
Abbildung 59:	Critical Load für Zink mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion.	135
Abbildung 60:	Critical Load für Chrom mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität	136
Abbildung 61:	Critical Load für Chrom mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion	137
Abbildung 62:	Vergleich der Anteile der Ackerflächen Deutschlands in den Klassen des Critical Loads für Cadmium für die Schutzgüter Ökosystem (CL(Cd) _{eco}) und Trinkwasser (CL(Cd) _{drink}), jeweils in den Varianten "Fruchtfolge nach guter fachlicher Praxis" (links), "Monokultur Mais" (Mitte), "Monokultur Weizen" (rechts)	144
Abbildung 63:	Critical Load für Cadmium zum Schutz der menschlichen Gesundheit bei Verzehr von Weizenprodukten im Falle einer flächendeckenden Monokultur mit Weizen auf den Ackerflächen Deutschlands	145
Abbildung 64:	Vergleich der Anteile der Ackerflächen Deutschlands in den Klassen des Critical Loads für Cadmium für das Schutzgut menschliche Gesundheit (CL(Cd) _{food} , in der Variante "Fruchtfolge nach guter fachlicher Praxis" (links), "Monokultur Weizen" (rechts)	146
Abbildung 65:	Depositionsdaten (punkt- und flächenhafte Darstellung) und Critical- Load-Datensatz	155
Abbildung 66:	Atmosphärische Gesamtdeposition von Cadmium (links) und Vanadium (rechts) im Jahr 2010 auf den verwendeten Rezeptorflächen (Kapitel 3.3.3)	156
Abbildung 67:	Atmosphärische Gesamtdeposition für Cadmium (links) und Blei (rechts) für das Jahr 2010 aus dem Berichtsteil 1 dieses Projektes	157

Abbildung 68:	Atmosphärische Gesamtdeposition für Cadmium (links) und Blei (rechts) für das Jahr 2010 aus Ilyin et al. 2012 a1	.57
Abbildung 69:	Flächenanteile an der Rezeptorfläche mit Critical-Load- Überschreitung durch Blei-Depositionen aus der Luft, Schutzziel Trinkwasserqualität1	.62
Abbildung 70:	Flächenanteile an der Rezeptorfläche mit Critical-Load- Überschreitung mit Blei-Depositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität1	.62
Abbildung 71:	Flächenanteile an der Rezeptorfläche mit Critical-Load- Überschreitung mit Kupfer-Depositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität1	.63
Abbildung 72:	Beurteilungswerte für Schwermetallflüsse zum Schutz der menschlichen Gesundheit und Darstellung ihrer Unter- oder Überschreitung durch Einträge aus der Luft (für Hg: EMEP im Jahr 2013; für alle anderen: Deutscher Datensatz im Jahr 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes)	.73
Abbildung 73:	Beurteilungswerte für Schwermetallflüsse zum Schutz der Ökosysteme und Darstellung ihrer Unter- oder Überschreitung durch Einträge aus der Luft (für Hg: EMEP im Jahr 2013; für alle anderen: Deutscher Datensatz im Jahr 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes)1	.78

*sämtlich eigene Darstellungen

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Übersicht der in unterschiedlichen Monitoringprogrammen untersuchten Schwermetalle6
Tabelle 2:	Übersicht der verwendeten Daten inkl. Beprobungsjahre7
Tabelle 3:	Emmissionstrends für Deutschland [in t] seit 1990 (NaSE 2017)8
Tabelle 4:	Methodenbausteine und Datengrundlagen zur integrativen Datenauswertung zum atmosphärischen Stoffeintrag9
Tabelle 5:	Kennwerte der modellierten Cd- und Pb-Gesamtdeposition bezogen auf das 50 km mal 50 km aufgelöste EMEP-Grid über Deutschland (n = 204)
Tabelle 6:	Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb- Gesamtdepositionen über Deutschland17
Tabelle 7:	Kennwerte zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Depositionen nach LE und EMEP21
Tabelle 8:	Kennwerte der gemessenen Cd- und Pb-Gehalte im Moos und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition24
Tabelle 9:	Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen den gemessenen Cd- und Pb-Gehalten im Moos und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland und Europa

Tabelle 10:	Kennwerte zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Moosen in Deutschland und der Cd-/Pb-Depositionen nach EMEP	30
Tabelle 11:	Kennwerte der gemessenen As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalte im Moos (2005) und der mit LE berechneten As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn- Gesamtdeposition (2009-2011, gemittelt)	31
Tabelle 12:	Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen den gemessenen As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalten im Moos (2005) und der entsprechend mit LE berechneten Gesamtdeposition (2009- 2011, gemittelt) über Deutschland	32
Tabelle 13:	Kennwerte der geostatistischen Flächenschätzungen der Cd- und Pb- Gehalte im Moos und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland und Europa	35
Tabelle 14:	Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen geostatistischen Flächenschätzungen der Cd- und Pb-Gehalte im Moos und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland und Europa	36
Tabelle 15:	Kennwerte der geostatistischen Flächenschätzungen der As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalte im Moos und der mit LE berechneten As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gesamtdeposition (2009-2011, gemittelt) über Deutschland	41
Tabelle 16:	Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen geostatistischen Flächenschätzungen der As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn- Gehalte im Moos (2005) und der mit LE berechneten As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gesamtdeposition über Deutschland (Mittelwerte der Jahre 2009-2011)	42
Tabelle 17:	Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen As- Gehalten im Moos und As-Deposition (LOTOS-EUROS) bzw. Daten zu 50%-Perzentilen der As-Gehalte im Oberboden (LABO 1998, 2003) jeweils bezogen auf die Probenentnahmepunkte	43
Tabelle 18:	Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Nadel- /Blattspiegelwerten der Cd- und Pb-Belastung aus der Umweltprobenbank des Bundes (UPB) und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum 2007-2011)	51
Tabelle 19:	Kennwerte zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Blättern/Nadeln (Quelle UPB) und der Cd-/Pb-Depositionen nach EMEP	55
Tabelle 20:	Vergleich signifikanter zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Blättern/Nadeln (Quelle UPB) und der Cd-/Pb-Depositionen nach EMEP	56
Tabelle 21:	Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen As-, Cr-, Cu-, Ni- und Zn-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) und der mit LE berechneten Gesamtdeposition (Zeitraum 2009-2011)	57
Tabelle 22:	Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Nadel/Blattspiegelwerten der Cd- und Pb-Konzentrationen aus der Level II Datenbank und der mit LE und dem EMEP-Modell	

	berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum 2007-2011)	61
Tabelle 23:	Kennwerte zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Blättern/Nadeln (Quelle LevelII) und der Cd-/Pb-Depositionen nach EMEP	64
Tabelle 24:	Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cu- und Zn-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) und der mit LE berechneten Gesamtdeposition (Zeitraum 2009-2011)	65
Tabelle 25:	Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cd- und Pb-Gehalten in Auflagehorizonten (Quelle: Level II) und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Gesamtdeposition (Zeitraum 2007-2011)	66
Tabelle 26:	Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cu-, Cr-, Ni- und Zn-Gehalten in Auflagehorizonten (Quelle: Level II) und der mit LE -Modell berechneten Gesamtdeposition (Zeitraum 2007- 2011)	68
Tabelle 27:	Vergleich der Korrelationskoeffizienten für die Beziehung zwischen Cd- und Pb-Gehalten in unterschiedlichen Biota und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland bzw. Europa	80
Tabelle 28:	Kennwerte von Flächenschätzungen der Cd- und Pb-Deposition in Deutschland (5 Methoden, Bezugsjahr 2005)	82
Tabelle 29:	Beispielhafte Umrechnung der Beurteilungswerte für Metallkonzentrationen im Boden in irrelevante zusätzliche Frachten sowie Akkumulationsrate des Metalls bei Einhaltung der Irrelevanzsschwellen in 100 und 200 Jahren	92
Tabelle 30:	Zusammenstellung von Beurteilungswerten für Schwermetallflüsse bzw. Konzentrationen zum Schutz von Ökosystemen	96
Tabelle 31	Zusammenstellung der Kategorien von Beurteilungswerten für Schwermetallflüsse zum Schutz von Ökosystemen, Schutzgüter, - niveau- und –ziele sowie Wirkungsindikatoren	97
Tabelle 32:	Rezeptortypen und deren Flächenanteile nach CORINE (CLC 2006) in Deutschland	101
Tabelle 33:	Schwermetallgehalte (mg/kg Trockensubstanz) in Derbholz mit Rinde der Hauptbaumarten	105
Tabelle 34:	Schwermetallgehalte (mg/kg Trockensubstanz) von Ackerfrüchten und Grasland	106
Tabelle 35:	Spannen der Ertragspotenziale der Haupt- und Nebenbaumarten	107
Tabelle 36:	Spannen der Ertragspotenziale der verschiedenen Vegetationstypen der waldfreien naturnahen/halbnatürlichen Ökosysteme	108
Tabelle 37:	Ertragsspannen E _{min(Phyto)} -E _{max(Phyto)} zwischen den Bundesländern jeweils im Mittel der Jahre 2007-2013	
Tabelle 38:	Klassifizierung bodenart- und -entstehungs abhängiger Bodeneigenschaften der einzelnen Horizonte eines Bodenprofils	

	bezüglich des Einflusses auf potenzielle Acker-, Holz- und Grünlanderträge	109
Tabelle 39:	Haupteinflussfaktoren der Ertragsbildung	111
Tabelle 40:	Länge der Hauptwurzeltracht nach Köstler et al. (1968) und die Wurzeltracht abschneidende nicht durchwurzelbare Horizonte (aus Nagel et al. 2008, ergänzt und aktualisiert)	112
Tabelle 41:	Verwendete Sickerwasserraten für die Berechnung des Schwermetallaustrags mit dem Sickerwasser für die verschiedenen Schutzgüter	114
Tabelle 42:	Aktuell international verwendete Richt- und Grenzwerte für die Konzentration von Schwermetallen im Trinkwasser	115
Tabelle 43:	Kritische Konzentrationen von Cadmium in Weizen	115
Tabelle 44:	Koeffizienten für die Berechnung der kritischen Konzentration freier Ionen in Abhängigkeit von der Konzentration von freien Ionen mit Schutzwirkung (= Funktion des pH-Wertes) nach deVries et al. (2007)	116
Tabelle 45:	Zuordnungs-Matrix von pH-Stufe aus der BÜK1000N zu einem mittleren pH-Wert pro Horizont der Leitbodenprofile nach KA5 (AG Boden 2005, S. 367)	117
Tabelle 46:	Zuordnungs-Matrix von Basensättigung zu einem mittleren pH-Wert pro Horizont der Leitbodenprofile nach KA5 (AG Boden 2005, S. 371)	117
Tabelle 47:	Zuordnung des Gehaltes an organischer Masse zu den Horizonten der Leitbodenprofile der BÜK1000N, basierend auf den Angaben der Humus-Klasse	118
Tabelle 48:	Zuordnung von Gehalten an gelöstem Kohlenstoff (DOC) in Abhängigkeit vom Vegetationstyp	119
Tabelle 49:	Zuordnung des Faktors des Vielfachen des atmosphärischen CO₂- Partialdrucks zu den Tiefenstufen der Leitbodenprofile der BÜK1000N, basierend auf den Angaben im Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016)	
Tabelle 50:	Kritische Gesamtkonzentration der Schwermetall-Ionen, die unabhängig vom pH-Wert verwendet werden können	121
Tabelle 51:	Gegenüberstellung von veränderten Datengrundlagen 2016 zu 2008 für die Ermittlung von Critical Loads für Schwermetalle	121
Tabelle 52:	Veränderungen der Flächenanteile in den Klassen der Critical Loads von 2008 zu 2016 für Blei, Cadmium und Quecksilber	
Tabelle 53:	Übersicht über die 5er, 25er, 50er, 75er und 95-Perzentile, Minima und Maxima sowie arithmetische Mittelwerte der Critical Loads in den Rezeptorflächen Deutschlands	
Tabelle 54:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für die CL(M) _{eco} mit unterschiedlichen Ertragspotenzial-Schätzwerten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Standort im Münsterland	140
Tabelle 55:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(Pb) _{eco} mit unterschiedlichen Pb-Gehalten und sonst gleichen Eingangsdaten an	

	einem Standort mit Braunerde-Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten in der subkontinentalen Klimazone	141
Tabelle 56:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für die CL(Cd) _{eco} mit unterschiedlichen Cadmium-Gehalten in Derbholz mit Rinde und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Standort in der subkontinentalen Klimazone	141
Tabelle 57:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M) _{eco} mit unterschiedlichen Metall-Gehalten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Standort mit Braunerde-Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten in der subkontinentalen Klimazone	142
Tabelle 58:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M) _{drink} mit unterschiedlichen Sickerwasserraten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Acker-Standort mit Braunerde-Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten und an einem Wald-Standort mit Sand-Braunerde in der subkontinentalen Klimazone Brandenburgs	147
Tabelle 59:	Gegenüberstellung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für die Metall-Konzentration im Sickerwasser (Zeddel et al. 2016) zu den in diesem Projekt verwendeten kritischen Gesamt-Konzentrationen im Sickerwasser (Kapitel 3.3.5.3)	148
Tabelle 60:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M) _{eco} mit unterschiedlichen kritischen Gesamt-Konzentrationen im Sickerwasser und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Acker- Standort mit Braunerde-Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten in der subatlantischen Klimazone und an einem Wald-Standort mit Sand-Braunerde in der subkontinentalen Klimazone	149
Tabelle 61:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M)eco mit unterschiedlichen pH-Werten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Wald-Standort mit Sand-Braunerde in der atlantischen Klimazone Nordwestdeutschlands	150
Tabelle 62:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M) _{eco} mit unterschiedlichen Gehalten an organischer Masse und sonst gleichen Eingangsdaten an Grünland-Standorten mit Geschiebelehm in der subkontinentalen Klimazone Nordostdeutschlands	151
Tabelle 63:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(Hg) _{eco} mit unterschiedlichen Gehalten an gelöster organischer Masse und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Nadelwald- und einem Laubwald- Standort mit Geschiebelehm in der subkontinentalen Klimazone Nordostdeutschlands	152
Tabelle 64:	Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(Cd)eco und CL(Pb)eco mit unterschiedlichen pH und Gehalten an gelöster organischer Masse und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Nadelwald- und einem Laubwald-Standort mit Pararendzina aus Mergel in der subkontinentalen Klimazone Nordostdeutschlands	152
Tabelle 65:	Maximal mögliche Abweichungen der Eingangswerte in Deutschland und die daraus resultierenden maximal möglichen Abweichungen der Critical Loads	153

Tabelle 66:	Hintergrunddepositionen (gesamt) von Schwermetallen (Berichtsteil 1 dieses Projektes; EMEP 2015)	158
Tabelle 67:	Eintragsfrachten in Deutschland aus Düngung in der Land- und Forstwirtschaft (ing ha ⁻¹ a ⁻¹) (aus Knappe et al. 2008)	159
Tabelle 68:	Überschreitung der CL(M) _{eco} (Mediane) unter Berücksichtigung sowohl der atmogenen Eintragsfrachten in Deutschland als auch der Frachten aus Düngung in der Land- und Forstwirtschaft nach Knappe et al. (2008)	160
Tabelle 69:	Gegenüberstellung von Quecksilber-Depositionen aus EMEP im Jahr 2013 (Ilyin 2015) zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland	165
Tabelle 70:	Gegenüberstellung von Cadmium-Depositionen zu den Beurteilungswerten sowie statistische Auswertung des Flächenanteils vor Grenzwert-Überschreitungen geschützter Rezeptorflächen in Deutschland, 2010	165
Tabelle 71:	Gegenüberstellung von Blei-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland	166
Tabelle 72:	Gegenüberstellung von Arsen-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland	
Tabelle 73:	Gegenüberstellung von Kupfer-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland	
Tabelle 74:	Gegenüberstellung von Zink-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland	
Tabelle 75:	Gegenüberstellung von Chrom-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland	169
Tabelle 76:	Gegenüberstellung von Nickel-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland	
Tabelle 77:	Berechnung der akzeptablen Austräge von Thallium in der deutschlandtypischen Spanne (Minimum, Maximum)	
Tabelle 78:	Berechnung der akzeptablen Austräge von Vanadium in der deutschlandtypischen Spanne (Minimum, Maximum)	172

Abkürzungsverzeichnis

As	Arsen; hier beschränkt auf As(V), die stabile Form in aerober Umgebung (humoser Oberboden)
BZE	Bodenzustandserhebung
Cd	Cadmium
CL(Cd) _{food}	Critical Load für Cadmium zum Schutz von Ackerfrüchten (hier: Weizenerzeugnissen) als Lebensmittel für Menschen
CL(M) _{drink}	Critical Load für ein Metall (M steht anstelle des chem. Zeichens für das jeweils be- trachtete Metall) zum Schutz des Trinkwassers als Lebensmittel für Menschen

CL(M) _{eco}	Critical Load für ein Metall (M steht anstelle des chem. Zeichens für das jeweils be- trachtete Metall) zum Schutz des Ökosystems
CLC	Corine Landcover
CLC	Corine Landcover
CLRTAP	Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution
СТМ	Chemisches Transportmodell
Со	Cobalt
Cr	Chrom; hier beschränkt auf Cr(III), die stabile Form in den betrachteten humushalti- gen Oberboden-Horizonten
Cu	Kupfer
[DOM] _{swd}	Konzentration gelöster organischer Substanz in der Bodenlösung der Humusschicht [g m ⁻³]
DWD	Deutscher Wetterdienst
ECE	Economic Commission for Europe
ECMF	European Centre for Medium Range Weather Forecasts
EEA	European Environmental Agency
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme
EMS	European Moss Survey
EZG	Wassereinzugsgebiete
GIS	Geographisches Informationssystem
Hg	Quecksilber; Summe aus organisch gebundenem Hg in Methyl-Quecksilber (CH $_3$ Hg $^+$) und Hg in anorganischen Formen
[Hg] _{OM(crit)}	Critical Limit für Hg bezogen auf feste organische Substanz (OM) in Humusauflagen
НМ	heavy metals
ICP	International Co-operative Programme
LE	LOTOS-EUROS
LII	Intensivprogramm des forstlichen Umweltmonitoring, Level II
[M] _{free,sdw} (crit)	kritische Konzentration freier Metall-Ionen im Sickerwasser
[M] _{ha}	Metall-Gehalt in der Trockenmasse des Erntegutes [mg kg ⁻¹ TS ⁻¹ bzw. eq kg ⁻¹ TS ⁻¹]
[M]sdw(crit)	kritische Gesamt-Konzentration von Metallen im Sickerwasser sowie gebunden an organischen, anorganischen und suspendierten Partikeln
M _{le(crit)}	tolerierbare Auswaschung des Metalls M aus der betrachteten Bodenschicht bei ausschließlicher Betrachtung vertikaler Flüsse (Sickerwasser) [g ha ⁻¹ a ⁻¹]
Mn	Mangan
Мо	Molybdän
MSCE	Meteorological Synthesizing Center – East
Mu	Nettoaufnahme des Metalls M in erntbare Pflanzenteile [g ha ⁻¹ a ⁻¹]
n	Anzahl von Beobachtungen / Stichprobenelementen

Ni	Nickel
OGC	Open Geospatial Consortium
OL	organische Auflage, wenig zersetzt
OF	organische Auflage, fermentiert
OFH	organische Auflage, fermentiert/humifiziert
ОН	organische Auflage, humifiziert
Pb	Blei
PM	Particulate Matter (Feinstaub)
POP	Persistent Organic Pollutants (persistente organische Schadstoffe)
Pt	Platin
P ₅₀	50. Perzentil
Q _{le(z)}	Sickerwasserrate unterhalb der gesamten durchwurzelten Bodenschicht (z)
Q _{le(zb)}	Sickerwasserrate unterhalb der biologisch aktiven Bodenhorizonte (zb)
QQ-Plot	Quantile-Quantile-Diagramm
r _s	Rangkorrelationskoeffizient nach Spearman
\mathbf{r}_{τ}	Rangkorrelationskoeffizient nach Kendall
R ²	Bestimmtheitsmaß
RK	Regression-Kriging
Sb	Antimon
SD	Standardabweichung
Th	Thorium
Ті	Titan
ТΙ	Thallium
UNECE	United Nations Economic Commission for Europe
UPB	Umweltprobenbank des Bundes
v	Vanadium
Vr	Relativer Variationskoeffizient
WGE	Working Group on Effects
Zn	Zink

1 Einleitung

Schwermetallemissionen und –depositionen in Europa und Deutschland stellen ein zentrales Thema nationaler und internationaler Luftreinhaltungspolitik dar. Durch atmosphärische Deposition in Ökosysteme eingetragene Stoffe wie z.B. Schwermetalle (heavy metals, HM) können sich Pflanzen und Tiere sowie Böden und Gewässer nachteilig verändern, wenn art- bzw. ökosystemspezifische Wirkschwellen überschritten werden. Um damit verknüpften ökologischen Risiken durch umweltpolitische Maßnahmen erforderlichenfalls entgegenwirken zu können, bedarf es neben der Bestimmung von ökosystemspezifischen Wirkschwellen auch der Erfassung der atmosphärischen Deposition, der Ökosysteme ausgesetzt sind.

In Teilbericht 1 werden Schwermetalleinträge in die Ökosysteme Deutschlands mit dem Modell LOTOS-EUROS anhand gemessener Einträge quantifiziert. Der vorliegende Berichtsteil 2 umfasst Vergleiche der LOTOS-EUROS-Modellierungen mit Depositionsdaten aus dem European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) bzw. Daten aus nationalen und internationalen Biomonitoringprogrammen (Kapitel 2). Beurteilungen der Depositionsraten hinsichtlich ihrer Wirkungen und der Einhaltung gesetzlicher Vorschriften bzw. Umweltqualitätsziele folgen in Kapitel 3.

2 Integrative Datenanalyse

2.1 Hintergrund und Ziele

Die Bestimmung der stofflichen Exposition kann mit technischen Sammlern, chemisch-physikalischen Modellen oder durch Bioindikation erfolgen. Komplizierte Phänomene wie die atmosphärische Deposition lassen sich aber i.d.R. nicht vollständig durch eine einzige Methode erfassen. Ziel der vorliegenden Studie war es daher, durch Entwicklung und Anwendung komplementärer Methoden zusätzliche Potenziale für die Abschätzung der atmosphärischen Deposition zu erschließen.

Die integrative Datenanalyse basiert auf Vergleichen unterschiedlicher Berechnungen der atmosphärischen Schwermetalldeposition mit LOTOS-EUROS sowie dem EMEP-Modell sowohl untereinander als auch mit allgemein verfügbaren Daten aus langfristig etablierten Bioindikationsmessnetzen (Schwermetallanreicherungen in Laubmoosen, Koniferennadeln, Blättern u.ä.) als indirektes Maß der atmosphärischen Schwermetalldeposition. Untersucht wurden zwei in unterschiedlicher Intensität bearbeitete Gruppen von Schwermetallen: Gruppe A umfasste zwei der drei mit höchster Intensität bearbeiteten prioritären Schwermetalle Cadmium (Cd) und Blei (Pb), da nur für diese Elemente Depositionsberechnungen von beiden hier untersuchten Chemischer Transportmodelle (CTM) vorliegen. Arsen (As), Chrom (Cr), Kupfer (Cu), Nickel (Ni) und Zink (Zn) wurden in Gruppe B mit mittlerer Intensität betrachtet. Folgende Fragen sollten durch die integrative Datenanalyse beantwortet werden:

- ► Welche Rückschlüsse können aus dem direkten Vergleich der räumlichen Muster und zeitlichen Trends der LE- und EMEP-Modellierungen hinsichtlich bestehender Daten- und Modellunsicherheiten bzw. Interpretation der Modellierungsergebnisse gezogen werden?
- Welche Implikationen ergeben sich aus dem Vergleich der räumlichen Muster und zeitlichen Trends der LE- und EMEP-Modellierungen mit Daten aus Biomonitoringprogrammen für die Eignung unterschiedlicher Analyten zur Indikation der Schwermetalldeposition sowie für die Güte bzw. Anpassungserfordernisse der unterschiedlichen Depositionsmodellierungen?
- Welche Potenziale können durch eine integrierte Nutzung von Daten zweier Chemischer Transportmodelle sowie Bioindikationsverfahren für die Abschätzung der Schwermetalleinträge aus der Atmosphäre erschlossen werden?

Kapitel 2.2 fasst hierzu die Ergebnisse der Recherche und Auswahl verfügbarer Eintragsdaten aus Biomonitoringprogrammen in Deutschland zusammen und gibt eine Methodenübersicht zur integrativen Datenauswertung. In den Kapiteln 2.3 bis 2.7 erfolgt die integrative Auswertung der Daten zum atmosphärischen Eintrag. Hierauf aufbauend enthält Kapitel 2.8 einen synoptischen Vergleich der Ergebnisse. Empfehlungen hinsichtlich geeigneter Methoden bzw. Methodenkombinationen zur Erfassung der atmosphärischen Deposition der Metalle aus den Gruppen A und B werden gegeben.

2.2 Überblick über Material und Methodik

2.2.1 Chemische Transportmodelle

Grundlage der integrativen Datenauswertung bildeten Berechnungen der atmosphärischen Schwermetalldeposition mit zwei chemischen Transportmodellen (CTM):

- LOng Term Ozone Simulation EURopean Operational Smog model (LOTOS-EUROS) (Schaap et al. 2005, 2008),
- ▶ Regional heavy metal transport model (MSCE-HM) (Travnikov & Ilyin 2005, Tørseth et al. 2012).

Mit LOTOS-EUROS (im Folgenden: LE-Modell) wurden für dieses FuE-Vorhaben Eintragsdaten zu 2 Elementen der Schwermetallgruppe A (Cd, Pb) und 6 Elementen der Schwermetallgruppe B (As, Cr, Cu, Ni, V, Zn) modelliert. Die räumliche Auflösung beträgt 7 km x 7 km über Deutschland (Cd, Pb) sowie 25 km x 25 km modelliert über Europa (As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V, Zn). Weitere Details zur Modellierung der trockenen, nassen und gesamten Deposition mit LOTOS-EUROS finden sich in Teilbericht 1 zu diesem Projekt.

Das MSCE-HM Model (im Folgenden: EMEP-Modell) unterstützt die Überwachung der grenzüberschreitenden, internationalen Luftverschmutzung in Europa unter dem Dach der Genfer Luftreinhaltekonvention von 1979 (Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution - CLRTAP). Hierzu werden Emissionsdaten aus der Emissionsberichterstattung der Mitgliedsländer (Parteien) der CLRTAP zusammengestellt sowie basierend auf diesen Grundlagen der atmosphärische Transport und die Deposition u.a. von Cd, Hg und Pb modelliert (Tørseth et al. 2012). Das EMEP-Messnetz umfasst gegenwärtig 22 (Hg) bzw. 66 (Cd, Pb) Stationen in Europa (Aas and Breivik 2009). Es ist für Cd und Pb insbesondere im Süden und Osten Europas räumlich sehr dünn besetzt, Hg wird vorwiegend in Nordeuropa gemessen. Die Messdaten dieser Stationen dienen der Validierung der EMEP-Modellierungen (Travnikov und Ilyin 2005; Travnikov et al. 2012). Diese liefern Karten der räumlichen Struktur atmosphärischer Deposition u.a. von Cd, Hg und Pb auf einem Raster von 50 km mal 50 km, mit denen in weiteren Schritten entsprechend aufgelöste Karten der Überschreitung kritischer Wirkschwellen für Ökosysteme (Critical Loads - CL; ICP Modeling & Mapping 2004-2013, Kapitel 5.5)) berechnet werden können Modellierungen in höheren Auflösungen (5 km mal 5 km, 10 km mal 10 km) liegen bisher lediglich aus einer Reihe länderspezifischer Fallstudien vor (Kroatien, Tschechische Republik, Niederlande) (Ilyin et al. 2011, 2012 b, 2013, 2014). Gegenwärtige Bemühungen zur Modellierung der EMEP-Deposition in einer höheren Auflösung (10 km mal 10 km) wurden bislang durch eine mangelnde Bereitschaft der meisten Teilnehmerstaaten erschwert, geeignete Emissionsdaten zur Verfügung zu stellen (Ilyin, I. 2015, pers. Mitteilung am 02.04.2015).

2.2.2 Bioindikationsmessnetze

Der European Moss Survey (EMS) des ICP Vegetation, das intensive Monitoring des ICP Forests Level II (LII) sowie die Umweltprobenbank des Bundes (UPB) verfügen derzeit über die Bioindikationsmessnetze mit der bundesweit größten räumlichen Repräsentanz für

Abbildung 1: Übersichtskarte der LE und EMEP-Grids bzw. Messnetze ausgewählter Biomonitoringprogramme



Schwermetallgehalte in Moosen, Blättern und Nadeln (Abbildung 1)¹. In diesen Messnetzen werden Akkumulationsdaten nach einheitlichen Methoden erhoben und wie nachfolgend näher erläutert ausgewertet.

Das europaweite EMEP/ICP Vegetation-Projekt "Atmospheric Heavy Metal Deposition in Europe - estimations based on moss analysis" (Rühling 1994) dient seit 1990 der Umsetzung des UNECE -Übereinkommens über den weiträumigen, grenzüberschreitenden Transport von Luftverunreinigungen (CLRTAP). Hauptziel des European Moss Survey (EMS) (auch: Moos-Monitoring) ist die Erfassung von Hintergrundwerten für Metallgehalte in Moosen, welche die Auswirkungen weiträumiger Stofftransporte widerspiegeln und nicht primär auf lokale Emittenten zurückzuführen sind (Harmens et al. 2006). Moose eignen sich besonders gut für die Erfassung großräumiger Trends der Bioakkumulation atmosphärischer Metalldepositionen. Moose nehmen Schwermetalle direkt durch die Blattoberfläche auf, reichern diese bei hoher Schwermetallresistenz an und ermöglichen so deren Analyse weit oberhalb der Nachweisgrenze (Frahm 1998). Mit bis zu rund 7.300 Probenentnahmestandorten wurde in Europa ein enges Stichprobennetz mit einer räumlichen Dichte von 2,0 Standorten pro 1000 km² (Stand: 2005) eingerichtet (Pesch et al. 2007a). Um die inhaltliche Vergleichbarkeit der Daten zu gewährleisten, ist die Methodik des EMS europaweit harmonisiert (ICP Vegetation 2015), Die Moose werden im Abstand von 5 Jahren beprobt und auf Schwermetallkonzentrationen für bis zu 40 Elemente analysiert. Tabelle 1 zeigt, dass 9 von 11 der in diesem Projekt zu untersuchenden Metalle - mit Ausnahme von Pt und Th - im Moos-Monitoring des ICP Vegetation Berücksichtigung finden.

Der letzte UNECE Moss Survey des Jahres 2010 fand ohne Beteiligung Deutschlands statt. Die aktuellsten Daten für das Bundesgebiet stammen aus der Kampagne 2005/06. Aus den punktuell erhobenen Moos-Konzentrationen wurden durch geostatistische Verfahren Verbreitungskarten der Schwermetallgehalte in den Moosen berechnet (Pesch et al. 2007b). Dabei wurde berücksichtigt, dass Messwerte dicht beieinander liegender Standorte sich im Allgemeinen ähnlicher sind als Messwerte weiter entfernt liegender Standorte, d.h. Konzentrationen in Moosen grundsätzlich in räumlicher Abhängigkeit zueinander stehen. Diese auch als räumliche Autokorrelation bezeichnete Grundannahme wird im Rahmen des geostatistischen Verfahrens durch Variogramm-Analyse untersucht (Schröder et al. 2012). Im Falle dabei festgestellter positiver Autokorrelation wird zur Regionalisierung der Punktinformationen i.d.R. das Ordinary-Kriging-Verfahren verwendet, wobei die Anpassung des Modellvariogramms an experimentelle Werte auf Basis der Methode der kleinsten Quadrate erfolgt (Johnston et al. 2001). Die aus dem Kriging hervorgegangenen Schätzraster² liefern Daten u.a zu den in diesem Vorhaben prioritär zu bearbeitenden Elementen Cd, Hg, Pb sowie auch zu As, Cr, Cu, Ni, V, Zn, Mangen (Mn), Antimon (Sb) und Titan (Ti) mit einer Auflösung von 3 km mal 3 km.

Das Moos-Monitoring wird in Deutschland durch das webbasierte Geoinformationsportal MossMet unterstützt (Kleppin et al. 2008; Pesch et al. 2007a). Alle Moos-Daten einschließlich der zugehörigen Metadaten (Probejahr, Lage des Standortes, Moosart, Landnutzung u.ä.) können über einen passwortgeschützten Datenservice³ der Universität Vechta abgerufen werden.

In der **Umweltprobenbank des Bundes (UPB)** werden ökologisch repräsentative Umweltproben (Boden-, Schwebstoff-, Pflanzen- und Tierproben) sowie Humanproben gesammelt (UBA 2008). Die Umweltproben werden in repräsentativen Ökosystemen des terrestrischen, limnischen und marinen Bereichs nach vorgegebenen Standardarbeitsanweisungen und Probenahmezeitplänen gewonnen. Die Pflanzen- und Tierproben werden i.d.R. jährlich entnommen. Alle Proben werden auf umweltrelevante

¹ als Ergebnis einer im Jahr 2014 durchgeführten Recherche zur aktuellen Verfügbarkeit von Akkumulationsdaten aus Bioindikationsmessnetzen in Europa, Bund und Ländern

² http://gis.uba.de/website/web/moos/karten/gesamt.htm

³ http://www.mapserver.uni-vechta.de/moos/

Stoffe im Hinblick auf eine biologische, physikalische und chemische Charakterisierung nach standardisierten Verfahren analysiert. Eine Übersicht der in bestimmten Biota routinemäßig untersuchten Analyten zeigt Tabelle 1. Damit werden je nach Matrix zwischen 3 und 11 der in diesem FuE-Vorhaben zu berücksichtigenden Metalle untersucht.

Für die Erfassung, Speicherung, Pflege, Verarbeitung und Bereitstellung der Daten und Informationen zur Umweltprobenbank wird beim UBA ein rechnergestütztes Informationssystem unterhalten. Wesentliche Ergebnisdaten der Umweltprobenbank (Stationsdaten, Messdaten) sind über das Internet frei zugänglich. Die Stationsdaten⁴ geben Auskunft zum Probenahmegebiet (Gebietsname, Ökosystemtyp, Koordinaten, räumliches Bezugssystem u.ä.) und zur Probenart (Nadeln, Blätter, Oberboden u.ä.). Die Messdaten⁵ beinhalten Angaben zum Analyt, zur Messeinheit, zur Messmethode sowie die Messwerte (Anzahl der Proben, Mittelwert, Standardabweichung). Für das Bezugsjahr 2010 sind Schwermetalldaten zu 17 repräsentativen Ökosystemen verfügbar (Abbildung 1)⁶. Diese enthalten entsprechend der Übersicht in Tabelle 1 Informationen zu Metallgehalten in einjährigen Trieben von Fichten-/Kiefern (10 Stationen), in Buchen-/Pappelblättern (10 Stationen), in Rehleber (6 Stationen), in Regenwürmern (4 Stationen) sowie in Stadttaubeneiern (3 Stationen).

Seit dem Jahr 1985 wird im International Co-operative Programme on Assessment and Monitoring of Air Pollution Effects on Forests (ICP Forests) das sog. Level-I-Monitoring (extensives Waldmonitoring) durchgeführt. Dieses wird auf ausgewählten Monitoringflächen seit 1995 durch das Intensive Waldmonitoring (Level II) ergänzt. Alle Probenahmen und -analysen folgen der harmonisierten Methodik des 'Manual on methods and criteria for harmonised sampling, assessment, monitoring and analysis of the effects of air pollution on forests' (ICP Forests 2010). In Deutschland wurden im Monitoring des ICP Forests Level II je nach erhobener Bestimmungsgröße an bis zu 90 Standorten Daten zu Meteorologie (Meteorological Measurements), Luftschadstoffeintrag (atmospheric deposition), Luftqualität (ambient air quality), Analyse der Bodenfestphase (soil chemistry), Analyse der Bodenlösung (soil solution chemistry), Blatt-/Nadelchemie (foliar chemistry) sowie epiphytischen Flechten (epiphytic lichens) erhoben. Quantifizierungen von Schwermetallakkumulationen in diversen Biomonitoren erfolgen ausschließlich im ICP-Forests Foliage Survey (Analysen der Blatt-/Nadelchemie). Grundlage der Analysen bildet Teil XII des Manuals des ICP-Forests (Rautio et al. 2010) für ganz Europa. Die Lage der beprobten Level-II-Flächen in Deutschland ist Abbildung 1 zu entnehmen. Von den Level-II-Standorten wurden in den Jahren zwischen 2000 und 2012 bundesweit an 90 Level-II-Flächen Blätter von Rot-Buche, Trauben-Eiche und Stiel-Eiche sowie Nadeln von Weiß-Tanne, Europäischer Lärche, Douglasie, Rot-Fichte und Wald-Kiefer auf Schwermetallgehalte analysiert. Die Untersuchungen umfassten 5 der 11 in diesem Projekt zu berücksichtigenden Metalle (Cadmium, Kupfer, Mangan, Blei und Zink), wobei die Nährelemente Cu, Mn und Zn v.a. auch der Charakterisierung des Waldernährungszustandes dienen. Gemäß ICP Forests Manual sollen die Analysen alle 2 Jahre erfolgen. Zu beachten ist, dass höhere Pflanzen Metallionen im Gegensatz zu Moosen in Abhängigkeit von den Bodeneigenschaften über die Wurzeln aufnehmen, d.h. dass insbesondere auch die geogenen Anteile zu berücksichtigen sind. Gleichsam wurden in dem o.g. Betrachtungszeitraum in den Jahren 2003, 2007, 2009, 2010 und 2012 an 38 Level-II-Standorten Daten zu 6 der 11 projektrelevanten Schwermetalle (Cadmium, Chrom, Kupfer, Nickel, Blei und Zink) in Auflagehorizonten erhoben.

⁴ Stationsdatenbank des Umweltbundesamtes: http://www.env-it.de/stationen/public/open.do

⁵ Umweltprobenbank des Bundes: http://www.umweltprobenbank.de/de/documents/investigations/analytes

⁶ Abfrageoptionen: Probenart = alle terrestrischen Probenahmen; Analyt = Chrom, Mangan, Cobalt, Nickel, Kupfer, Zink, Cadmium, Quecksilber, Blei, Arsen; Probenahmegebiet = keine Einschränkung; Zeitbezug = jahresweise; auch andere Bezugsgrößen = Nein (nur Trockengewicht); alle verfügbaren Kenngrößen = Ja

Tabelle 1:

Übersicht der in unterschiedlichen Monitoringprogrammen untersuchten Schwermetalle

Biomonitor	As	Cd	Со	Cr	Cu	Hg	Mn	Мо	Ni	Pb	Pt	Sb	Th	Ti	v	Zn
				Ει	urop.	Moos	moni	toring	5							
Laubmoose	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	-	0	-	0	0	0
					Umw	eltpro	obenb	ank								
Vollblut*	0	0	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	-	-	0
Blutplasma*	0	0	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	-	-	0
24-h-Sammelurin*	0	0	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	-	-	0
Kopfhaar*	0	0	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	-	-	0
Blasentang**	0	0	0	0	0	0	-	0	0	0	-	-	-	0	-	0
Fichten- /Kieferntriebe**	0	0	0	0	0	0	-	0	0	0	-	-	-	0	-	0
Pappel- /Buchenblätter**	0	0	0	0	0	0	-	0	0	0	-	-	-	0	-	0
Dreikantmuschel**	0	0	0	-	0	0	-	-	0	0	-	-	-	-	-	-
Miesmuschel**	0	0	0	-	0	0	-	-	0	0	-	-	-	-	-	-
Rehleber**	0	0	0	-	0	0	-	-	0	0	-	-	-	-	-	-
Regenwurm**	-	0	0	-	-	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Brassenmuskula- tur**	0	-	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-	-
Aalmuttermuskula- tur**	0	-	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-	-
Silbermöwenei**	0	-	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	0	-	-
Stadttaubenei**	-	-	-	-	0	0	-	-	-	0	-	-	-	-		-
					ICP F	orest	s Leve	el II								
Buchen- /Eichenblätter	-	0	-	-	0	-	0	-	-	0	-	-	-	-	-	0
Fichten-/Kiefern-/ Tannen-/ Dougla- sien-/Lärchennadeln	-	0	-	-	0	-	0	-	-	0	-	-	-	-	-	0
Auflagehorizonte	-	0	-	0	0	-	-	-	0	0	-	-	-	-	-	0
				Bode	nzust	andse	erhebu	ung BZ	ZE II							
Buchenblätter	-	0	-	-	0	-	0	-	-	0	-	-	-	-	-	0
Fichten- /Kiefernnadeln	-	0	-	-	0	-	0	-	-	0	-	-	-	-	-	0

* = 1987-1997; ** = 2006-2008* = Humanproben; ** = Umweltproben

Zur Erweiterung des ICP Forests wurden in dem bisher größten Life+ ko-finanzierten Projekt "Further Development and Implementation of an EU-level Forest Monitoring System (FutMon)" Empfehlungen für eine Fortentwicklung des Programms zu einem effizienteren pan-europäischen Waldmonitoring-System erarbeitet (Lorenz 2013). Eine der Hauptinnovationen des FutMon-Projektes lag in der Entwicklung eines webbasiertes Informationsportals, das der Zusammenführung wesentlicher quantitativer und qualitativer Daten des ICP Forests sowie deren Übermittlung, Prüfung und Validierung dient. Die Bereitstellung der Daten für Deutschland liegt in der Zuständigkeit des Johann Heinrich von Thünen-Instituts⁷.

Tabelle 2 gibt eine Übersicht der für die integrative Auswertung, Korrelationsanalysen, räumliche Analysen sowie Analysen zeitlicher Trends gewählten Datengrundlagen. Zusätzlich zu den dort angegebenen Messdaten wurden standortbeschreibende Metadaten der Monitoringprogramme verwendet.

Quelle	Umfang/Probenart	Elemente	Ein- heit	1995	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013
LE	Modell 7 km x 7 km D	Cd, Pb	µg/m² a									0		0	0	0	0	0		
LE	Modell 25 km x 25 km D	Cd, Pb	µg/m² a									0								
LE	Modell 25 km x 25 km EU	Cd, Pb	µg/m² a									0								
LE	Modell 25 km x 25 km D	As, Cr, Cu, Ni, V, Zn	µg/m² a													0	0	0		
EMEP	Modell 50 km x 50 km D	Cd, Pb	µg/m² a									0		0	0	0	0	0		
EMEP	Modell 50 km x 50 km EU	Cd, Pb	µg/m² a									0								
UPB	Konz. in Nadeln/Blättern D	As, Cr, Cu, Ni, Zn	µg/g													0	0	0		
UPB	Konz. in Nadeln/Blättern D	Cd, Pb	µg/g											0	0	0	0	0		0*
LII	Konz. in Nadeln/Blättern D	Cd, Pb	µg/g											0	0	0	0	0		
LII	Konz. in Nadeln/Blättern D	Cu, Zn	µg/g											0	0	0	0	0		
LII	Auflagehorizonte	Cr, Cd, Cu, Ni, Pb, Zn	µg/g											0	0	0	0	0		
EMS	Konz. im Moos D	Cd, Pb	µg/g									0								
EMS	Konz. im Moos EU	Cd, Pb	µg/g									0								
EMS	Konz. im Moos D & EU	As, Cr, Cu, Ni, V, Zn	µg/g									0								
EMS**	Konz. im Moos, geostatis- tische Flächenschätzung D & EU	As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V, Zn	µg/g									0								

Tabelle 2: Übersicht der verwendeten Daten inkl. Beprobungsjahre

LE = LOTOS-EUROS, EMEP = European Monitoring and Evaluation Programme, UPB = Umweltprobenbank des Bundes, LII = ICP Forests Level II, EMS = European Moss Survey, O = Korrelationsanalysen und räumliche Analysen, grau hinterlegt = Analyse zeitlicher Trends, *= nicht für alle Probenarten vorhanden, ** Pesch et al. 2007a, Schwermetallgruppe A = Cd, Pb; Schwermetallgruppe B = As, Cr, Cu, Ni, V, Zn **Weitere Datenressourcen**. Im Ergebnis einer Recherche und Analyse zu Ländermessnetzen in Deutschland (Anhang A1.2) zeigte sich, dass eine denkbare Datenintegration für das Bundesgebiet erschwert ist, da viele Analysen der Pflanzen-, Tier- und Humanproben (Blasentang, Miesmuschel, Rehleber u.ä.) eine sehr begrenzte räumliche Repräsentanz aufweisen und / oder die Programmdurchführung bundesweit nicht harmonisiert ist. Dabei wurde insbesondere auch das in Bayern durchgeführte Monitoring mit dem epiphytischen Moos *Hypnum cupressiforme* (Köhler u. Peichl 2009) auf Projektrelevanz untersucht. Anhand von Moos-Daten (incl. Standortdaten) des LfU Bayern für die Jahre 2007, 2010 und 2013 wurde geprüft, inwieweit wesentliche Kriterien des European Moss Survey (ICP Vegetation 2015) für ein Monitoring der Hintergrundbelastung eingehalten werden:

- ► 300 m Mindestabstand der Probenahmestellen zu größeren Landes- und Bundesstraßen bzw. Autobahnen, Siedlungsflächen und Industrieanlagen,
- ▶ 100 m Mindestabstand zu Einzelhäusern und kleineren Straßen.

Im Ergebnis erfüllten die Bayerischen Moos-Daten diese Kriterien kaum, da nur sehr wenige Standorte ausreichende Abstände zu lokalen Emissionsquellen aufwiesen. Für bivariate Vergleiche mit Modellierungen der atmosphärischen Deposition (EMEP/LE) erscheinen diese Daten daher nicht geeignet und wurden in diesem Projekt auch nicht verwendet. Weitere potenziell geeignete Daten aus der zweiten Bodenzustandserhebung (BZE II) waren im Projektzeitraum nicht verfügbar.

Als Basisinformationen für die Interpretation der Analyseergebnisse wurden zudem die in Tabelle 3 dargestellten Trends der berichteten Metallemissionen für Deutschland zusammengestellt (NaSE 2017).

Element	1990	1995	2000	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
As	82,4	6,9	5,9	5,9	6,2	6,1	5,9	5,4	5,5	5,3	5,2	5,3	5,0	5,0
Cd	23,6	13,7	12,4	9,1	8,7	8,3	7,1	6,5	7,1	7,1	6,8	6,9	6,5	6,6
Cu	1714,2	1857,0	2035,2	2056,7	2096,5	2119,1	2110,0	2067,5	2113,6	2156,8	2142,4	2156,1	2199,4	2240,2
Cr	141,9	76,9	66,2	59,8	61,8	61,7	59,7	52,6	57,8	58,8	57,4	57,5	56,7	56,7
Ni	285,9	163,8	120,2	133,2	144,6	133,3	127,1	113,5	111,6	99,6	96,3	94,0	81,3	80,0
Pb	2250,0	712,3	403,4	286,3	274,2	255,6	225,1	201,7	220,5	220,6	212,4	208,0	214,1	220,3
Zn	1712,4	1731,9	1897,2	1902,6	1934,1	1957,8	1951,6	1918,7	1972,4	2000,5	1984,3	2003,9	2030,8	2070,5

Tabelle 3: Emmissionstrends für Deutschland [in t] seit 1990 (NaSE 2017)

Demnach haben sich die Emissionen in Deutschland im Vergleich zum Bezugsjahr 1990 bei As um 94,0 %, Cd um 72,1 %, Cr um 60,1 %, Ni um 72,0 % und Pb um 90,2 % verringert. Während Anfang der 1990er Jahre v.a. aufgrund der Stilllegung veralteter Produktionsstätten die Schwermetallemissionen erheblich zurückgingen, sind in den letzten Jahren kaum mehr weitere Emissionsrückgänge festzustellen. Zudem sind bei Kupfer seit 1990 Zunahmen um 30,7 % sowie auch bei Zink um 20,9 % zu verzeichnen.

2.2.3 Methodik der integrativen Datenanalyse

Die integrative Auswertung der Daten zum atmosphärischen Stoffeintrag fußt auf Vergleichen zwischen modellierten Depositionswerten sowie gemessenen Konzentrationen in verschiedenen Biomonitoren. Diese erfolgt anhand statistischer Kennzahlen, die mit Verfahren der deskriptiven Statistik, Korrelationsanalysen, inferenz-statistischen Verfahren, Regressionsanalysen, Trendanalysen sowie Modellvergleichen berechnet wurden. Einen Überblick der hierfür entwickelten Methodenbausteine gibt Tabelle 4.

Aufgabe	Methode	Datengrundlage	Кар					
Vergleich unter- schiedlicher Modellie-	Vergleich statisti- scher Kennzahlen,	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cd, Pb, 25 km x 25 km, 2005, Deutschland	2.3					
rungen der atmo- sphärischen Schwer- metalldenosition (IF	Wilcoxon-Test, Korrelationsanalyse (Spearman)	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cd, Pb, 7 km x 7 km, 2007-2011,						
EMEP)	Vergleich zeitlicher Trends	Deutschland, modellierte Schwermetalldeposition (EMEP), Cd, Pb, 50 km x 50 km, 2005, 2007-2011, Deutschland						
Vergleich unter- schiedlicher Modellie- rungen der atmo- sphärischen Schwer-	Korrelationsanalyse (Spearman), Vergleich der Kor- relationskoeffizien-	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cd, Pb, 25 km x 25 km, 2005, Europa; Modellierte Schwermetalldeposition (LE), As, Cr, Cu, Ni, V, Zn, 25 km x 25 km, 2009-2011, Deutschland	2.4					
metalldeposition (LE, EMEP) mit Schwerme- tallgebalten im Moos	ten nach Sachs & Hedderich (2009), Ermittlung und Vergleich von Schwermetallindi- zes,	Modellierte Schwermetalldeposition (EMEP), Cd, Pb, 50 km x 50 km, 2005, Deutschland u. Europa						
(Messwerte)		Gemessene Schwermetallgehalte im Moos (Europ. Moos-Monitoring), Cd, Pb, 2005, Deutschland u. Europa						
	Vergleich zeitlicher Trends	Gemessene Schwermetallgehalte im Moos (Europ. Moos-Monitoring), As, Cr, Cu, Ni, V, Zn, 2005, Deutschland						
Vergleich unter- schiedlicher Modellie-	Korrelationsanalyse (Spearman),	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cd, Pb, 25 km x 25 km, 2005, Deutschland u. Europa	2.5					
rungen der atmo- sphärischen Schwer- metalldeposition (LE, EMEP) mit Schwerme-	Vergleich der Kor- relationskoeffizien- ten nach Sachs & Hedderich (2009)	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), As, Cr, Cu, Ni, V, Zn, 25 km x 25 km, 2009-2011, Deutsch- land						
tallgehalten im Moos (geostatistische Flä-		Modellierte Schwermetalldeposition (EMEP), Cd, Pb, 50 km x 50 km, 2005, Deutschland u. Europa						
chenschätzungen)		Geostatistische Flächenschätzung der Schwerme- tallgehalte im Moos (Pesch et al. 2007b), Cd, Pb, 2005, Deutschland u. Europa, 3 km x 3 km						
		Geostatistische Flächenschätzung der Schwerme- tallgehalte im Moos (Pesch et al. 2007b), As, Cr, Cu, Ni, V, Zn, 2005, Deutschland, 3 km x 3 km						

Tabelle 4:Methodenbausteine und Datengrundlagen zur integrativen Datenauswertung zum
atmosphärischen Stoffeintrag

Aufgabe	Methode	Datengrundlage	Кар					
Vergleich von LE-/ EMEP-	Korrelationsanalyse (Kendall),	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cd, Pb, 7 km x 7 km, 2007-2011, Deutschland	2.6					
Modellierungen mit Daten aus der Um- weltprobenbank	Vergleich der Kor- relationskoeffizien- ten nach Sachs &	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), As, Cr, Cu, Ni, Zn, 25 km x 25 km, 2009-2011, Deutschland						
(UPB)	Hedderich (2009), Vergleich zeitlicher Trends	Modellierte Schwermetalldeposition (EMEP), Cd, Pb, 50 km x 50 km, 2007-2011, Deutschland						
		Gemessene Schwermetallgehalte im in Blät- tern/Nadeln (UPB), Cd, Pb, 2007-2011, Deutsch- land						
		Gemessene Schwermetallgehalte im in Blät- tern/Nadeln (UPB), As, Cr, Cu, Ni, Zn, 2009-2011, Deutschland						
Vergleich von LE-/ EMEP-	Korrelationsanalyse (Kendall),	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cd, Pb, 7 km x 7 km, 2007-2011, Deutschland	2.7					
Modellierungen mit Daten aus dem ICP Forests Level II Pro-	Vergleich der Kor- relationskoeffizien- ten nach Sachs & Hedderich (2009), Vergleich zeitlicher Trends	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cr, Cu, Ni, Zn, 25 km x 25 km, 2009-2011, Deutschland						
gramm		Modellierte Schwermetalldeposition (EMEP), Cd, Pb, 50 km x 50 km, 2007-2011, Deutschland						
		Gemessene Schwermetallgehalte in Blät- tern/Nadeln und Auflagehorizonten (ICP Forests Level II), Cr, Cd, Cu, Ni, Pb, Zn 2007-2011, Deutsch- land						
Statistische Modellie- rung und Berechnung	Regressionsanaly- se,	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), Cd, Pb, 25 x 25 km, 2005, Deutschland	2.8					
hochauflösender De- positionskarten durch	Regression-Kriging	Modellierte Schwermetalldeposition (LE), As, Ni, 25 km x 25 km, 2009-2011, Deutschland						
Modellierungen und Daten zu Schwerme- tallgehalten im Moos		Geostatistische Flächenschätzung der Schwerme- tallgehalte im Moos (Pesch et al. 2007b), As, Cd, Ni, Pb, 3km x 3 km, 2005, Deutschland						

In Kapitel 2.3 werden mit die mit LE und EMEP modellierten Cd-/Pb-Depositionen gegenübergestellt. Der statistische Vergleich erfolgt korrelationsanalytisch (Spearman), über einen Vergleich statistischer Kennzahlen (Mittelwert, Median, Min, Max, Standardabweichung) sowie inferenz-statistisch (Wilcoxon-Test). Darüber hinaus werden die zeitlichen Trends der modellierten Depositionen vergleichend analysiert.

Für die Gegenüberstellung der Depositionsmodellierungen und der Bioindikationsdaten (Kapitel 2.4 bis 2.7) erfolgt zunächst eine Integration durch räumliche Verknüpfung der punktuell erhobenen Messwerte mit den modellierten Rasterkarten. Für die Metalle der Gruppe A (Cd, Pb) und B (As, Cr, Cu, Ni, V, Zn) liegen Messdaten aus dem Moos-Monitoring und zum Teil auch der Umweltprobenbank und dem intensiven Waldmonitoring (Level II) vor. Hg musste ausgeklammert werden, da Depositionswerte zwar durch EMEP, aber nicht durch LE berechnet werden. Der statistische Vergleich fußt auf einem korrelationsanalytischen Vergleich (Spearman, Kendall) für die Beziehung zwischen den Bioindikationsdaten und den beiden CTM (LE, EMEP). Ob die Unterschiede der Korrelationen statistisch signifi-

kant sind, wird nach Sachs & Hedderich (2009) getestet. Zusätzlich werden die zeitlichen Trends der Monitoring- und Modellierungsdaten vergleichend untersucht.

Ausgeprägte statistische Beziehungen zwischen den gemessenen Konzentrationen im Moos und der LE-Modellierung werden quantifiziert und in einem statistischen Modell abgebildet (Kapitel 2.8). Ergänzend hierzu werden Möglichkeiten der Integration der modellierten Deposition (LE) mit Biomonitoringdaten (EMS) zur Berechnung hochauflösender Karten der Schwermetalldeposition (Cd, Pb) mittels Regression-Kriging (Hengl et al. 2004, Odeh et al. 1995) aufgezeigt und die Ergebnisse mit den Ergebnissen anderer Ansätze zur Depositionsberechnung verglichen.

Die wichtigsten Formeln für die im Rahmen dieser Studie verwendeten statistischen Maßzahlen (spezifischere werden in den einzelnen Kapiteln dargelegt) sind:

- Standardabweichung SD =
$$\sqrt{\frac{1}{n-1} * \sum (x_i - \bar{x})^2}$$
 (Gl. 1)

- Relativer Variationskoeffizient V_r =
$$\frac{SD/Mean}{\sqrt{n-1}} * 100$$
 (Gl. 2)

Als Zusammenhangsmaße wurden die Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman r_s (Gl. 3, Sachs & Hedderich 2009, S. 104) und nach Kendall r_τ (Gl. 4, R Core Team 2013, Package "Kendall", Version 2.2) verwendet, da diese entgegen dem Korrelationskoeffizienten nach Pearson keine Normalverteilung voraussetzen (typisch für die hier betrachteten Datenkollektive aus Biomonitoringprogrammen) und der Kendall'sche Rangkorrelationskoeffizient, der insbesondere bei kleineren Stichproben unempfindlicher gegenüber Ausreißern ist. Letzterer folgt aus der Ermittlung der Wahrscheinlichkeit der übereinstimmenden Paare abzüglich der nicht übereinstimmenden Paare im Verhältnis aller möglichen Kombinationen. Ermittelt wird der monotone Zusammenhang, der zwischen -1 und 1 liegen kann. Im Folgenden werden beide Korrelationsmaße in Anlehnung an Brosius (2013) interpretiert als: sehr schwach (< 0,2), schwach (0,2 bis < 0,4), mittel (0,4 bis < 0,6), stark (0,6 bis < 0,8), sehr stark (>= 0,8).

- Korrelationskoeffizient (Spearman) r_s =
$$1 - \frac{6\sum_{i=1}^{n} (R_{xi} - R_{yi})^2}{n(n^2 - 1)}$$
 (Gl. 3)

- Korrelationskoeffizient (Kendall)
$$r_{\tau} = S/D$$

mit: S =
$$\sum (sign(x[j[-x[i] * sign(y[j] - y[i])$$

$$D = n (n-1)/2$$

Als weitere Grundlage der Interpretation der berechneten Korrelationskoeffizienten wird die Signifikanz der Unterschiede der Korrelationskoeffizienten nach Gl. 5 in Anlehnung an Sachs und Hedderich (2009, S. 640) bestimmt:

$$x^{2} = \sum_{i=1}^{k} (n_{i} - 3)(z_{i} - z)^{2}$$
(Gl. 5)

(Gl. 4)

mit: χ^2 = Prüfwert

- k = Freiheitsgrad (Anzahl der Koeffizienten)
- n_i = Anzahl der Probenahmen
- z_i = Transformierter Korrelationskoeffizient nach Fisher
- z = Hypothetischer z-Wert nach Sachs & Hedderich (2009)

Die Unterschiedlichkeit der Korrelationskoeffizienten wird anhand einer zuvor definierten Irrtumswahrscheinlichkeit (α) getestet, welche auf $\alpha = 0.05$ festgesetzt wurde. Die Signifikanz steigt im Allgemeinen mit der Größe der Stichprobe. Solange χ^2 größer ist als der hypothetische z-Wert nach Sachs & Hedderich (2009), kann der Unterschied der Korrelationskoeffizienten als signifikant interpretiert werden.

Für die Analyse der zeitlichen Trends werden weiter jahresspezifische Mediane berechntet und lineare Regressionsgeraden nach der Methode der kleinsten Quadrate bestimmt. Neben der Steigung (b) wird das Bestimmtheitsmaß (B oder auch R²) genutzt, welches die Güte der Anpassung der Trendgeraden an die Punkte und mithin den Anteil der Varianz, der durch die lineare Regression erklärt werden kann, beschreibt (Sachs & Hedderich 2009).

- Bestimmtheitsmaß
$$B = r^{2}$$
 (Gl. 6)
mit: $r = \underline{Korrelationskoeffizient (Pearson)} = \frac{\sum (x_{i} - \bar{x})(y_{i} - \bar{y})}{\sqrt{\sum (x_{i} - \bar{x})^{2} \sum (y_{i} - \bar{y})^{2}}}$

- Regressionsgerade
$$y = a + bx$$
 (Gl. 7)
mit: $b = \frac{\sum (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sum (x_i - \bar{x})^2}$

mit:

Neben dem Bestimmtheitsmaß erfolgt zusätzlich eine Überprüfung des ermittelten Trends mittels des Trend-Tests nach Mann-Kendall (Mann 1945, Kendall 1975, Gilbert 1987) nach folgender Gleichung:

$$S = \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^{N} sgn(T_j - T_i)$$
(Gl. 8)

n = Stichprobenumfang

 T_i und T_i = jährliche Werte der Jahre j und i, mit i, j >i

sgn steht für das Vorzeichen wobei:

$$sgn(T_j - T_i) \begin{cases} 1 \ falls T_j - T_i > 0\\ 0 \ falls T_j - T_i = 0\\ -1 \ falls T_i - T_i < 0 \end{cases}$$

Beim Test nach Mann-Kendall wird ebenfalls der Korrelationskoeffizient r_t nach Gl. 4 ermittelt. Ein positives Vorzeichen zeigt den Anstieg beider Variablen, ein negatives Vorzeichen zeigt das Abnehmen des Trends an. Wie bei dem Vergleich der Korrelationskoeffizienten ist auch beim Vergleich verschiedener Trends das Festlegen einer Irrtumswahrscheinlichkeit (α) erforderlich. Diese wird im Folgenden bei Stichprobengrößen von n >= 5 mit α = 0,05 festgelegt. Für Fallzahlen n < 5 wird für den Testentscheid eine Irrtumswahrscheinlichkeit von α = 0,1 gewählt, da der Mann-Kendall-Test zwar angewendet werden kann, für diese Stichprobengrößen aber niemals Werte < 0,05 liefert. Bei p-Werten $\leq \alpha$ wird die Nullhypothese ("Es liegt kein systematischer Trend vor") verworfen. Der Vorteil des Mann-Kendall-Tests ist, dass weder eine Normalverteilung noch eine Linearität des Trends Voraussetzungen sind, sondern der Test das relative Ansteigen bzw. Abfallen der Werte im zeitlichen Verlauf vergleicht. Liegt kein zeitlicher Trend vor, würde S um den Wert Null pendeln. Die Datenanalysen erfolgten mit dem Statistikpaket R (R Core Team 2013).

2.3 Vergleich unterschiedlicher Modellierungen der atmosphärischen Schwermetalldeposition (LOTOS-EUROS, EMEP)

Die vergleichende Analyse der Cd- und Pb-Depositionsmodellierungen mit LOTOS-EUROS (LE) und EMEP dient der Klärung, welche räumlichen Verteilungen und zeitliche Trends beide CMT zeigen, worin ihre Unterschiede liegen und welche Implikationen sich hieraus hinsichtlich bestehender Datenund Modellunsicherheiten und der Interpretation der Modellierungsergebnisse ergeben.

2.3.1 Material und Methoden

Verwendet wurden die in einer Auflösung von 25 km mal 25 km (Jahr 2005) bzw. 7 km mal 7 km (Zeitraum 2007-2011) vorliegenden LE-Modellrechnungen sowie die 50 km mal 50 km aufgelösten EMEP-Karten (2005, 2007-2011) der modellierten Cd- und Pb-Deposition über Deutschland. Als Ge-samtdeposition wurde zum einen das entsprechend der Landnutzungsverteilung in jedem LE-Rasterelement gewichtete Mittel der trockenen Deposition zuzüglich der nassen Deposition verwendet (2005, 2007-2011), zum anderen die nutzungsspezifische LE-Deposition (Jahr 2011), die LE für 9 Landnutzungsklassen berechnet. EMEP modelliert die nutzungsspezifische Deposition für 18 Landnutzungsklassen⁸.

Für die vergleichende räumliche Analyse wurden die für Deutschland flächenmäßig bedeutendsten und mit LE vergleichbaren Landnutzungsklassen gewählt: Grasland, Laubwald und Nadelwald. Als Basisgeometrie wurde das EMEP-Grid bestehend aus 204 Zellen verwendet, die die Gesamtfläche Deutschlands abdecken. Für jedes EMEP-Rasterelement wurde der Median der LE-Modellierung als zentrale Tendenz bestimmt und dem entsprechenden EMEP-Depositionswert zugeordnet. Der Median wurde dem arithmetischen Mittelwert vorgezogen, da sich dieser bei geringen Stichprobengrößen, asymmetrischen Verteilungen und gegenüber Ausreißern vergleichsweise robuster zeigt. Der Vergleich zwischen LE und EMEP erfolgte anhand statistischer Kennzahlen (Min, Max, Median, Mittelwert, Standardabweichung, relativer Variationskoeffizient), inferenz-statistisch (Wilcoxon-Test für gepaarte, nicht-normalverteilte Stichproben) sowie korrelationsanalytisch nach Spearman. Weiter wurden zum Zwecke des Modellvergleichs die EMEP/LE-Quotienten⁹ der Cd- und Pb-Deposition (incl. nut-

⁸ Temperate coniferous forest, Temperate deciduous forest, Mediterranean needleleaf forest, Mediterranean broadleaf forest, Temperate crops, Mediterranean crops, Root crops, Semi-natural, Wheat, Grasslands, Mediterranean shrub, Wetlands, Tundra, Desert/Barren, Inland water, Ice, Urban, Sea water

⁹ gibt das Verhältnis der EMEP-Deposition zur entsprechenden LOTOS-EUROS-Deposition an (z.B. bezogen auf eine EMEP-Rasterzelle)

zungsspezifischer Depositionen) für jede EMEP-Rasterzelle berechnet und deren räumliche Verteilungen untersucht.

Für die vergleichende Trendanalyse wurden jeweils die jahresspezifischen Mediane der modellierten Cd- und Pb-Deposition in Deutschland berechnet. Um die Vergleichbarkeit beider Modelle sicherzustellen, wurden zunächst beide Datensätze auf den gleichen Zeitraum zugeschnitten (2007-2011). Der LE-Medianwert von 2005 wurde nicht berücksichtigt, da dieser auf einer anderen Modellierung (25 km x 25 km Raster) beruht und sich dadurch deutlich von den übrigen mit LE modellierten Werten unterscheidet. Auf dieser Grundlage erfolgten für beide CTM die Ermittlung der Trendgeraden bzw. Bestimmtheitsmaße nach den Gl. 6 und 7 sowie der Trend-Test nach Mann-Kendall (Gl. 8). Weiter wurde, da EMEP einen deutlich längeren Zeitraum ohne Lücken abbildet, der Trend-Zeitraum bei EMEP sukzessive so erweitert, bis sich ein signifikanter Trend zeigte.

2.3.2 Ergebnisse

Die statistischen Kennwerte der modellierten atmosphärischen Gesamtdeposition von Blei und Cadmium in Deutschland sind zusammenfassend in Tabelle 5 wiedergegeben. Dargestellt sind die Kennwerte für das Jahr 2005 sowie den Zeitraum 2007–2011 (5-Jahres-Mittel). Eine Aufschlüsselung der Kennwerte für die Einzeljahre des Zeitraumes 2007–2011 ist Anhang A2.3 zu entnehmen. Der Vergleich der statistischen Kennzahlen der beiden Depositionsmodelle zeigt, dass EMEP deutlich höhere Werte modelliert als LE. Beide Populationen sind signifikant ungleich verteilt (Wilcoxon-Test, gepaart, $\alpha = 0,05$). Die Abweichungen zwischen beiden Modellen sind bei Pb allgemein größer als bei Cd. Dies stellt sich im Einzelnen wie folgt dar:

Cd - Cadmium. Die Verteilung der mit LE für den Zeitraum 2007-2011 modellierten Cd-Gesamtdeposition über Deutschland weist einen Median von 25,70 µg/m²a auf. Im Vergleich zum EMEP-Modell werden damit deutlich geringere mittlere Depositionsraten (= 72 % des EMEP-Medians) für die Fläche Deutschlands berechnet. Auch der Wilcoxon-Test für gepaarte, nicht-normalverteilte Stichproben (Anhang A2.1) bestätigt, dass der Median von LE signifikant kleiner ist als der der EMEP-Daten (p < 0,05). Auffällig ist, dass insbesondere das Maximum von LE mit 51,96 μ g/m²a sehr viel geringer ist als das der EMEP-Modellierung. Zwischen beiden Cd-Depositionsmodellierungen des Zeitraumes 2007-2011 ergibt sich ein mittelstarker Zusammenhang mit einem Korrelationskoeffizienten (Spearman) von r_s = 0,47, für das Jahr 2005 ein schwacher Zusammenhang mit einem Korrelationskoeffizienten von $r_s = 0,39$ (Tabelle 6). Die größten Unterschiede in den Medianwerten der Cd-Deposition zwischen EMEP und LE finden sich bei den Depositionen im Nadelwald, gefolgt von Laubwald und die geringsten Abweichungen bei Grasland (Tabelle 5). Der Median der Cd-Deposition bei Wald (= Mittel Nadel-/Laubwald) ist bei EMEP um das 3,2-fache höher und bei LE um das 1,4-fache höher als die modellierte Deposition über Grasland. Dies legt einen Vergleich mit empirisch ermittelten Verhältniszahlen der Cd-Konzentrationen im Moos (Traufbereich/Freifläche) nahe, die mit Moos-Daten aus Nord-West-Deutschland der Jahre 2012 und 2013 (Meyer et al. 2015) ermittelt wurden. Hier beträgt das Verhältnis Traufbereich/Freifläche $0,16/0,10 \,\mu g/g$ (=1,6), ist also im Ergebnis eine wesentlich größere Übereinstimmung zwischen Cd-Gehalten im Moos und LE als zwischen Moos-Daten und EMEP festzustellen. Zwischen den nutzungsspezifischen Modellierungen der Cd-Deposition mit LE und EMEP finden sich die höchsten (= starke) Korrelationen beim Nadelwald ($r_s = 0,7$), mittlere beim Laubwald ($r_s =$ (0,44) und die schwächsten bei Grasland ($r_s = 0,22$) (Tabelle 6), d.h. die räumlichen Muster beider Modelle ähneln sich beim Nadelwald stärker als beim Grasland.

Tabelle 5:

Kennwerte der modellierten Cd- und Pb-Gesamtdeposition bezogen auf das 50 km mal 50 km alfgelöste EMEP-Grid über Deutschland (n = 204)

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD	Vr
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005, gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	9,65	81,45	20,14	19,45	6,18	2,15 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (EMEP)	µg/m² a	19,59	98,13	44,15	41,29	14,55	2,31 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2007-2011, gewichte- tes Mittel (LE)	μg/m² a	13,98	51,96	26,34	25,70	5,31	1,41 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2007-2011 (EMEP)	μg/m² a	15,45	181,13	41,32	35,59	20,80	3,52 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2011, Grasland (LE)	μg/m² a	9,23	50,10	17,64	19,61	5,05	2,00 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2011, Grasland (EMEP)	μg/m² a	12,67	101,82	28,73	26,09	13,76	3,35 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2011, Nadelwald (LE)	μg/m² a	11,01	85,96	29,45	30,86	7,86	1,87 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2011, Nadelwald (EMEP)	μg/m² a	30,16	785,33	123,38	99,20	108,29	6,15 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2011, Laubwald (LE)	μg/m² a	10,83	68,04	22,67	24,86	7,13	2,20 %
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2011, Laubwald (EMEP)	μg/m² a	25,92	555,44	86,38	68,65	76,19	6,18%
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005, gewichtetes Mittel (LE)	μg/m² a	274,72	2864,29	524,59	495,87	212,72	2,84 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (EMEP)	μg/m² a	634,72	3244,38	1692,04	1660,33	539,45	2,23 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2007-2011, gewichte- tes Mittel (LE)	µg∕m² a	334,65	1567,63	629,90	604,62	161,32	1,79 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2007-2011 (EMEP)	μg/m² a	571,18	4087,26	1333,56	1245,08	489,12	2,57 %

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD	Vr
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2011, Grasland (LE)	µg/m² a	205,07	1636,16	415,61	467,41	158,46	2,67 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2011, Grasland (EMEP)	µg/m² a	533,23	2526,80	1009,31	926,82	316,88	2,20 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2011, Nadelwald (LE)	µg/m² a	278,75	2813,29	669,51	721,15	222,01	2,32 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2011, Nadelwald (EMEP)	µg/m² a	1190,20	16535,0	3750,07	3178,30	2184,95	4,08 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2011, Laubwald (LE)	µg/m² a	241,51	2256,18	526,03	594,07	199,18	2,65 %
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2011, Laubwald (EMEP)	µg/m² a	1041,60	11558,0	2613,70	2232,40	1516,81	4,06 %

SD = Standardabweichung, Vr = Relativer Variationskoeffizient

Pb - Blei. Der Medianwert der mit LE für den Zeitraum 2007-2011 modellierten Pb-Deposition beträgt 604,62 µg/m² a und liegt damit auf einem Niveau von 49 % des EMEP-Medians. Auch zeigen sich Unterschiede insbesondere beim Depositionsmaximum, welches bei LE ähnlich Cadmium - deutlich geringer ist als bei EMEP. Zwischen dem LE- und EMEP-Modell berechnet sich für den Zeitraum 2007-2011 ein mittelstarker statistischer Zusammenhang mit $r_s = 0,56$ und für das Jahr 2005 ein schwacher Zusammenhang mit $r_s = 0,35$. Wie bei Cd finden sich auch bei Pb die größten Unterschiede der nutzungsspezifischen Medianwerte von EMEP und LE bei Nadelwald, gefolgt von Laubwald und die geringsten Abweichungen bei Grasland (Tabelle 5). Werden die nutzungsspezifisch unterschiedlichen Deposition bei Laub-/Nadelwald bei LE um das 1,4-fache und bei EMEP um das 2,9-fache höher als die entsprechende Pb-Deposition im Offenland. In Nord-West-Deutschland gewonnene Moosdaten der Jahre 2012/2013 zeigen im Vergleich dazu um den Faktor 1,9 höhere Pb-Gehalte im Traufbereich verglichen mit denen im Offenland (Meyer et al. 2015). Damit besteht zwischen den modellierten und empirisch ermittelten Verhältniszahlen bei Pb eine größere Übereinstimmung zwischen den Moos-Daten und LE als zwischen den Moos-Daten und EMEP.
Tabelle 6:Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen der mit LE und dem
EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdepositionen über Deutschland

Element	Beschreibung	Jahr	n	r _s	р
Cd	Gesamtdeposition (EMEP), gewichtetes Mittel* (LE)	2005	202	0,39	<0,01
Cd	Gesamtdeposition (EMEP), gewichtetes Mittel* (LE)	2007-11	202	0,47	<0,01
Cd	Gesamtdeposition, nutzungsspezifisch, Nadelwald (LE, EMEP)	2011	202	0,70	<0,01
Cd	Gesamtdeposition nutzungsspezifisch, Laubwald (LE, EMEP)	2011	202	0,44	<0,01
Cd	Gesamtdeposition, nutzungsspezifisch, Grasland (LE, EMEP)	2011	202	0,22	<0,01
Pb	Gesamtdeposition (EMEP), gewichtetes Mittel* (LE)	2005	202	0,35	<0,01
Pb	Gesamtdeposition (EMEP), gewichtetes Mittel* (LE)	2007-11	202	0,56	<0,01
Pb	Gesamtdeposition, nutzungsspezifisch, Nadelwald (LE, EMEP)	2011	202	0,54	<0,01
Pb	Gesamtdeposition, nutzungsspezifisch, Laubwald (LE, EMEP)	2011	202	0,37	<0,01
Pb	Gesamtdeposition, nutzungsspezifisch, Grasland (LE, EMEP)	2011	202	0,26	<0,01

* = entsprechend der Nutzungsverteilung in jeder LE-Gridzelle, n = Stichprobengröße, r_s = Korrelationskoeffizient nach Spearman, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Die räumlichen Verteilungen der EMEP/LE-Quotienten zeigen die Abbildung 2 bis 5. Die bereits bei Betrachtung der statistischen Maßzahlen festgestellten größten sowie kleinsten Unterschiede zwischen EMEP und LE stellen sich auch in den räumlichen Mustern dar. So zeigen sowohl die EMEP/LE-Quotienten für die nutzungsspezifische Cd- und Pb-Gesamtdeposition (Abbildung 3 bis 5), als auch für die modellierte Gesamtdepositionen (Mittel der Jahre 2007-2011), dass dort, wo EMEP besonders hohe Depositionen berechnet (z.B. im Ruhrgebiet bei Pb oder Nordrhein-Westfalen bei Cd), die Differenzen zwischen beiden Modellierungen am höchsten sind (Abbildung 2) und die Unterschiede beider Modelle sehr stark mit der Höhe der EMEP-Werte korrelieren. Dieses Ergebnis zeigt sich auch im Korrelationskoeffizienten mit einem Wert von $r_s > 0,9$.

Abbildung 2: Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für den Zeitraum 2007-2011 gemittelten Cd-Deposition (links) bzw. Pb-Deposition (rechts)



Abbildung 3: Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für das Jahr 2011 berechneten nutzungsspezifischen Cd-Deposition (links) bzw. Pb-Deposition (rechts) für Grasland



Abbildung 4: Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für das Jahr 2011 berechneten nutzungsspezifischen Cd-Deposition (links) bzw. Pb-Deposition (rechts) für Nadelwald



Abbildung 5: Räumliche Verteilung der EMEP/LE-Quotienten der für das Jahr 2011 berechneten nutzungsspezifischen Cd-Deposition (links) bzw. Pb-Deposition (rechts) für Laubwald



19

Die Resultate der vergleichenden Analyse der **zeitlichen Trends** werden durch Abbildung 6 veranschaulicht. Die zugehörigen Jahresmedianwerte sind Anhang A2.4 zu entnehmen.





Sowohl die Kennwerte für die modellierten LE- als auch EMEP-Daten zeigen für den Zeitraum 2007 2011 keine signifikanten zeitlichen Trends, d.h. alle p-Werte liegen bei Cd und Pb deutlich über dem Signifikanzniveau von α = 0,05. Die Güte der Modellanpassung der Trendgeraden ist bei beiden Metallen ebenfalls schwach: 0,20 < R² < 0,33. Dabei liegen die Steigungen der Trendgeraden (Cd, Pb) bei LE nahe 0. Auch die Korrelationskoeffizienten nach Kendall (tau) für die Beziehung zwischen beiden CTM betragen für Pb und Cd bei EMEP im Zeitraum 2007-2011 nur r_{τ} = -0,4, bei LE sogar nur r_{τ} = -0,2, wobei das Fehlen der Signifikanz v.a. auch durch den eher kurzen Betrachtungszeitraum bedingt sein dürfte. Nach der zumindest für EMEP möglichen sukzessiven Erweiterung des Trend-Zeitraums zeichnet sich ein signifikanter Trend für die Cd-Deposition ab einer Zeitspanne von 10 Jahren (2002 bis 2011, $r\tau = -0.56$, p = < 0.05) ab und für die Pb-Deposition erst ab einer Zeitspanne von 12 Jahren (2000 bis 2011, r_{τ} = -0,46, p = < 0,05). Auch für den gesamten Daten-Zeitraum 1998 bis 2011 ergibt sich ein signifikanter zeitlicher Trend, der vor allem bei Pb, aber auch bei Cd die Trend-Kennzahlen noch gegenüber den Trends der Cd-Zeiträume 2002-2011 bzw. Pb-Zeiträume 2000-2011 steigert. Die p-Werte nach Mann-Kendall liegen sowohl für Cd und Pb unter dem Signifikanzniveau, und auch die Korrelationskoeffizienten liegen beim Zeitraum 1998-2011 mit -0,54 bei Cd und -0,60 bei Pb höher, als beim Mindestzeitraum (= 10 bzw. 12 Jahre) für signifikante Trends.

Element	Beschreibung	b	R²	r _τ	р
Cd	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP 2007 bis 2011	-2,11	0,33	-0,40	0,46
Cd	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung LE 2007 bis 2011	-0,31	0,24	-0,20	0,81
Pb	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP 2007 bis 2011	-74,95	0,20	-0,40	0,46
Pb	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung LE2007 bis 2011	-0,02	0,30	-0,20	0,81
Cd	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP 2002 bis 2011	-1,12	0,48	-0,56	<0,05
Cd	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP 1998 bis 2011	-0,86	0,48	-0,54	<0,01
Pb	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP 2000- 2011	-48,89	0,47	-0,46	<0,05
Pb	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP 1998- 2011	-68,34	0,65	-0,60	<0,01

Tabelle 7:	Kennwerte zeitlicher Trends d	ler Cd-/Pb-Depositionen	nach LE und EMEP
	Kennwerte Zeitnener frenus u	ici cu /i b Depositionen	

b = Steigung der Trendgeraden, R² = Bestimmtheitsmaß, r_t = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikanter Trend mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

2.3.3 Diskussion und Schlussfolgerungen

Generell stellen Modelle aus Abstraktion und Formalisierung hervorgegangene Verkürzungen eines Realitätsausschnitts für einen bestimmten Zweck dar (Bailer-Jones 2000), so auch die beiden chemischen Transportmodelle LE und EMEP. Die hieraus allgemein resultierenden Vereinfachungen bedingen, dass Modelle mit mehr oder minder starken Unsicherheiten behaftet sind. Beide hier untersuchten Modelle weisen unterschiedliche innere Spezifika auf, so dass selbst bei Verwendung der gleichen (unsicheren) Eingangsdaten unterschiedliche Simulationsergebnisse folgerichtig sind. Der hier durchgeführte Vergleich zwischen den Simulationen der Pb- und Cd-Gesamtdepositionen in Deutschland mittels LE und EMEP wird daducrh in seiner Aussagekraft eingeschränkt, dass auf Grund der Datenverfügbarkeit die verwendeten Eingangsinformationen der Modellierung und die von ihnen dargestellte Zeiträume nicht identisch sind. In Bezug auf die Zeiten gilt dasselbe für die Vergleichsdaten aus dem Biomonitoring.

Die Ergebnisse der untersuchten Modellierungen (LE, EMEP) wichen bei Pb in einigen Teilen Deutschlands um bis zu 365% voneinander ab, bei Cd waren es bis zu 374%. Dass sich bei beiden Schwermetallen für LE (Deutschland 2005, 2007-2011, v.a. aber auch Europa 2005) durchgängig auch geringere Medianwerte (bei Cd mehr als das Doppelte, bei Pb mehr als das Dreifache) und Maxima im Vergleich zur EMEP-Modellierung ergaben, legt die Vermutung nahe, dass den Modellierungen jeweils unterschiedliche Emissions- und Meteorologiedaten zugrunde liegen, da in den Modellen prinzipiell sämtliche berücksichtigten Schadstoffemissionen nach dem Transport anderenorts in Europa wieder auf die Erdoberfläche abgeschieden werden. Eine Erklärung hierfür könnte darin zu finden sein, dass EMEP die berichteten Emissionsraten bekanntermaßen mit Hilfe von Expertenschätzungen korrigiert.

Der Befund, dass die Unterschiede beider Modelle sehr stark mit der Höhe der EMEP-Werte korrelieren, verdeutlicht, dass LE die räumliche Verteilung der Deposition bei beiden Metallen stärker glättet, EMEP hingegen Bereiche mit höheren Belastungen stärker herausstellt. Auffällig ist auch, dass umgekehrt die mit LE berechnete Deposition im Süden Bayerns höher ist als bei EMEP (Cd: 45 % höher, Pb: 12 % höher). Dieser Effekt könnte hauptsächlich auf relativ höhere nasse Depositionsraten im Alpengebiet im Vergleich zu EMEP zurückzuführen sein. Auch die unterschiedlichen räumlichen Verteilungen der (nutzungsspezifischen) LE/EMEP-Quotienten deuten auf unterschiedliche innere Modellstrukturen bzw. Berechnungswege hin.

Dass bei LE im Gegensatz zu EMEP die Steigungen der Trendgeraden (Cd, Pb) nahe 0 liegen, ist im Wesentlichen darauf zurückzuführen, dass die LE-Modellierung der trockenen Deposition zwar die meteorologische Dynamik (hier: 2007-2011) abbildet, diese aber auf Emissionsdaten eines Jahres (hier: 2005) fußen, woraus sich prinzipiell kein zeitlicher Trend für die Schwermetalldeposition ergeben kann, es sei denn für die nasse Deposition. Für korrelationsanalytische Vergleiche beider Modellierungen untereinander und mit nationalen Emissionstrends von Cd und Pb für Deutschland (Tabelle 3) müsste der Modellierungszeitraum für LE auf mind. 10 – 12 Jahre vergrößert werden.

Die Gründe für die Unterschiede zwischen beiden Transportmodellen sollten in einem Projekt zwischen den Modellierern (LE, EMEP) und Biomonitoringexperten geklärt werden. Dies gilt insbesondere im Hinblick auf die verwendeten Emissionsdaten als auch die Differenzen in/über belasteten Gebieten (Ballungsgebieten) bzw. in Höhenlagen Süd-Deutschlands. Wünschenswert wäre auch ein Austausch zwischen den Modellierern hinsichtlich einer verbesserten Abbildung der zeitlichen Trends (bei LE) oder Erhöhung der räumlichen Auflösung für ganz Europa (bei EMEP).

2.4 Vergleich von LOTOS-EUROS und EMEP-Modellierungen mit gemessenen Schwermetallkonzentrationen in Moosen

Ziel der Untersuchung war, die räumlichen und zeitlichen Muster der modellierten Schwermetalldepositionen mit vorliegenden Daten zu Schwermetallanreicherungen in Moosen zu vergleichen und zu ermitteln, inwieweit diese übereinstimmen oder sich unterscheiden und welche Schlussfolgerungen hieraus für die Güte bzw. Anpassungserfordernisse beider CTM gezogen werden können. Hierzu erfolgte eine vergleichende Korrelationsanalyse der mit LE- bzw. dem EMEP-Modell berechneten Schwermetalldepostitionen mit Messwerten aus dem Moos-Monitoring. Es wurde die Höhe der Korrelationen zwischen den Moos-Daten und den Modellrechnungen ermittelt und für Cd und Pb vergleichend beurteilt, ob die Unterschiede der Korrelationskoeffizienten statistisch signifikant sind. Die Analysen erfolgten auf europäischer Ebene, deutschlandweit und für unterschiedliche Belastungsstufen der Schwermetallgehalte im Moos.

2.4.1 Material und Methoden

Die aktuellste bundesweit repräsentative Erhebung zu Schwermetallgehalten in Moosen stammt aus dem UNECE Moss Survey 2005/06. In Europa umfasste das Monitoringmessnetz der Jahre 2005/06 5424 Standorte in 27 Staaten, davon in Deutschland 728 Standorte (Abbildung 1). Letzteren konnten weitere 41 Probenentnahmestellen aus einem Studienprojekt der Universität Vechta des Jahres 2004 hinzugefügt werden. Geeignete Metadaten zur Landnutzung an den Moosentnahmestellen liegen aus dem Jahr 2005 lediglich für 152 EMEP-Rastereinheiten und 209 LE-Rastereinheiten über Deutschland vor. Dabei handelt es sich gemäß der Metadaten überwiegend um Standorte in Waldlichtungen.

Für die vergleichende Analyse wurde die atmosphärische Cd- und Pb-Gesamtdeposition mit LE für das Bezugsjahr 2005 berechnet und die entsprechende EMEP-Modellierung hinzugezogen. Die Auflösung der verwendeten LE-Daten für Cd und Pb beträgt deutschlandweit 7 km mal 7 km und europaweit 25 km mal 25 km. Da für die Metalle der Gruppe B (As, Cr, Cu, Ni, V und Zn) keine zeitlichen Trends der Emissionen bekannt sind, wurden für Vergleiche mit den Moos-Daten das Mittel der LE-Gesamtdeposition der Jahre 2009-2011 mit einer Auflösung von 25 km mal 25 km verwendet.

Für die integrierte räumliche Auswertung der Schwermetalldaten wurden die Messnetzgeometrien des Biomonitorings zunächst mit den EMEP-Rastern (50 km mal 50 km) sowie LE (7 km mal 7 km) räumlich verknüpft. Dazu wurde das in jedem LE-Rasterelement entsprechend der Landnutzungsverteilung gewichtete Mittel der trockenen Deposition plus der nassen Deposition verwendet (siehe Teilbericht 1). Hinzugezogen wurde die nutzungsspezifische Cd- und Pb-Gesamtdeposition (LE)für die Landnutzungsklassen: Nadelwald, Laubwald und Grasland, da diese die für Deutschland flächenmäßig bedeutsamsten und in beiden Modellen berücksichtigten Landnutzungsklassen darstellen. Um zu überprüfen, ob eine Kombination aus LE und EMEP evtl. zu höheren Korrelationen führt, wurde darüber hinaus das arithmetische Mittel aus beiden CTM gebildet und mit den Moos-Daten verglichen. Der statistische Vergleich verwendet aufgrund der fehlenden Normalverteilung und hohen Stichprobenzahlen den Korrelationskoeffizienten nach Spearman. Unterschiede der festgestellten Korrelationen zwischen Moos-Daten und EMEP, LE sowie dem arithm. Mittel aus EMEP und LE wurden nach Gl. 5 auf statistische Signifikanz überprüft. Probestellen mit Schwermetallgehalten größer oder kleiner der 3-fachen Standardabweichung wurden als Ausreißer eliminiert.

Für die vergleichende Analyse der zeitlichen Trends der Modellierungs- und Moosdaten wurden nur die mit dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdepositionen herangezogen, da allein diese einen signifikanten zeitlichen Trend zeigten (zur Begründung siehe Kapitel 2.3). Um beide Zeitreihen (EMEP und Moos) miteinander vergleichen zu können, wurden zunächst jahresspezifische Mediane berechnet und diese anschließend auf das Bezugsjahr 2005 normiert. Für die Schwermetallakkumulationen im Moos standen Werte aus den Jahren 1991 (Cd: n = 208; Pb: n = 286), 1995 (Cd, Pb: n = 895), 2000 (Cd, Pb: n = 770) und 2005 (Cd, Pb: n = 769) zur Verfügung, aus EMEP Daten für den Zeitraum 1998 bis 2011 (Cd, Pb: n = 204). Da der Mann-Kendall-Test für p-Werte < 0,05 eine Stichprobenzahl von n >= 5 erfordert, wurden die zeitlichen Trends in den Moosdaten (n = 4) nur auf einem Signifikanzniveau von $\alpha = 0,1$ getestet. Für die Schwermetallgruppe B besteht aufgrund fehlender EMEP-Modellierungsdaten keinerlei Vergleichsmöglichkeit der zeitlichen Trends.

2.4.2 Ergebnisse

Schwermetallgruppe A: Die Maßzahlen der deskriptiven Statistik zur Depostionsmodellierung (Cd, Pb; LE, EMEP; nutzungsspezifisch, nutzungsunspezifisch; Deutschland, Europa) sowie zu den gemessenen Cd- und Pb-Konzentrationen im Moos des Jahres 2005 sind der nachfolgenden Tabelle 8 zu entnehmen. Tabelle 8:

Kennwerte der gemessenen Cd- und Pb-Gehalte im Moos und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Median	Mean	SD
Cd	Cd-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	0,06	1,71	0,20	0,24	0,14
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), gewichtetes Mittel (LE)	µg∕m² a	12,37	74,73	20,58	21,36	5,92
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland) (EMEP)	µg∕m² a	21,66	98,13	42,80	46,84	14,79
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Nadelwald (LE)	µg∕m² a	11,13	101,64	24,51	25,83	7,11
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Nadelwald (EMEP)	µg/m² a	26,61	1029,70	134,48	162,88	130,99
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Laubwald (LE)	µg/m² a	13,30	81,47	22,28	23,31	5,64
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Laubwald (EMEP)	µg/m² a	23,92	759,91	98,02	119,25	95,46
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Grasland (LE)	µg/m² a	9,52	56,52	16,92	17,66	4,14
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Grasland (EMEP)	µg/m² a	13,85	134,21	35,03	39,28	18,94
Cd	Cd-Gehalt in Moosen 2005 (Europa), gemessen	µg/g	0,01	6,72	0,17	0,22	0,24
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Europa), gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	2,01	221,03	14,58	16,74	11,98
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Europa) (EMEP)	µg/m² a	3,45	701,88	32,52	42,67	44,73
Pb	Pb-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	1,19	40,41	3,70	4,54	3,28
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	310,81	2618,53	520,99	563,12	211,03

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Median	Mean	SD
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland) (EMEP)	µg/m² a	777,92	3244,38	1739,91	1816,97	535,79
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Nadelwald (LE)	µg/m² a	304,00	3569,43	618,76	677,03	257,93
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Nadelwald (EMEP)	μg/m² a	1039,40	20691,0	4616,10	5214,85	2799,58
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Laubwald (LE)	μg/m² a	329,94	2837,74	555,03	605,77	205,62
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Laubwald (EMEP)	μg/m² a	907,22	15153,00	3467,50	3792,73	2040,68
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Grasland (LE)	μg/m² a	262,60	1954,01	432,54	472,58	152,07
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), nutzungs- spezifisch, Grasland (EMEP)	µg/m² a	536,36	3651,60	1258,50	1379,97	495,15
Pb	Pb-Gehalt in Moosen 2005 (Europa), gemessen	µg/g	0,10	248,64	3,79	6,19	9,42
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Europa), gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	49,79	2618,53	290,95	342,63	216,48
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Europa) (EMEP)	µg/m² a	115,44	5550,18	1085,50	1233,65	778,43

SD = Standardabweichung

Die Resultate der Korrelationsanalyse zwischen den Moosdaten (Cd, Pb) und den entsprechenden LE / EMEP - Depositionen (nutzungsspezifisch / nutzungsunspezifisch) für die räumlichen Bezugsebenen Europa / Deutschland sowie in Bereiche unterschiedlicher Belastungen ober- und unterhalb des 50 %-Perzentils (P₅₀) der Schwermetallgehalte im Moos sind in Tabelle 9 zusammengefasst.

Tabelle 9:

Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen den gemessenen Cdund Pb-Gehalten im Moos und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland und Europa

Element	Probenart	n _(LE)	r _{s (LE)}	p (le)	n _(EMEP)	r _{s(EMEP)}	р (ЕМЕР)	n _(le_em)	r _{s(LE_EM)}	р (le_ем)
Cd	Moos (Deutschland)	751	0,31	<0,01	751	0,27	<0,01	751	0,32	<0,01
Cd	Moos, Nadelwald (Deutschland)	151	0,35	<0,01	103	0,44	<0,01			
Cd	Moos, Laubwald (Deutschland)	40	0,11	0,51	34	0,12	0,47			
Cd	Moos, Grasland (Deutschland)	18	0,60	<0,01	15	0,34	0,17			
Cd	Moos (Deutsch- land), untere Hälfte (< P ₅₀) der Konzentration im Moos	340	0,20	<0,01	340	0,17	<0,01	340	0,21	<0,01
Cd	Moos (Deutsch- land), obere Hälfte (>P ₅₀) der Konzentration im Moos	411	0,23	<0,01	411	0,19	<0,01	411	0,20	<0,01
Cd	Moos (Europa)	5299	0,66	<0,01	5299	0,59	<0,01	5299	0,63	<0,01
Cd	Moos (Europa), untere Hälfte (<p<sub>50) der Konzentration im Moos</p<sub>	2630	0,50	<0,01	2630	0,24	<0,01	2630	0,32	<0,01
Cd	Moos (Europa), obere Hälfte (>P ₅₀) der Konzentration im Moos	2669	0,45	<0,01	2669	0,49	<0,01	2669	0,50	<0,01
Pb	Moos (Deutschland)	753	0,35	<0,01	753	0,31	<0,01	753	0,35	<0,01
Pb	Moos, Nadelwald (Deutschland)	151	0,44	<0,01	103	0,41	<0,01			
Pb	Moos, Laubwald (Deutschland)	40	0,12	0,04	34	0,42	0,02			
Pb	Moos, Grasland, (Deutschland)	18	0,34	0,97	15	-0,28	0,31			
Pb	Moos (Deutsch- land), untere Hälfte (<p<sub>50) der Konzentration im Moos</p<sub>	378	0,12	0,02	378	0,22	<0,01	378	0,23	<0,01
Pb	Moos (Deutsch- land), obere Hälfte (>P ₅₀) der Konzentration im Moos	375	0,23	<0,01	375	0,17	<0,01	375	0,21	<0,01
Pb	Moos (Europa)	5305	0,56	<0,01	5305	0,65	<0,01	5305	0,64	<0,01

Element	Probenart	n _(LE)	r s (LE)	p (LE)	n _(EMEP)	r s(emep)	р (емер)	n _(le_em)	r _{s(LE_EM)}	р (le_ем)
Pb	Moos (Europa), untere Hälfte (<p<sub>50) der Konzentration im Moos</p<sub>	2659	0,52	<0,01	2659	0,47	<0,01	2659	0,48	<0,01
Pb	Moos (Europa), obere Hälfte (>P ₅₀) der Konzentration im Moos	2646	0,32	<0,01	2646	0,47	<0,01	2646	0,47	<0,01

 $P_{50} = 50$. Perzentil, n = Stichprobengröße, r_s = Korrelationskoeffizient nach Spearman, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit), LE = LOTOS-EUROS, EMEP = EMEP-Modell, LE_EM = arithmetisches Mittel (LE, EMEP), --- = nicht berechnet

Cd - *Cadmium.* An den 769 untersuchten Probestellen in Deutschland (Bezugsjahr 2005) beziffert sich der Median der Cd-Gehalte im Moos zu 0,20 µg/g (Min. 0,06 µg/g, Max 1,71 µg/g), was in etwa der Höhe des europäischen Medians (= 0,17 µg/g) entspricht. Zwischen den Moosgehalten in Deutschland und der LE-Deposition (Abbildung 7) besteht ein schwacher statistischer Zusammenhang mit einem Korrelationskoeffizienten nach Spearman von $r_s = 0,31$ (p < 0,01).

Abbildung 7: Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten im Moos in Deutschland (oben) bzw. Europa (unten) und modellierter Cd-Gesamtdeposition aus dem EMEP-Modell (links) bzw. LE (rechts)



Ein ebenfalls signifikanter, aber schwächerer Zusammenhang ist auch für das EMEP-Modell feststellbar ($r_s = 0,27$, p < 0,01). Gemäß Gl. 5 ist dieser Unterschied aufgrund der hohen Stichprobenzahl als statistisch signifikant einzustufen (p < 0,05). Im europäischen Maßstab ist die Korrelation ausgeprägter, wobei sich die Beziehung zu LE stärker zeigt ($r_s = 0,66$, p < 0,01) als bei der EMEP-Modellierung ($r_s = 0,59$, p < 0,01). Die Unterschiede der Korrelationskoeffizienten sind ebenfalls statistisch signifikant (p < 0,05).

Beim Vergleich der nutzungsspezifisch modellierten Depositionen (EMEP, LE) mit Moosproben aus Nadelwäldern (n = 151), Laubwäldern (n = 40) und Grasland (n = 16), die anhand der Metadaten aus der Moos-Datenbank nutzungsspezifisch zugeordnet werden konnten, ergaben sich signifikante Korrelationen zwischen Graslandproben und LE ($r_s = 0,34$, p < 0,01) sowie zwischen Nadelwaldproben und LE ($r_s = 0,35$, p < 0,01) bzw. auch EMEP ($r_s = 0,44$, p < 0,01). Damit zeigten sich mit Berücksichtigung der Landnutzungsdaten höhere Korrelationskoeffizienten als ohne.

Durch Gruppierung der Cd-Gehalte im Moos in unterschiedliche Belastungsstufen, fällt auf, dass im europäischen Maßstab unterhalb des 50 %-Perzentils höhere Korrelationen zu den LE-Daten zu finden sind als zu EMEP.Die Integration der LE/-EMEP-Daten durch das arithm. Mittel ergibt, dass dieses in 3 von 6 Fällen nach Gl. 5 signifikant höher mit den Cd-Konzentrationen im Moos korreliert sind, als die einzelnen LE- bzw. EMEP-Modellierungen.

Pb - Blei. Die Bleigehalte im Moos weisen in Deutschland im Jahr 2005 eine Spanne von 1,19 µg/g bis 40,41 µg/g auf. Der Median beträgt bundesweit 3,70 µg/g, in Europa nahezu identische 3,79 µg/g. Die Verteilung der Moos-Daten ist bei einem Momentkoeffizienten von 4,1 stark linkssteil (Anhang A2.2). An den Messpunkten des Moss Surveys berechnet LE für Deutschland eine Pb-Gesamtdeposition von durchschnittlich 563,12 µg/m²a (SD = 211,03), der Medianwert liegt bei 520,99 µg/m²a. Für Europa ergibt sich bei LE ein Median von 290,95 µg/m²a. Dies ist in beiden Fällen auffällig niedriger als bei der entsprechenden EMEP-Modellierung. Der Zusammenhang zwischen den Pb-Gehalten im Moos und LE (Abbildung 8) beziffert sich in Deutschland zu $r_s = 0,35$ (= schwach, p < 0,01) und im Falle von EMEP zu $r_s = 0,31$ (= schwach, p < 0,01). Diese vergleichsweise größere Übereinstimmung der räumlichen Muster der Moos-Daten mit LE erweist sich nach Gl. 5 als statistisch signifikant. Die europäischen Moos-Daten zeigen eine vergleichsweise höhere Korrelation mit den EMEP- Berechnungen ($r_s = 0,65$, p < 0,01) als mit LE ($r_s = 0,56$, p < 0,01). Dies gilt allerdings nicht für die Gruppe mit Belastungen unterhalb des 50 %-Perzentils der Pb-Gehalte im Moos.

Der nutzungsspezifische Vergleich zwischen Modellierungs- und Monitoringdaten führt zu hochsignifikanten Korrelationen (p < 0,01) im Nadelwald (LE: $r_s = 0,44$, EMEP: $r_s = 0,41$) und zu signifikanten Korrelationen (p < 0,05) im Laubwald (LE: $r_s = 0,12$, EMEP: $r_s = 0,42$). Damit zeigt die nutzungsspezifische Betrachtung zumindest bei Nadelwald, bei EMEP zusätzlich auch bei Laubwald stärkere Korrelationen als ohne Einbeziehung von Nutzungsdaten.

Das arithmetische Mittel der mit LE und EMEP modellierten Pb-Depositionen ist in 1 von 6 Fällen signifikant höher (Gl. 5) mit den entsprechenden Konzentrationen im Moos korreliert, als die einzelnen Modellberechnungen.

Abbildung 8: Streudiagramme für die Beziehung zwischen Pb-Gehalten im Moos in Deutschland (oben) bzw. Europa (unten) und modellierter Pb-Gesamtdeposition aus dem EMEP-Modell (links) bzw. LE (rechts)



Die Analyseergebnisse des zeitlichen Trendvergleichs der Cd- und Pb-Depositionen (EMEP) und den aus vier Moos-Kampagnen vorliegenden Daten zu Cd- und Pb-Konzentrationen im Moos auf Basis der Jahresmediane (1991, 1995, 2000, 2005) veranschaulichen die Tabelle 10 sowie die Abbildungen 9 und 10. Die entsprechenden Werte sind Anhang A2.5 zu entnehmen.

Cd - *Cadmium.* Für den Zeitraum 1998 bis 2011 zeichnet sich bei den Cd-Depositionen (EMEP) nach Mann-Kendall mit $r_{\tau} = -0,54$ (p = < 0,01, Tabelle 10) ein signifikanter Trend, d.h. signifikante Abnahmen der Deposition ab. Verglichen hiermit ist bei den normierten Cd-Gehalten im Moos auf der Grundlage der 4 Moos-Kampagnen seit 1991 zwar ein zeitlicher Trend erkennbar, jedoch durch den Mann-Kendall-Test aufgrund der geringen Stichprobenzahl nicht als signifikant nachweisbar (p = 0,47). *Pb* – *Blei.* Zwischen 1991 und 2005 ist bei den Pb-Konzentrationen im Moos ein abnehmender Trend erkennbar, der mit einer Irrtumswahrscheinlichkeit ($\alpha = 0,1$) trotz der wenigen Monitoringzeitschnitte als signifikant einzustufen ist (p = 0,09, Tabelle 10). Dies entspricht signifikant abnehmenden Trends in der modellierten Pb-Deposition (EMEP, 1998-2011, $r_{\tau} = -0,60$, p = < 0,01).





Tabelle 10:Kennwerte zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Moosen in Deutschland und der Cd-
/Pb-Depositionen nach EMEP

Element	Beschreibung	b	R²	r _τ	р
Cd	Zeitlicher Trend der Depositionsmodellierung (EMEP, 1998-2011)	-2,08	0,48	-0,54	<0,01
Cd	Zeitlicher Trend der Moosgehalte in Deutschland (1991-2005)	-2,45	0,75	-0,55	0,47
Pb	Zeitlicher Trend der Depositionsmodellierung (EMEP, 1998-2011)	-4,12	0,65	-0,60	<0,01
Pb	Zeitlicher Trend der Moosgehalte in Deutschland (1991-2005)	-16,49	0,89	-1,00	0,09

b = Steigung der Trendgeraden, R² = Bestimmtheitsmaß, r_{τ} = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikanter Trend mit p < 0,01 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Schwermetallgruppe B: Die Ergebnisse der deskriptiv-statistischen sowie korrelationsanalytischen Auswertung basierend auf den bundesweiten LE-Modellierungen für As, Cr, Cu, Ni, V und Zn sowie entsprechenden Daten zu Schwermetallgehalten im Moos sind den Tabellen 11 und 12 zu entnehmen.

Tabelle 11:Kennwerte der gemessenen As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalte im Moos (2005) und der
mit LE berechneten As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gesamtdeposition (2009-2011, gemit-
telt)

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD
As	As-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	0,004	21,60	0,43	0,17	0,99
As	As-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	2,16	90,51	24,79	23,63	13,35
Cr	Cr-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	0,01	90,74	2,49	1,29	4,56
Cr	Cr-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	6,38	309,73	78,57	74,92	41,29
Cu	Cu-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	0,01	671,92	6,92	5,34	14,14
Cu	Cu-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	8,19	6939,07	273,49	188,83	247,91
Ni	Ni-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	0,03	1016,03	2,46	1,39	15,11
Ni	Ni-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	14,69	609,46	171,18	162,18	79 <i>,</i> 53
V	V-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	0,02	43,50	2,31	1,40	2,93
V	V-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	4,65	337,78	41,80	35,91	23,82
Zn	Zn-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), gemessen	µg/g	6,06	693,82	36,94	32,49	22,95
Zn	Zn-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	59,48	7054,55	1092,28	914,81	843,18

SD = Standardabweichung

As – *Arsen.* Die Arsenkonzentration im Moos lag in Deutschland im Jahr 2005 zwischen 0,004 μg/g bis 21,60 μg/g. Das arithmetische Mittel betrug bundesweit 0,43 μg/g (SD = 3,28) und der Median 0,17 μg/g. Die As-Deposition an den Moosentnahmestellen, berechnet als arithmetisches Mittel der LE-Modellrechnungen für die Jahre 2009 bis 2011, liegt bei 24,79 μg/m²a (SD = 13,35), der Medianwert liegt bei 23,63 μg/m²a. Der Korrelationskoeffizient zwischen den Monitoring- und Modellierungsdaten in Deutschland beziffert sich nach Spearman zu r_s = 0,29 (= schwach, p < 0,01).

Cr – *Chrom.* Die Cr-Gehalte im Moos des Jahres 2005 lagen zwischen 0,01 µg/g und 90,74 µg/g mit einem Mittel von 2,49 µg/g (SD = 4,56) und einem Medianwert von 1,29 µg/g. Die LE-Modellrechnung ergab im Mittel der Jahre 2009 bis 2011 eine Gesamtdeposition von 78,57 µg/g (Medianwert 74,92 µg/g). Zwischen den Cr-Konzentration im Moos und der LE-Deposition zeigt sich ein zunächst unplausibel erscheinender negativer statistischer Zusammenhang (r_s = -0,15, p < 0,01).

Cu – Kupfer. Das Minimum der Cu-Gehalte im Moos betrug im Jahr 2005 0,01 µg/g, das Maximum 671,92 µg/g, der Mittelwert von 6,92 µg/g (SD = 14,14) und der Medianwert 5,34 µg/g. Die Cu-

Gesamtdeposition berechnet LE für die Jahre 2009 bis 2011 zu einem Mittel von 273,49 μ g/m²a (SD = 247,91) mit einem Median von 188,83 μ g/m²a. Zwischen den Biomonitoringdaten und LE bestehen mit r_s = 0,22 (p < 0,01) schwache statistische Relationen.

Ni - Nickel. Die Nickel-Konzentrationen im Moos betrugen 0,03 µg/g bis 1016,03 µg/g. Der Mittelwert beziffert sich zu 2,46 µg/g (15,11 µg/g), der Medianwert zu 1,39 µg/g. LE berechnet eine mittlere Ni-Deposition (Zeitraum: 2009-2011) von 171,18 µg/m² a mit einem Medianwert von 162,18 µg/m² a. Die LE-Modellrechnungen korrelieren nur schwach mit den Monitoringdaten (r_s = 0,20, p < 0,01).

V – *Vanadium*. In den Moosen wurden im Jahr 2005 Konzentrationen zwischen 0,02 µg/g und 43,50 µg/g gemessen (Mittelwert: 2,31 µg/g, Medianwert: 1,40 µg/g). Die Modellierung der V-Deposition mit LE ergibt für die Jahre 2009 bis 2011 ein arithmetisches Mittel von 41,80 µg/m² a und einen Medianwert von 35,91 µg/m² a. Die Analyse des statistischen Zusammenhangs zwischen den Moosdaten und den Modellierungsdaten ergibt nur eine sehr schwache Korrelation (r_s = 0,13, p < 0,01).

Zn - Zink. Die Zn-Gehalte in den Moosproben des Jahres 2005 betrugen 6,06 µg/g bis 693,82 µg/g und mittelten sich zu 36,94 µg/g (Median: 32,49 µg/g). Die Gesamtdeposition aus LE liegt im Mittel der Jahre 2009 bis 2011 bei 1092,28 µg/m²a (Median: 914,81 µg/m²a). Die statistischen Relationen zwischen den Biomonitoring- und Modellierungsdaten sind sehr schwach (r_s = 0,13, p < 0,01).

Tabelle 12:Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen den gemessenen As-,
Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalten im Moos (2005) und der entsprechend mit LE berech-
neten Gesamtdeposition (2009-2011, gemittelt) über Deutschland

Element	Beschreibung	n _(LE)	r _{s (LE)}	p (le)
As	Moos, 2005 (Deutschland), gemessen	752	0,29	<0,01
Cr	Moos, 2005 (Deutschland), gemessen	765	-0,15	<0,01
Cu	Moos, 2005 (Deutschland), gemessen	758	0,22	<0,01
Ni	Moos, 2005 (Deutschland), gemessen	756	0,20	<0,01
V	Moos, 2005 (Deutschland), gemessen	757	0,13	<0,01
Zn	Moos, 2005 (Deutschland), gemessen	758	0,13	<0,01

n = Stichprobengröße, r_s = Korrelationskoeffizient nach Spearman, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 Irrtumswahrscheinlichkeit

2.4.3 Diskussion und Schlussfolgerungen

Der European Moss Survey zielt darauf ab, den Zustand von emittentenfernen, also nicht unmittelbar von lokalen Emissionsquellen beeinflussten terrestrischen Ökosystemen zu erfassen. Hierdurch sollen empirische Nachweise für den grenzüberschreitenden Ferntransport von Luftschadstoffen in Europa, Ermittlungen räumlicher Depositionsmuster von Schadstoffen, Lokalisierungen wichtiger Schadstoff-Emissionsquellen, Lage und Ausdehnung besonders belasteter Gebiete, Analysen zeitlicher Trends sowie Evaluationen der Wirksamkeit immissionsschutzpolitischer Maßnahmen unterstützt werden (ICP Vegetation 2014). Die Bioindikation mit Moosen besitzt gegenüber technischen Messverfahren für atmosphärische Stoffeinträge vor allem messtechnische (Messwerte deutlich oberhalb Nachweis- / Bestimmungsgrenze) und finanzielle Vorteile. Dies ermöglichte, Daten aus einem dichten und damit verschiedenen räumlichen Repräsentanzkriterien entsprechenden Messnetz auszuwerten.

Vergleiche mit Modellierungen erfolgten bisher v.a. auf der Basis der EMEP-Depositionsdaten (Harmens et al 2010, Schröder et al. 2011) für die Schwermetallgruppe A: Cd, Hg und Pb. Die Hinzunahme der LE-Modellierungen erlaubte hier eine erweiterte vergleichende Analyse zweier CTM (zumindest für Cd und Pb) sowie eine Erweiterung auf die Schwermetallgruppe B: As, Cr, Cu, Ni, V, und Zn.

Im Einzelnen sind die im Vergleich zu Deutschland allgemein stärkeren Korrelationen zwischen den untersuchten Modellierungs- und Monitoringdaten in Europa (Cd, Pb, 2005) zunächst schlicht auf unterschiedliche Stichprobengrößen (Deutschland: n = 751 bis 753; Europa: n = 5299 bis 5305) zurückzuführen. Die im Vergleich zu EMEP überwiegend höheren Korrelationen zwischen den Moos-Daten und LE zeigen, dass die räumlichen Muster der LE-Deposition mit den empirischen Bioindikationsmustern eher übereinstimmen, als die der EMEP-Modellierung. Der Befund, dass das arithmetische Mittel der LE- und EMEP-Modellierungen bei Cd in 3 von 6 und bei Pb in 1 von 6 Fällen zu stärkeren Zusammenhängen als die Betrachtung der einzelnen Modelle führt, zeigt dennoch, dass keinem der beiden CTM eindeutig der Vorzug zu geben ist, sondern eine Integration der Vorteile beider Modelle insbesondere für Cd geprüft werden sollte.

Die vergleichende Analyse der zeitlichen Trends in den modellierten EMEP-Depositionen und den entsprechenden Schwermetallgehalten im Moos (Cd, Pb, Deutschland, 2005) machte deutlich, dass insbesondere bei Pb die EMEP-Modellierung eine realitätsnähere Abbildung der zeitlichen Trends erreicht als die LE-Modellierung, welche nur Emissionswerte aus dem Jahr 2005 als Eingangsdaten verwendet. Das Vorhandensein dieser zeitlichen Trends (Cd, Pb) wurde ebenfalls durch die länderspezifisch für Europa durchgeführte Studie von Harmens et al. (2010) mittels ANOVA (Tukey-Test) nachgewiesen. Hinsichtlich Cd erschwerte das mögliche Ausnahmejahr 1995 mit auffallend erhöhten Cd-Gehalten im Moos und die geringe Stichprobenzahl (n = 4) den Nachweis eines signifikanten Trends mittels des hier verwendeten Mann-Kendall-Tests. Eine engere Zusammenarbeit zwischen den Modellierern sollte erfolgen, wobei ein Austausch hinsichtlich einer verbesserten Abbildung der zeitlichen Trends (bei LE) erforderlich ist.

Als Einschränkung der Komplementär-Methodik ist zu beachten, dass aus der Bioindikation mit Moosen kein Rückschluss auf die absolute Genauigkeit der jeweiligen Modellierungsmethode gezogen werden kann. Auch die räumlichen Muster und zeitlichen Trends der atmosphärischen Deposition werden durch die Stoffgehalte im Moos nicht per se besser erfasst als durch die Modellierungsverfahren. Vielmehr ist zu beachten, dass die gemessenen Stoffkonzentrationen in Moosen neben der atmosphärischen Schwermetalldeposition noch von einer Reihe weiterer Einflussfaktoren wie orographische Höhe, Niederschlag, Landnutzung oder Bevölkerungsdichte abhängig sind (Meyer et al. 2014a, 2014b, Nickel et al. 2014). Auch die kleinräumige Variabilität der Standorte (Hanglagen, Kuppen, Randstrukturen, Überschirmung in Wäldern, Nebellagen u. a. m.) hat einen entscheidenden Einfluss auf die Schwermetallakkumulation im Moos (Meyer et al. 2015).

Neben den Schwermetallgehalten im Moos sollten auch Begleitinformationen zur Probenentnahme sowie zu Eigenschaften des Probenentnahmestandortes und seiner Umgebung Gegenstand weiterer Analysen sein. Eine detaillierte Erfassung dieser Metadaten erfolgt derzeit im EMS 2015/16 an 402 Standorten in Deutschland (FuE-Vorhaben des UBA *Nutzung von Bioindikationsmethoden zur Bestimmung und Regionalisierung von Schadstoffeinträgen für eine Abschätzung des atmosphärischen Beitrags zu aktuellen Belastungen von Ökosystemen, FKZ 3715 63 212 0*). Für eine umfassendere Analyse potenzieller Einflussfaktoren auf die Schwermetallgehalte im Moos sollten diese als mögliche Prädiktoren mit Methoden der multivariaten Statistik wie z.B. Classification and Regression Tree (CART; Breiman et al. 1984) oder Random Forest (Breiman 2001) weiter untersucht werden. Random Forest könnte dabei alternativ/komplementär zur geostatistischen Flächenschätzung auch eine Regionalisierung der Schwermetallkonzentration im Moos aus flächendeckend vorliegenden Prädiktordaten ermöglichen.

2.5 Vergleich von LOTOS-EUROS- und EMEP-Modellierungen mit geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallkonzentrationen in Moosen

Für das Moos-Monitoring 2005/06 wurden unter Berücksichtigung der räumlichen Validität der Messinformationen, d.h. insbesondere deren räumlicher Auto-Korrelation (Goovaerts 1999, Johnston et al. 2001), geostatistische Flächenschätzungen der Schwermetallgehalte im Moos mit im Vergleich zu den standortbezogenen Messwerten höherer räumlicher Aussagekraft abgeleitet (Pesch et al. 2007b). Die nachfolgende Analyse verwendet diese geostatistischen Flächenschätzungen und verlgeicht sie mit den durch LE und dem EMEP-Modell berechneten Schwermetalldepositionen. Es wird untersucht, wie stark die statistischen Zusammenhänge zwischen den geostatistischen Flächenschätzungen und den modellierten Depositionen sind, inwieweit sich beide Modelle in Bezug auf die Korrelationskoeffizienten bei Pb und Cd unterscheiden und ob die Unterschiede statistisch signifikant sind. Die Auswertungen erfolgen abgestuft für Europa, Deutschland und unterschiedliche Belastungsstufen (ober- und unterhalb des Medians) der Schwermetallgehalte im Moos. Die geostatistischen Flächenschätzungen werden ferner dazu verwendet, die räumlichen Muster der Depositions- und Akkumulationsdaten visuell zu vergleichen und so ggf. großräumige Abweichungen lokalisieren zu können.

2.5.1 Material und Methoden

Für den statistischen Vergleich der Monitoringdaten mit den Modellierungen wurden die geostatistischen Flächenschätzungen der As-, Cd-, Cr-, Cu-, Ni-, Pb-, V und Zn-Gehalte im Moos, die modellierten Pb- und Cd-Gesamtdepositionen aus EMEP sowie das entsprechend der Nutzungsverteilung in jedem Rasterelement gewichtete Mittel der As-, Cd-, Cr-, Cu-, Ni-, Pb-, V und Zn-Gesamtdeposition aus LE herangezogen.

Für die Korrelationsanalyse wurden die LE-Modellierungen (25 km mal 25 km) und die Moos-Schätzungen mittels Rasterverschneidung zusammengeführt und dann jeweils der Median der Schwermetallgehalte aller 3 km mal 3 km Rasterelemente innerhalb des zugeordneten LE-Rasterelements berechnet. Anschließend wurde jeder dieser Rasterzellen der entsprechende Depositionswert aus EMEP zugeordnet. Für Pb und Cd wurden die Modellierungen für das Jahr 2005 herangezogen und mit den entsprechenden Moos-Daten des Jahres 2005 verglichen. Da für die Metalle der Gruppe B kein zeitlicher Trend der Emissionen bekannt ist, wurde das arithmetische Mittel der Jahre 2009 bis 2011 aus LE verwendet, um diese mit den Biomonitoringdaten aus 2005 zu vergleichen. Als drittes wurden die LE- und EMEP-Modellierungen über den Mittelwert ((LE + EMEP) / 2) integriert und mit den geostatistischen Flächenschätzungen der Metallgehalte im Moos verglichen. Die statistischen Zusammenhänge zwischen den Moos-Daten und beiden Modellierungen wurden korrelationsanalytisch untersucht (Spearman) und die Unterschiede der Korrelationskoeffizienten mittels Gl. 5 auf Signifikanz getestet.

Für Vergleiche der räumlichen Muster der mit LE modellierten Depositionen und der geostatistisch abgeleiteten Metallkonzentrationen im Moos wurden diese jeweils auf 1 (= 100 %) normiert, um ein vergleichbares Maß zu generieren. Hierzu wurde jeweils die Abweichung der Depositions- bzw. Akkumulationswerte vom bundesweiten Median berechnet (Gl. 9 und 10).

$$\begin{array}{ll} D_{dev} = \left(D_{x,y} \ / \ D_{median} \ \right) * 100 \eqno(Gl. 9) \\ \\ mit: & D_{dev} & = Abweichung vom Median der modellierten Gesamtdeposition [%] \\ \\ & D_{x,y} & = Modellierte Gesamtdeposition in Rasterzelle x, y [\mu g/m2 a] \end{array}$$

 D_{median} = Median der modellierten Gesamtdeposition [µg/m² a]

 $C_{dev} = (C_{x,y} / C_{median}) * 100$ (Gl. 10)

mit: C_{dev} = Abweichung vom Median der Schwermetallkonzentration im Moos [%]

 $C_{x,y}$ = Geschätzte Schwermetallkonzentration im Moos in Rasterzelle x, y [µg/g]

 C_{median} = Median der gemessenen Schwermetallkonzentration im Moos [µg/g]

Anders als bei den Korrelationsanalysen wurde für die Berechnung der normierten Werte der Cd- und Pb-Deposition auf das Mittel der Jahre 2009 bis 2011 zurückgegriffen, da die Daten hier in einer höheren Auflösung (7 km mal 7 km) vorliegen.

Ferner wurden die Schwermetalle auch untereinander korrelationsanalytisch untersucht.

2.5.2 Ergebnisse

Schwermetallgruppe A: Die statistischen Kennwerte der Flächenschätzungen zu Schwermetallgehalten im Moos sowie der modellierten Gesamtdeposition über Deutschland und Europa enthält die Tabelle 13.

Tabelle 13:Kennwerte der geostatistischen Flächenschätzungen der Cd- und Pb-Gehalte im Moos
und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über
Deutschland und Europa

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD
Cd	Cd-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), Flächenschät- zung	µg/g	0,06	0,60	0,23	0,21	0,06
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	12,77	81,45	21,25	20,41	5,93
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland) (EMEP)	µg/m² a	22,82	98,13	45,69	42,38	13,82
Pb	Pb-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), Flächenschät- zung	µg/g	2,50	11,95	4,32	4,00	3,28
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland), gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	330,32	2864,29	561,29	513,98	211,85
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Deutschland) (EMEP)	μg/m² a	820,73	3244,38	1779,87	1728,09	506,58
Cd	Cd-Gehalt in Moosen 2005 (Europa), Flächenschätzung	µg/g	0,01	1,85	0,20	0,16	0,15
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Europa), gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	1,76	239,90	15,50	11,49	12,90
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Europa) (EMEP)	µg/m² a	3,48	722,69	38,78	30,76	37,33
Pb	Pb-Gehalt in Moosen 2005 (Europa), Flächenschätzung	µg/g	0,83	36,26	6,92	5,29	4,91

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Europa), gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	42,53	2931,25	290,26	251,14	191,41
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Europa) (EMEP)	µg/m² a	114,21	5359,67	1074,24	949,05	647,76

SD= Standardabweichung

Die Ergebnisse der integrierten Auswertung zu Cd und Pb (Deutschland und Europa) unter Berücksichtigung unterschiedlicher Belastungsstufen der Schwermetallgehalte im Moos (ober-/unterhalb des Medians) sind Tabelle 14 zu entnehmen.

Tabelle 14:Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen geostatistischen Flä-
chenschätzungen der Cd- und Pb-Gehalte im Moos und der mit LE und dem EMEP-
Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland und Europa

Element	Probenart	n _(LE)	r _{s (LE)}	p _(LE)	n _(EMEP)	r _{s (EMEP)}	р (емер)	n _(le_em)	r _{s(LE_EM)}	p _(le_em)
Cd	Moos, geostatistische Flächenschätzung (Deutschland) Moos geostatistische	527	0,37	<0,01	527	0,43	<0,01	527	0,48	<0,01
Cd	Flächenschätzung (Deutschland) untere Hälfte (<p<sub>50) der Kon- zentration im Moos</p<sub>	221	0,35	<0,01	221	0,10	<0,01	221	0,20	<0,01
Cd	Flächenschätzung (Deutschland) obere Hälfte (>P ₅₀) der Kon- zentration im Moos	306	0,23	<0,01	306	0,40	<0,01	306	0,40	<0,01
Pb	Moos, geostatistische Flächenschätzung (Deutschland) Moos, geostatistische	527	0,49	<0,01	527	0,44	<0,01	527	0,52	<0,01
Pb	Flächenschätzung (Deutschland) untere Hälfte (<p<sub>50) der Kon- zentration im Moos Moos, geostatistische</p<sub>	266	0,31	<0,01	266	0,18	<0,01	266	0,23	<0,01
Pb	Flächenschätzung (Deutschland) obere Hälfte (>P ₅₀) der Kon- zentration im Moos	261	0,32	<0,01	261	0,30	<0,01	261	0,37	<0,01
Cd	Moos, geostatistische Flächenschätzung (Europa) Moos, geostatisti-	5765	0,81	<0,01	5765	0,70	<0,01	5765	0,75	<0,01
Cd	sche Flächenschät- zung (Europa), untere Hälfte (<p<sub>50) der Konzentration im Moos</p<sub>	2608	0,64	<0,01	2608	0,36	0,16	2608	0,42	0,16

Element	Probenart	n _(LE)	r _{s (LE)}	p(le)	n(emep)	r s (EMEP)	р (емер)	n _(le_em)	r s(le_em)	p(le_em)
Cd	Moos, geostatisti- sche Flächenschät- zung (Europa), obere Hälfte (>P ₅₀) der Konzentration im Moos	3157	0,55	<0,01	3157	0,59	<0,01	3157	0,60	<0,01
Pb	Moos, geostatisti- sche Flächenschät- zung (Europa)	9316	0,42	<0,01	9316	0,57	<0,01	9316	0,56	<0,01
Pb	Moos, geostatisti- sche Flächenschät- zung (Europa), untere Hälfte (<p<sub>50) der Konzentration im Moos</p<sub>	4665	0,66	<0,01	4665	0,54	<0,01	4665	0,58	<0,01
Pb	Moos, geostatisti- sche Flächenschät- zung (Europa), obere Hälfte (>P ₅₀) der Konzentration im Moos	4651	0,18	<0,01	4651	0,27	<0,01	4651	0,26	<0,01

 $P_{50} = 50$. Perzentil, n = Stichprobengröße, r_s = Korrelationskoeffizient nach Spearman, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit), LE = LOTOS-EUROS, EMEP = EMEP-Modell, LE_EM = arithmetisches Mittel (LE, EMEP), --- = nicht berechnet *Cd* - *Cadmium.* Das arithmetische Mittel der geschätzten Cd-Konzentration im Moos beträgt in Deutschland 0,23 µg/g (SD = 0,06) und in Europa 0,20 µg/g (SD = 0,15). Der Median berechnet sich in Deutschland zu 0,21 µg/g und in Europa zu 0,16 µg/g. Zwischen der LE-Modellierung und den geostatistischen Flächenschätzungen besteht in Deutschland mit $r_s = 0,37$ (p < 0,01) ein schwacher und bezogen auf Europa $r_s = 0,81$ (p < 0,01) ein sehr starker statistischer Zusammenhang (Abbildung 10). Der Vergleich mit der EMEP-Modellierung zeigt ein eher heterogenes Bild. Im europäischen Maßstab ist die Relation zwischen EMEP und den Moos-Daten schwächer ($r_s = 0,70$, p < 0,01) bzw. in Deutschland stärker ($r_s = 0,43$, p < 0,01) im Vergleich zu LE. Deutschland- und europaweit zeigen die Moos-Daten unterhalb des 50 %-Perzentils höhere Korrelationen zu LE als zum EMEP-Modell, über dem 50 %-Perzentil ist es auffälligerweise umgekehrt. Dabei sind sämtliche der genannten Unterschiede zwischen den Korrelationskoeffizienten nach Gl. 5 als signifikant einzustufen.

Nach der Integration von LE und EMEP über den Mittelwert zeigt sich, dass diese in 2 von 6 Fällen signifikant höhere Korrelationen (Gl. 5) mit den Cd-Konzentrationen im Moos liefern, als die die jeweiligen Modelle für sich betrachtet.





Abbildung 11:Abweichungen der modellierten Cd-Gesamtdeposition (Mittelwerte der Jahre 2009-
2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Cd-Konzentrationen im Moos
(2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Abbildung 12:Abweichungen der modellierten Pb-Gesamtdeposition (Mittelwerte der Jahre 2009-
2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Pb-Konzentrationen im Moos
(2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Hinsichtlich der normierten und räumlich explizit berechneten Eintragsinformationen rangieren die Abweichungen der geostatistischen Flächenschätzungen vom bundesweiten Median der Cd-Konzentrationen im Moos (Abbildung 11) zwischen 57 % und 251 %, bei LE zwischen 64 % und 744 %. Die höhere Variationsbreite bei den Modellierungsdaten gegenüber den Moosdaten zeigt sich in regional höheren Cd-Depositionsraten vornehmlich in den Ballungsräumen. Die mittelstarken Korrelationen finden ihren Ausdruck gleichsam auch in ähnlichen räumlichen Mustern (Modellierung, Monitoring): Vergleichsweise hohe Belastungen in Nordrhein-Westfalen und geringere Belastungen in Nord-Deutschland und Bayern.

Pb - Blei. Die Flächenschätzungen der Pb-Gehalte im Moos weisen in Deutschland ein arithmetisches Mittel von 4,32 µg/g (SD = 3,28) und ein Medianwert von 4,00 µg/g auf. Die entsprechenden europäischen Werte liegen im Mittel bei 6,92 µg/g (SD = 4,91) und bei 5,29 µg/g (Median). Die Beziehungen zwischen den Flächenschätzungen und LE sind deutschlandweit als mittel ($r_s = 0,49$, p < 0,01) und europaweit ebenfalls als mittel, aber etwas schwächer ($r_s = 0,42$, p < 0,01) einzustufen (Abbildung 13). Die EMEP-Modellierung zeigt im Vergleich zu LE in Deutschland einen schwächeren ($r_s = 0,44$, p < 0,01), aber in Europa einen stärkeren Zusammenhang ($r_s = 0,57$, p < 0,01). Wird die Stichprobenmenge am Median geteilt, gilt letzteres nur für die obere Hälfte der Schwermetallgehalte im Moos. Signifikante Unterschiede der Korrelationskoeffizienten bestehen nur bei den Vergleichen auf europäischer Ebene (aufgrund der größeren Stichprobe).

Die Integration der LE- und EMEP-Berechnungen durch den Mittelwert erbringt in 2 von 6 Fällen höhere Korrelationen mit den Flächenschätzungen der Pb-Konzentrationen im Moos, als die die jeweiligen Modelle für sich betrachtet (signifikant höher nach Gl. 5 allerdings nur bei einer Korrelation).

Abbildung 13: Streudiagramm für die Beziehung zwischen den geostatistischen Flächenschätzungen der Pb-Gehalte im Moos in Deutschland (oben) bzw. Europa (unten) und modellierter Pb-Gesamtdeposition aus dem EMEP-Modell (links) bzw. LE (rechts)



Im Hinblick auf die räumliche Verteilung der Abweichungen vom jeweiligen Median (Abbildung 12) gilt für Pb ähnliches wie für Cd: Eine größere Spannweite bei LE (Min: 61 %, Max: 1185 %) als bei den Pb-Gehalten im Moos (Min: 65 %, Max: 220 %), ähnliche räumliche Muster der Pb-Belastung (Modellierungs-/Monitoringdaten) mit Schwerpunkten in Nordrhein-Westfalen (bei den Moosen auffällig aber auch in Süd-Ost-Deutschland) und regional höheren Depositionen insbesondere in den Ballungs-gebieten.

Abbildung 14: Korrelation zwischen den geostatistischen Flächenschätzungen der Cd-Konzentrationen (links) und Pb-Konzentrationen im Moos (2005) und der entsprechenden LE-Depositionsmodellierung in Abhängigkeit vom EMEP/LE-Quotienten



Abbildung 14 zeigt die Korrelationen (Spearman) zwischen den geostatistischen Flächenschätzung der Pb- und Cd-Konzentrationen im Moos und den entsprechenden LE-Modellierungen in Abhängigkeit vom EMEP/LE-Quotienten der Schwermetalldeposition. Bei beiden Metallen zeigt sich, dass etwa ab einem EMEP/LE-Quotienten von > 6 bis 8 die Korrelationskoeffizienten allmählich abfallen. Hieraus wird ersichtlich, dass sich die Unsicherheiten in den Modellrechnungen, indiziert durch den EMEP-LE-Quotienten, ab Werten von 6 bis 8 auch in den Abweichungen zu den räumlichen Strukturen der Schwermetallgehalte im Moos widerspiegeln.

Schwermetallgruppe B: Die Resultate der deskriptiven Statistik für die geostatistischen Flächenschätzungen der Konzentrationen im Moos für die 6 Schwermetalle der Gruppe B sowie die entsprechenden LE-Depositionsmodellierungen sind in Tabelle 15 widergegeben.

	Gesamtdeposition (2009-2011, gemittelt) uber Deutschland										
Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD				
As	As-Gehalt in Moosen 2005, (Deutschland), Flächenschät- zung As-Gesamtdeposition 2009-	μg/g	0,10	0,59	0,19	0,17	0,08				
713	2011 (Deutschland), LE	μ6/111 α	21,13	01,01	51,71	52,00	0,05				
Cr	Cr-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), Flächenschät- zung	µg/g	1,48	14,98	3,43	2,89	2,15				

Tabelle 15:Kennwerte der geostatistischen Flächenschätzungen der As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-
Gehalte im Moos und der mit LE berechneten As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-
Gesamtdeposition (2009-2011, gemittelt) über Deutschland

Element	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD
Cr	Cr-Gesamtdeposition 2009-2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	64,68	309,73	121,82	111,47	39,38
Cu	Cu-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), Flächenschät- zung	µg/g	5,28	14,29	7,68	7,47	1,53
Cu	Cu-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	248,73	2165,10	577,24	537,79	61,87
Ni	Ni-Gehalt in Moosen 2005 Deutschland, Flächenschätzung	µg/g	0,73	2,32	1,32	1,27	0,32
Ni	Ni-Gesamtdeposition 2009-2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	143,20	609,46	246,31	233,30	61,87
V	V-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), Flächenschät- zung	µg/g	0,69	1,78	1,16	1,17	0,24
V	V-Gesamtdeposition 2009-2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	25,96	172,27	41,28	36,61	16,64
Zn	Zn-Gehalt in Moosen 2005 (Deutschland), Flächenschät- zung	µg/g	30,70	110,37	52,09	49,20	13,29
Zn	Zn-Gesamtdeposition 2009- 2011 (Deutschland), LE	µg/m² a	925,51	6338,43	1844,08	1695,46	711,90

SD = Standardabweichung

Die Ergebnisse der Korrelationsanalyse für die Beziehung zwischen den LE-Modellrechnungen und den geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallanreicherungen im Moos in Deutschland zeigt Tabelle 16.

Tabelle 16:Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen geostatistischen Flä-
chenschätzungen der As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalte im Moos (2005) und der mit LE
berechneten As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gesamtdeposition über Deutschland (Mittel-
werte der Jahre 2009-2011)

Element	Probenart	n _(LE)	r _{s (LE)}	p (LE)
As	Moos, geostatistische Flächenschätzung, 2005 (Deutschland)	429	0,48	<0,01
Cr	Moos, geostatistische Flächenschätzung, 2005 (Deutschland)	429	-0,39	<0,01
Cu	Moos, geostatistische Flächenschätzung, 2005 (Deutschland)	429	0,26	<0,01
Ni	Moos, geostatistische Flächenschätzung, 2005 (Deutschland)	429	0,34	<0,01
V	Moos, geostatistische Flächenschätzung, 2005 (Deutschland)	429	0,31	<0,01
Zn	Moos, geostatistische Flächenschätzung, 2005 (Deutschland)	429	0,01	0,78

n = Stichprobengröße, r_s = Korrelationskoeffizient nach Spearman; **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

As – *Arsen.* Der Korrelationskoeffizient nach Spearman beträgt $r_s = 0,48$ (p < 0,01), d.h. die mit LE modellierte As-Deposition zeigt bundesweit einen mittelstarken Zusammenhang mit den räumlichen Mustern der entsprechenden geostatistischen Flächenschätzung für die As-Konzentration im Moos. Die Spanne der Abweichungen der As-Deposition vom bundesweiten Median (68 % bis 277 %) ist vergleichbar mit der der Moos-Konzentrationen (61 % bis 349 %). Bei Betrachtung der räumlichen Verteilung dieser Abweichungen (Abbildung 15) zeigen sich jedoch auffällige Unterschiede. Während die Depositionsschwerpunkte im Ruhrgebiet zu verorten sind, wurden die höchsten As-Gehalte im Moos insbesondere in Sachsen nachgewiesen. Der Median der As-Gehalte im Moos ist in Sachsen mit 0,39 µg/g deutlich höher als in den übrigen Bundesländern (0,15 µg/g). Der Korrelationskoeffizient (geostatistische Flächenschätzung vs. LE-Modellierung, Spearman) ist in Sachsen mit 0,41 etwa ebenso hoch wie im Bundesgebiet. Vergleicht man die Flächenschätzungen der As-Gehalte im Moos mit Daten zu 50%-Perzentilen der As-Gehalte im Oberboden (LABO 1998, 2003), so zeigen sich etwas schwächere Korrelationen mit 0,28 in Sachsen bzw. 0,31 in Deutschland (Abbildung 16, Tabelle 17). Werden statt der Flächenschätzung die an den Moospunkten erhobenen Messwerte genommen, so sind die Korrelationskoeffizienten in Sachsen auffällig schwächer.

Tabelle 17:Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen As-Gehalten im Moos
und As-Deposition (LOTOS-EUROS) bzw. Daten zu 50%-Perzentilen der As-Gehalte im
Oberboden (LABO 1998, 2003) jeweils bezogen auf die Probenentnahmepunkte

Prädiktoren	Probenart	n _(LE)	r _{s (LE)}	p (le)	
	Flächens	chätzung	Messwerte		
	Sachsen	Deutschland	Sachsen	Deutschland	
As-Deposition (LE)	0,41	0,48	-0,01	0,30	
As-Gehalt im Oberboden	0,28	0,31	0,06	0,21	

Cr – Chrom. Die statistische Relation zwischen den Modellierungsdaten und den Monitoringdaten erweist sich bei Cr als unplausibel, da mit r_s = -0,39 (p < 0,01) negativ. Die räumlichen Schwerpunkte der LE-Berechnungen liegen im Ruhrgebiet bzw. Saarland und die hoher gemessener Cr-Gehalte im Moos in Mecklenburg-Vorpommern sowie in einigen Ballungsgebieten wie Frankfurt und Leipzig (Abbildung 17).

Cu – Kupfer. Die räumliche Variabilität der Abweichungen der Cu-Deposition vom Median ist deutlich höher als bei den entsprechenden Cu-Konzentrationen im Moos (Abbildung 18). Die Variationsbreite liegt bei LE zwischen 51 % und 428 % und bei den Moos-Daten zwischen 70 % bis 191 %. Allerdings zeigen sich ähnliche räumliche Muster mit Schwerpunkten im Ruhrgebiet. Dies lässt sich gleichsam am Korrelationskoeffizienten von r_s = 0,26 (p < 0,01) ablesen.

Ni - Nickel. Ähnliche Charakteristika wie Cu zeigt auch Ni (Abbildung19): Die räumlichen Muster Modellierung, Monitoring) sind ähnlich mit relativ hohen Belastungen in Nordrhein-Westfalen und mit einer höheren Variationsbreite der Abweichungen der LE-Depositionen vom bundesweiten Median. Der Korrelationskoeffizient berechnet sich zu r_s = 0,34 (p < 0,01).

V–*Vanadium.* Hier beziffern sich die statistischen Zusammenhänge zu $r_s = 0,31$ (p < 0,01). Die räumlichen Muster der empirischen und modellierten V-Belastung sind ähnlich (Abbildung 20). Auffällig sind jedoch die vergleichsweise hohen V-Depositionen an der Nord- und Ostseeküste. Hier finden sich Abweichungen von bis zu 376 % vom bundesweiten Median.

Zn – Zink. Die Zn-Modellierungen weisen eher unähnliche räumliche Muster im Vergleich zu den Moosdaten auf. Zwischenbeiden besteht kein signifikanter statistischer Zusammenhang. Auffällig sind die Abweichungen im Süden Deutschlands, wo LE deutlich höhere Belastungen berechnet (Abbildung 21).

Abbildung 15: Abweichungen der modellierten As-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten As-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Abbildung 16: Abweichungen der 50%-Perzentile der As-Gehalte im Oberboden (LABO 1998, 2003) vom bundesweiten Median



Abbildung 17: Abweichungen der modellierten Cr-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Cr-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Abbildung 18: Abweichungen der modellierten Cu-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Cu-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Abbildung 19: Abweichungen der modellierten Ni-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Ni-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Abbildung 20: Abweichungen der modellierten V-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten V-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Abbildung 21: Abweichungen der modellierten Zn-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten Zn-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median



Abbildung 22: Räumliche Verteilung der Gesamtschwermetallindizes als mittlere Abweichungen der modellierten As-, Cd-, Cr-, Cu-, Ni-, Pb-, V- und Zn-Gesamtdeposition (2009-2011) aus LE (links) bzw. der geostatistisch geschätzten As-, Cd-, Cr-, Cu-, Ni-, Pb-, V- und Zn-Konzentrationen im Moos (2005) (rechts) vom jeweiligen bundesweiten Median







Erläuterungen: HH = Hamburg; ST = Sachsen-Anhalt; BE = Berlin; NW = Nordrhein-Westfalen; SN = Sachsen; TH = Thüringen; RP = Rheinland-Pfalz; BY = Bayern; SL = Saarland; SH = Schleswig-Holstein; NI = Niedersachsen / Bremen; MV = Mecklenburg-Vorpommern; BW = Baden-Württemberg; HE = Hessen; BB = Brandenburg; HB = Bremen.

In einem nächsten Schritt wurden die normierten Abweichungen der modellierten Schwermetalldepositionen vom jeweiligen bundesweiten Median aus LE (2009-2011) sowie die entsprechenden Abweichungen der Schwermetallanreicherungen im Moos (2005) zu einem Gesamtmetallindex aggregiert. Hierzu wurden die jeweiligen Verhältniszahlen für die 8 Schwermetalle addiert und durch die Anzahl der einfließenden Schwermetallkomponenten geteilt. Das Ergebnis der Datenaggregation zu einem arithmetischen Mittel der Abweichungen von jeweiligen Median ist in den Abbildungen 22 und 23 dargestellt. Hierbei zeigt sich, dass das Moos-Monitoring und der hieraus abzuleitende Gesamtschwermetallindex stellenweise deutlich höhere Abweichungen vom Median der Gesamtfläche Deutschlands anzeigt, als die entsprechende Modellierung. Dies gilt insbesondere für die Länder Hessen, Mecklenburg-Vorpommern, Sachsen-Anhalt und Sachsen. Dies deutet auf nicht berücksichtigte Emissionsquellen bei bestimmten Schwermetallkomponenten (As, Cr) in der LE-Modellierung insbesondere östlich von Mecklenburg-Vorpommern und Sachsen hin.

Bei Betrachtung der Korrelationen der einzelnen Elemente untereinander, zeigen sich bei den LE-Modellrechnungen hohe bis sehr hohe Korrelationen mit r_s von 0,65 bis 0,90 bei allen Schwermetallen der Gruppe B mit Ausnahme von Vanadium (Anhang A2.6). Diese Ausnahme zeigt sich nicht in den Moosdaten. Hohe Korrelationen ergeben sich im Vergleich zwischen Cu/Zn, V/Zn, mittlere Korrelationen zwischen As/Cu, As/Ni, Cu/Ni, Ni/Vn, Cu/V, Ni/Zn.

2.5.3 Diskussion und Schlussfolgerungen

Mittels der normierten geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallgehalte im Moos 2005 konnten Unsicherheiten in der LE-Modellierung für den Zeitraum2007-2011 lokalisiert werden, da LE auf Emissionsdaten des Jahres 2005 zurückgeht. Im Vergleich mit den Moosdaten des Jahres 2005 ergaben sich Abweichungen zur LE-Modellierung insbesondere bezüglich der As-, Cr- und V-Depositionen. Die im Vergleich zu den Moosdaten erhöhte V-Deposition an der Nord- und Ostseeküste lässt vermuten, dass in der LE-Modellierung der Einfluss bestimmter Emissionsquellen (z.B. Schifffahrt) überschätzt wurde. Anders herum deuten die relativ hohen Moos-Gehalte Cr in MecklenburgVorpommern auf möglicherweise nicht berücksichtigte Emissionsquellen bei der LE-Modellierung hin. Die Erhöhung in den Moos-Konzentrationen bei Cr betrug 100 bis 200 %, wobei in Deutschland besonders Mecklenburg-Vorpommern betroffen war (Kratz und Schröder 2010; Mohr und Schröder 2014).

Der Vergleich zwischen den As-Gehalten im Moos bzw. Oberboden zeigt, dass die geogenen Belastungen in Sachsen als weitere wichtige Erklärungsvariable für die As-Konzentration im Moos in Frage kommen. Hohe Arsengehalte sind in den Böden Sachsens häufig anzutreffen, allerdings sind die Gebiete mit geogenen Belastungen räumlich auch deutlich abgegrenzt (Abbildung 16, LfULG 2009). Zum einen stimmt die höchste Belastung im Boden gut mit der Region der höchsten Belastung in den Moosen überein, andererseits finden sich hohe Arsengehalte aber weit über den stark belasteten Teil Sachsens (Böden) hinaus. Ersteres spricht dafür, dass doch eine gewisse Aufnahme des As aus dem Boden erfolgen könnte. Das Zweite spricht eher für eine Reemission aus vegetationsfreien bzw. -armen Flächen, vielleicht auch Deponien, mit Verbreitung über die Atmosphäre. Auf einen hohen Depositionseinfluss deutet wiederum die Tatsache hin, dass beim Moosmonitoring von 1990 bis 2005 eine starke As-Abnahme zu verzeichnen ist (Pesch et al. 2007b). Dies wäre bei geogenem Ursprung eher unwahrscheinlich. Die auffälligen Abweichungen zwischen Moos und LE lassen daher vermuten, dass die Depositionsmodellierung in Sachsen starke Unsicherheiten aufweist.

Für die prioritären Elemente Cd und Pb, welche sowohl durch EMEP, LE und dem Moos-Monitoring erfasst werden, ergeben sich ähnliche räumliche Muster. Daran zeigt sich, dass die durch das Moos-Monitoring ermöglichte räumliche Differenzierung der Bioakkumulation und hier insbesondere die geostatistischen Flächenschätzungen die Abweichungen zu den aus den verfügbaren Emissionsdaten berechneten Immissionen aufdecken und auch verorten kann (hier: As, Cr, und V). Bei künftigen Moos-Kampagnen sollte daher weiterhin auf die räumliche Verallgemeinerbarkeit der Biomonitoringdaten mit geostatistischen Methoden geachtet werden. Als wichtiges Datendefizit ist aber zu nennen, dass sich Deutschland nicht am European Moss Survey 2010 beteiligt hat. Mit weiteren Moos-Daten aus dem Jahr 2010 hätte man insbesondere prüfen können, ob festgestellte Abweichungen nur aufgrund vorübergehender Effekte oder im gesamten Betrachtungszeitraum auftraten. Die höheren Korrelationen des arithmetischen Mittels aus EMEP und LE mit den Moos-Daten im Vergleich zu den Einzelmodellierungen, zeigt, dass keinem der beiden CTM eindeutig der Vorzug zu geben ist. Daher ist vielmehr eine Integration der Vorteile beider Modellierungen anzustreben. Eine engere Zusammenarbeit zwischen Modellierern und Biomonitoringexperten sollte rasch erfolgen.

2.6 Vergleich von LOTOS-EUROS- und EMEP-Modellierungen mit Daten aus der Umweltprobenbank

Die Bestimmung von Schwermetallgehalten in Nadeln und Blättern von Bäumen gehört zum routinemäßigen Untersuchungsprogramm der UPB (UBA 2008). Die Verfügbarkeit von Daten der UPB mit hoher zeitlicher Auflösung legt es nahe, zu prüfen, inwieweit die regelmäßig gemessenen Schwermetallgehalte in Nadel- und Blattproben eine Ergänzung zur Bioindikation mit Moosen darstellen können. Hierzu werden zunächst die mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Daten zur atmosphärischen Cd- und Pb-Deposition mit Daten zur Schwermetallakkumulation aus der Umweltprobenbank des Bundes (UPB) verknüpft und untersucht, wie stark die statistischen Zusammenhänge zwischen den Monitoringdaten und den modellierten Depositionen sind, inwieweit die Korrelationen element-, probenarten- oder ökosystemspezifisch sind, inwieweit sich die Korrelationen in Bezug auf die beiden Modelle unterscheiden und ob diese Unterschiede statistisch signifikant sind. Darüber hinaus erfolgt eine vergleichende Analyse der zeitlichen Trends der Modellierungs- und Bioindikationsdaten.

2.6.1 Material und Methoden

Grundlage für den statistischen Vergleich bilden die jährlich für den Zeitraum 2007-2011 aufgelösten Rasterdaten aus LE (7 km mal 7 km) und dem EMEP-Modell (50 km mal 50 km) in Verbindung mit gemessenen Schwermetallgehalten in Laubblättern und 1-jährigen Trieben von Nadelbäumen aus der Umweltprobenbank. Als Metadaten der UPB wurden berücksichtigt:

- Probenart: Rot-Buche (Fagus sylvatica), Pyramiden-Pappel (Populus nigra ,Italica'), Rot-Fichte (Picea abies), Wald-Kiefer (Pinus sylvestris),
- Ökosystemtyp: Lage der Probenahmestellen in Agrar-Ökosystemtypen, Forst-Ökosystemtypen, naturnahen terrestrischen Ökosystemtypen (z.B. Moore, Heiden) und ballungsraumnahen Ökosystemtypen.

Als Gesamtdeposition wurde das entsprechend der Landnutzungsverteilung in jedem LE-Rasterelement gewichtete Mittel der trockenen Deposition zuzüglich der nassen Deposition verwendet. Wie bereits in Kapitel 2.3 erläutert, bildet LE zwar das meteorologische Geschehen, aber keinen zeitlichen Trend der Schwermetalldeposition im Betrachtungszeitraum 2007-2011 ab, weil es ausschließlich die Emissionsdaten des Jahres 2005 verwendete. Für den korrelationsanalytischen Vergleich mit LE wurden daher die Blatt-/Nadelspiegelwerte der Jahre 2007-2011 unter Verwendung von Gl. 11 trendbereinigt (Bezugsjahr 2010).

$$F = (a * J_b + b) / (a * J_p + b)$$

(Gl. 11)

mit: F = Umrechnungsfaktor

 J_b = Bezugsjahr

 J_p = Probenahmejahr

a =Steigung der Trendgeraden

b = Achsenabschnitt der Trendgeraden

Anschließend wurden die geographischen Informationen zur modellierten atmosphärischen Cd- und Pb-Deposition (LE, EMEP) und zu den Schwermetallgehalten in Blättern und Nadeln an bis zu 20 Standorten in Deutschland mit Hilfe von Standard-GIS-Funktionen (Overlay, Spatial Join) verknüpft. Blatt-/Nadelspiegelwerte größer oder kleiner der 3-fachen Standardabweichung wurden als Ausreißer eliminiert. Zur Quantifizierung der statistischen Zusammenhänge wurde mit Blick auf die geringen Stichprobenumfänge der Korrelationskoeffizient nach Kendall r_t (R Package "Kendall") verwendet und nach Mann-Kendall auf Signifikanz getestet (Gl. 8). Anschließend wurde untersucht, inwieweit die Korrelationen element-, probenarten- oder ökosystemtypenspezifisch sind. Der Vergleich und damit die Evaluierung der LE- und EMEP-Modellrechnungen erfolgte anhand der Korrelationskoeffizienten und ihrer Unterschiede, die nach Gl. 5 auf statistische Signifikanz getestet wurden, um hieraus Rückschlüsse für die Übereinstimmung der Modell- und Monitoringdaten zur Schwermetallbelastung ziehen zu können. Darüber hinaus wurden entsprechende Korrelationsanalysen für die Beziehungen zwischen den Blatt-/Nadelspiegelwerten der UPB und LE-Depositionsberechnungen der Jahre 2009-2011 für die Schwermetalle der Gruppe B (As, Cr, Cu, Ni, Zn) durchgeführt.

Zur vergleichenden Analyse der **zeitlichen Trends** wurden Daten der Jahre 1998 bis 2011 herangezogen. Für die Nadel-/Blattspiegelwerte der UPB sowie auch die Depositionsdaten nach EMEP wurden die Jahresmediane berechnet und anschließend auf das Jahr 2005 normiert. Bei den Depositionsdaten lagen jeweils 204 Werte pro Jahr vor. Die Datengrundlage der UPB variiert von 16 bis 26 Werten insgesamt pro Jahr. Im Mittel lagen jedoch ca. 25 Proben pro Jahr vor (davon jeweils die Hälfte Cd-Proben die andere Hälfte Pb-Proben). Im ersten Schritt der Zeittrend-Auswertung wurden analyten- und probenartenspezifische Kennzahlen nach den Gl. 6 bis 8 ermittelt. Basierend auf diesen Ergebnissen erfolgte für signifikante Zeittrends eine entsprechende ökosystemspezifische Analyse. Anschließend wurde für die signifikant einzustufenden Trends der Blatt-/Nadelspiegelwerte ermittelt, ob und wie stark diese mit den Trends der EMEP-Modellierung korrellieren. Für die Schwermetallgruppe B wurden keine Vergleiche zeitlicher Trends durchgeführt, da die in dieser Gruppe vorhandenen Schwermetalle nicht mittels EMEP modelliert wurden, sondern nur mit LE und LE keine zeitlichen Trends abbildet.

2.6.2 Ergebnisse

Schwermetallgruppe A: Die Stichprobengrößen der UPB im Beobachtungszeitraum 2007-2011 beziffern sich zu 28 (Rot-Buche), 17 (Pyramiden-Pappel), 34 (Rot-Fichte) und 6 (Wald-Kiefer). Das Ergebnis der Korrelationsanalyse gibt Tabelle 18 wieder.

Cd - Cadmium. Zwischen den gemessenen Cd-Gehalten in Laubblättern und den mit LE modellierten Cd-Depositionen bestehen überwiegend positive Korrelationen (Abbildung 24). Die Kendall-Korrelationskoeffizienten betragen $r_{\tau} = 0,29$ (Buche, p < 0,05) und $r_{\tau} = 0,36$ (Pappel, p < 0,05). Die Korrelationen zwischen den Blattspiegelwerten der UPB und den EMEP-Daten (r_{τ} = 0,23 bei Buche, r_{τ} = 0,26 bei Pappel) sind etwas geringer im Vergleich zur LE-Modellierung. Wird die Stichprobe nach Ökosystemtypen aufgeteilt, zeigen sich zumindest bei der Buche in den Forst-Ökosystemen bzw. naturnahen Ökosystemen (Moore, Heiden u.ä.) stärkere (= starke) statistische Zusammenhänge (r_{τ} = 0,60 bis 0,71). Im Vergleich zu LOTOS-EUROS gilt dies auf etwas schwächerem Niveau auch für die EMEP-Modellierung mit mittleren bis starken Zusammenhängen (r_{τ} = 0,43 bis 0,69). Auch die Korrelationen bei 1-jährigen Trieben der Rot-Fichte erweisen sich zumindest bei LOTOS-EUROS als ökosystemtypenspezifisch (Anhang A2.7). Zwischen den mit LE modellierten Depositionen und den Cd-Gehalten in Fichtennadeln bestehen mittlere bis starke Beziehungen (r_{τ} = 0,49 in naturnahen Ökosystemen, $r_{\tau} = 0,64$ in Forst-Ökosystemen, p < 0,05) im Gegensatz zu EMEP ($r_{\tau} = 0,36$ in naturnahen Ökosystemen, $r_{\tau} = 0,40$ in Forst-Ökosystemen, beide p < 0,05). Die Korrelationskoeffizienten sind bei der LE-Modellierung im Vergleich zu EMEP insgesamt höher und - zumindest bei größeren Stichprobenzahlen - auch signifikant. Die Überprüfung der Unterschiedlichkeit der Korrelationskoeffizienten nach Gl. 5 ergibt jedoch, dass die Differenzen sich nicht als signifikant herausheben.

	Υ.	,					
Element	Probenart	n _(LE)	$r_{\tau (LE)}$	p (LE)	n _(EMEP)	r _{τ(EMEP)}	P _(EMEP)
Cd	Fagus sylvatica	28	0,29	0,03	28	0,23	0,09
Cd	- Naturnahe Ökosystemtypen	14	0,60	<0,01	14	0,43	0,04
Cd	- Forst-Ökosystemtypen	8	0,71	0,02	8	0,69	0,02
Cd	- Agrar-Ökosystemtypen	6	-0,33	0,45	6	0,07	1,00
Cd	Populus nigra 'Italica'	18	0,36	0,04	18	0,26	0,15
Cd	Picea abies	35	0,16	0,19	35	0,19	0,12
Cd	- Naturnahe Ökosystemtypen	14	0,49	0,02	14	0,36	0,08
Cd	- Forst-Ökosystemtypen	8	0,64	0,04	8	0,40	0,21

Tabelle 18:

Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Nadel-/Blattspiegelwerten der Cd- und Pb-Belastung aus der Umweltprobenbank des Bundes (UPB) und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum 2007-2011)

Element	Probenart	n _(LE)	$r_{\tau (LE)}$	P(LE)	n _(EMEP)	$r_{\tau(EMEP)}$	P _(EMEP)
Cd	- Agrar-Ökosystemtypen	6	-0,87	0,02	6	-0,73	0,06
Cd	- Ballungsraumnahe Ökosystemtypen	6	0,33	0,45	7	0,29	0,45
Cd	Pinus sylvestris	6	0,47	0,26	6	-0,07	1,00
Pb	Fagus sylvatica	28	0,44	< 0,01	28	0,43	<0,01
Pb	- Naturnahe Ökosystemtypen	14	0,30	0,15	14	0,56	0,01
Pb	- Forst-Ökosystemtypen	8	0,64	0,04	8	0,64	0,04
Pb	- Agrar-Ökosystemtypen	6	-0,60	0,13	6	0,47	0,26
Pb	Populus nigra 'Italica'	17	0,63	< 0,01	17	0,44	0,02
Pb	Picea abies	34	0,29	0,02	34	0,27	0,03
Pb	Pinus sylvestris	6	-0,20	0,71	6	0,73	0,06

n = Stichprobengröße, r_{τ} = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Dies ergibt sich insbesondere aus der geringen Stichprobenzahl. Aus demselben Grund können von der Interpretation ausgeschlossen werden: unplausible negative Korrelationen bei der Rot-Fichte in Agrar-Ökosystemen sowie Korrelationen bei der Rot-Fichte in ballungsraumnahen Ökosystemen und bei 1-jährigen Trieben der Wald-Kiefer (n = 6). Zusammenfassend ist festzuhalten, dass die Korrelationen im Falle von Cadmium generell probenartenspezifisch und bei der Fichte zudem ökosystemspezifisch sind.

Abbildung 24: Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) bzw. EMEP-Modellierung (unten)


Pb – Blei. Die statistischen Beziehungen zwischen den LE-Modellrechnungen und den Bleigehalten in Blättern und Nadeln sind signifikant stark bis schwach (Tabelle 18 und Abbildung 25). Die Korrelationskoeffizienten nach Kendall beziffern sich zu $r_{\tau} = 0,63$ bei der Pappel, $r_{\tau} = 0,44$ bei der Buche und $r_{\tau} = 0,29$ bei der Fichte (alle p < 0,05). Der Vergleich mit dem EMEP-Modell zeigt schwächere (= schwache bis mittlere) Korrelationen mit $r_{\tau} = 0,44$ (Pappel), $r_{\tau} = 0,43$ (Buche) und $r_{\tau} = 0,27$ (Fichte). Wie bei Cd sind die Korrelationen bei Pb probenartenspezifisch und zumindest bei der Buche zeigt sich, dass die ökosystemspezifische Betrachtung höhere (= mittlere bis starke) Korrelationskoeffizienten liefert als die allein probenartenspezifische. Dies gilt wie bei Cd für die Forst-Ökosysteme ($r_{\tau} = 0,64$) und bei EMEP auch für die naturnahen Ökosysteme ($r_{\tau} = 0,56$). Die Stichproben bei der Kiefer mit n = 6 wurden aus der Betrachtung ausgeschlossen. Insgesamt sind die Korrelationskoeffizienten bei LE bezüglich beider Analyten höher als bei EMEP, d.h. es gibt größere Übereinstimmungen der Blatt- und Nadelspiegelwerte mit LE und geringere mit dem EMEP-Modell. Ob diese Unterschiede der Korrelationskoeffizienten nach Gl. 5 statistisch signifikant sind, kann aufgrund der geringen Stichprobenzahl statistisch nicht belegt werden.





Die zeitlichen Trends für die Schwermetallgruppe A sind in den Abbildungen 26 und 27 sowie in Tabelle 19 dargestellt. Die zugehörigen statistischen Maßzahlen sind dem Anhang A2.8 zu entnehmen. Für alle signifikanten zeitlichen Trends wurde in den Grafiken zusätzlich die Regressionsgerade eingefügt. Bei den Blatt-/Nadelspiegelwerten der UPB zeigen sich für Cd signifikante Trends nur bei der Rot-Fichte (Abbildung 26). Bei Pb ergeben sich signifikante Zeittrends für alle Probenarten: Buche, Pyramienpappel, Fichte, Kiefer (Abbildung 26). Die Ergebnisse bei Aufteilung der Daten nach Probenart und Ökosystemtyp (Tabelle 19) zeigt ein ähnliches Bild. Wieder sind bei Pb die meisten (6 von 7) ökosystemspezifischen Zeittrends signifikant, außer bei den Pb-Gehalten in Buchenblättern in forstlichen Ökosystemen. Bei Cd hingegen ist lediglich der zeitliche Trend der Cd-Gehalte in Buchenblättern in Forst-Ökosystemen signifikant.

Abbildung 26: Zeitliche Trends der mittels EMEP berechneten Depositionen und Cd-Gehalte in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) mit Trendgeraden



Abbildung 27: Zeitliche Trends der mittels EMEP berechneten Depositionen und Pb-Gehalte in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) mit Trendgeraden



54

Element	Beschreibung	b	R²	r _τ	р
Cd	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP	-0,86	0,48	-0,54	<0,01
Cd	Zeitlicher Trend Cd-Gehalte in Fagus sylvatica-Blättern	0,83	0,03	0,16	0,47
	- Naturnahe terrestrische Ökosysteme	1,63	0,08	0,17	0,44
	- Forst-Ökosystem	-3,37	0,35	-0,48	<0,05
	- Agrar-Ökosystem	0,14	<0,01	0,10	0,70
Cd	Zeitlicher Trend Cd-Gehalte in Populus nigra 'Italica'- Blättern	1,66	0,12	0,15	0,48
Cd	Zeitlicher Trend Cd-Gehalte in Picea abies-Trieben	-3,82	0,48	-0,51	<0,05
	- Ballungsraum	-0,29	0,01	-0,05	0,87
	- Naturnahe terrestrische Ökosysteme	-3,12	0,05	-0,11	0,62
	- Forst-Ökosystem	-3,99	0,33	-0,29	0,45
	- Agrar-Ökosystem	-0,35	<0,01	-0,03	0,95
Cd	Zeitlicher Trend Cd-Gehalte in Pinus sylvestris-Trieben	-0,05	<0,01	-0,07	0,78
Pb	Zeitlicher Trend Depositionsmodellierung EMEP	-68,34	0,65	-0,60	<0,01
Pb	Zeitlicher Trend Pb-Gehalte in Fagus sylvatica-Blättern	-6,57	0,65	-0,69	<0,01
	- Naturnahe terrestrische Ökosysteme	-5,67	0,59	-0,58	<0,01
	- Forst-Ökosystem	-2,89	0,58	-0,52	0,13
	- Agrar-Ökosystem	-8,21	0,67	-0,68	<0,01
Pb	Zeitlicher Trend Pb-Gehalte in Pyramidenpappelblät- tern	-17,31	0,53	-0,65	<0,01
Pb	Zeitlicher Trend Pb-Gehalte in Picea abies-Trieben	-10,32	0,88	-0,87	<0,01
	- Ballungsraum	-8,14	0,60	-0,64	<0,01
	- Naturnahe terrestrische Ökosysteme	-9,51	0,79	-0,74	<0,01
	- Forst-Ökosystem	-15,07	0,69	-0,81	<0,05
	- Agrar-Ökosystem	-7,81	0,44	-0,52	<0,05
Pb	Zeitlicher Trend Pb-Gehalte in Pinus sylvestris-Trieben	-8,13	0,75	-0,80	<0,01

Tabelle 19:	Kennwerte zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Blättern/Nadeln (Quelle UPB) und
	der Cd-/Pb-Depositionen nach EMEP

b = Steigung der Trendgeraden, R² = Bestimmtheitsmaß, r_{τ} = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikante Trends mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Tabelle 20 zeigt die Resultate des zweiten Schritts, dem korrelationsanalytischen Vergleich zwischen den jahresspezifischen Medianen der Blatt-/Nadelspiegelwerte und den entsprechenden EMEP-Depositionsmodellierungen. Im Ergebnis wird deutlich, dass vor allem die Trends der Bleigehalte in den Buchenblättern (Naturnahe terrestrische Ökosysteme) als auch die der Pb-Gehalte in den Kiefernnadeln mit den zeitlichen Trends der modellierten Deposition am stärksten korrelieren (beide mit $r_{\tau} = 0,67$, p < 0,01). Signifikant starke Zusammenhänge ergeben sich auch zwischen modellierten und gemessenen Trends der Pb-Gehalte in Buchenblättern (alle Ökosystemtypen) sowie in Fichtennadeln (Naturnahe terrestrische Ökosysteme) jeweils mit $r_{\tau} = 0,60$ (p < 0,01). Für Cd zeigt sich dagegen nur bei Fichtennadeln eine mittelstarke signifikante Korrelation zwischen beiden Trends ($r_{\tau} = 0,42$, p < 0,05). Der Vergleich der nationalen Emissionstrends für Deutschland (Tabelle 3) mit zeitlichen Verläufen der Blatt-/Nadelspiegelwerte ergibt für Pb ausgeprägte Korrelationen zwischen diesen beiden Trends bei der Rot-Fichte ($r_{\tau} = 0,85$, 2005-2013) und für Cd bei der Rot-Buche ($r_{\tau} = 0,65$, 2005-2012).

Element	Probenart	N _(EMEP)	$r_{ au}$ (EMEP)	р (емер)
Cd	Picea abies	14	0,42	< 0,05
Pb	Picea abies	14	0,60	< 0,01
Pb	- Naturnahe terrestrische Ökosysteme	14	0,52	< 0,01
Pb	- Agrar-Ökosystem	13	0,26	0,24
Pb	- Ballungsraum	14	0,40	0,06
Pb	- Forst-Ökosystem	7	0,62	0,07
Pb	Fagus sylvatica	14	0,60	<0,01
Pb	- Naturnahe terrestrische Ökosysteme	14	0,67	<0,01
Pb	- Agrar-Ökosystem	13	0,58	<0,01
Pb	Populus nigra 'Italica'	14	0,25	0,23
Pb	Pinus sylvestris	14	0,67	<0,01

Tabelle 20:	Vergleich signifikanter zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Blättern/Nadeln (Quelle
	UPB) und der Cd-/Pb-Depositionen nach EMEP

n = Stichprobengröße, r_{τ} = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikante Trends mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Schwermetallgruppe B: Tabelle 21 zeigt die Ergebnisse der Korrelationsanalysen. Nur zwei der untersuchten 20 probenarten- und elementspezifischen Relationen sind statistisch signifikant: Korrelation mit Cr-Konzentrationen in Blättern der Pyramiden-Pappel ($r_{\tau} = 0,61, p < 0,05$) und mit Zn-Konzentrationen in einjährigen Trieben der Rot-Fichte ($r_{\tau} = 0,44, p < 0,05$). Alle anderen Zusammenhänge erwiesen sich als statistisch nicht signifikant oder unplausibel (negativ).

Tabelle 21:Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen As-, Cr-, Cu-, Ni- und Zn-
Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: UPB) und der mit LE berechneten Gesamtdepositi-
on (Zeitraum 2009-2011)

Element	Probenart	n _(LE)	$r_{ au}$ (LE)	p (LE)
As	Blätter (Fagus sylvatica)	14	0,21	0,32
As	Blätter (Populus nigra 'Italica')	9	0,17	0,60
As	einjährige Triebe (Picea abies)	17	-0,15	0,43
As	einjährige Triebe (Pinus sylvestris)	3	-1,00	1,00
Cr	Blätter (Fagus sylvatica)	14	0,14	0,51
Cr	Blätter (Populus nigra 'Italica')	9	0,61	0,03
Cr	einjährige Triebe (Picea abies)	17	-0,07	0,71
Cr	einjährige Triebe (Pinus sylvestris)	3	0,33	1,00
Cu	Blätter (Fagus sylvatica)	14	0,25	0,23
Cu	Blätter (Populus nigra 'Italica')	9	0,44	0,12
Cu	einjährige Triebe (Picea abies)	17	0,10	0,59
Cu	einjährige Triebe (Pinus sylvestris)	3	-1,00	1,00
Ni	Blätter (Fagus sylvatica)	14	-0,36	0,08
Ni	Blätter (Populus nigra 'Italica')	9	0,33	0,25
Ni	einjährige Triebe (Picea abies)	17	-0,43	0,02
Ni	einjährige Triebe (Pinus sylvestris)	3	0,33	1,00
Zn	Blätter (Fagus sylvatica)	14	0,27	0,19
Zn	Blätter (Populus nigra 'Italica')	9	-0,17	0,60
Zn	einjährige Triebe (Picea abies)	17	0,44	0,02
Zn	einjährige Triebe (Pinus sylvestris)	3	0,33	1,00

n = Stichprobengröße, r_t = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Als wesentlicher Grund für die geringen Korrelationen sind neben der Unsicherheiten hinsichtlich des Beitrags der Wurzelaufnahme aus dem Boden auch in der Auflösung des LE-Grids (25 km mal 25 km) und den geringen Stichprobenumfängen der Jahre 2009, 2010 und 2011 zu sehen. Letztere erlauben es auch nicht, geeignete Teilstichproben zu definieren, um etwa mögliche Ökosystemtypenspezifika untersuchen zu können.

2.6.3 Diskussion und Schlussfolgerungen

Die Ergebnisse der Korrelationsanalyse zwischen den Nadel-/Blattspiegelwerten der UPB und den Modellierungen (LE, EMEP) können aufgrund der geringen Standortanzahl nicht zum Vergleich von räumlichen Mustern und damit auch nicht zur Verortung bestehender Unsicherheiten in den Modellierungen dienen. Trotz der geringen Fallzahlen stellen sich zumindest bei Cd und Pb die statistischen Zusammenhänge bei 3 der 4 Probenarten (Buche, Pappel, Fichte) dennoch als signifikant dar. Ob die höheren Korrelationskoeffizienten bei LE (Cd, Pb) sich von denen bei EMEP wirklich signifikant unterscheiden, konnte aufgrund der geringen Stichprobenzahlen nach Gl. 5 nicht nachgewiesen werden.

Bemerkenswert für die UPB sind die Ergebnisse des Vergleichs zwischen den zeitlichen Trends der Blatt-/Nadelspiegelwerte und entsprechenden Depositionsmodellierungen (Cd, Pb). Der Befund, dass sich in den jährlich aufgelösten Daten der UPB zumindest bei Pb fast ausschließlich signifikant abnehmende Trends zeigen, verweist auf eine gute Übereinstimmung mit der EMEP-Modellierung (ebenfalls signifikante Trends). Die jährlichen Zentraltendenzen der EMEP-Deposition (Cd, Pb, 1998-2011) korrelieren mit den zeitlichen Trends der Mediane der Gehalte in den Nadeln/Blättern stärker, als wenn die Rohdaten mit den Modellierungsdaten verglichen werden. Damit kommt den Nadel-/Blattspiegelwerten der UPB (Cd, Pb) insbesondere Potenzial für vergleichende Analysen zeitlicher Trends zu. Dies gilt besonders für Kiefern- und Fichtennadeln, neben Buchenblättern zumindest in naturnahen terrestrischen Ökosystemen. Dass bei der Auswertung der zeitlichen Trends, die nur vergleichend zu den Modellierungen nach EMEP, aber nicht nach LE betrachtet wurden, lediglich signifikante probenartenspezifische, aber kaum höhere ökosystemspezifische Korrelationen (Ausnahme: Pb, Rot-Buche, Naturnahe terrestrische Ökosysteme) ermittelt werden, könnte darauf zurückzuführen sein, dass die vorhandenen Stichprobengrößen nach Aufteilung des Datensatzes zu klein für eine zeitliche Analyse waren. Aus den Befunden des Trend-Vergleichs mit den Nadel-/Blattspiegelwerten ergibt sich als generelles Defizit, dass für LE keine jährlich aktualisierten Emissionsdaten zur Verfügung stehen und die hier modellierten Zeitreihen der atmosphärischen Deposition für die Berechnung statistisch valider Trends, wie sich im Projekt anhand der EMEP-Daten zeigte, zu kurz waren. Für Trendvergleiche wären Zeitreihen von 10 Jahren (bei Cd) und 12 Jahren (bei Pb) erforderlich.

Insgesamt wäre zu empfehlen, Emissionskataster in Verbindung mit einer räumlich hoch aufgelösten Modellierung der Deposition nicht nur durch ein Biomonitoring mit Moosen in hoher räumlicher Messnetzdichte, sondern auch durch ein zeitlich hoch aufgelöstes Monitoring mit Bättern/Nadeln zu ergänzen. Die UPB bietet für darauf aufbauende integrative Analysen gute Voraussetzungen. Als Einschränkung ist zu nennen, dass die Eignung von Nadeln und Blättern als Biomonitore für die atmosphärische Hintergrundbelastung mit Schwermetallen im Vergleich zu Moosen allgemein geringer einzuschätzen ist (Ceburnis and Steinnes 2000), was bei jeglichen Quantifizierungen zu beachten ist. Als wesentliche Gründe hierfür werden bestehende Unsicherheiten hinsichtlich des Beitrags der Wurzelaufnahme aus dem Boden und die Tatsache, dass die meisten Schwermetalle wieder aus der (Nadel-)Oberfläche freigesetzt, d.h. nur bedingt akkumuliert werden, genannt (ebenda).

2.7 Vergleich von LOTOS-EUROS- und EMEP-Modellierungen mit Daten aus der Level-II-Datenbank

Ziel der nachfolgenden Untersuchung war, die Depositionsmodellierungen (LE, EMEP) mit verfügbaren Daten aus dem intensiven Waldmonitoring des ICP Forests Level II–Programms zu vergleichen. Hierzu wurden neben den Blatt-/Nadelspiegelwerten auch gemessene Schwermetallkonzentrationen in Auflagehorizonten einbezogen. Die Stärken der statistischen Beziehungen zwischen den Modellierungs- und Monitoringdaten wurden ermittelt und geprüft, inwieweit diese element-, probenarten, altersklassen- und horizontspezifisch sind. Unterschiede der Korrelationskoeffizienten wurden herausgearbeitet und auf statistische Signifikanz geprüft. Zur Einordnung der Ergebnisse erfolgten Vergleiche mit Literaturwerten für die Korrelation zwischen modellierter atmosphärischer Deposition (EMEP) und Schwermetallkonzentrationen in den obersten 3 cm norwegischer Oberböden (Meyer et al. 2014a, Nickel et al. 2014).

2.7.1 Material und Methoden

Der Vergleich stützt sich auf die LE-Modellrechnungen für Pb und Cd des Zeitraums 2007-2011 für die Fläche Deutschlands (7 km mal 7 km), vorliegende EMEP-Rasterdaten desselben Zeitraums (50 km mal 50 km), Depositionsberechnungen mit LE für Cu und Zn für den Zeitraum 2009-2011 (25 km mal 25 km) sowie entsprechende Daten aus dem intensiven Monitoring des ICP Forests zu Schwermetallgehalten in Blättern und Nadeln (Cd, Cu, Pb und Zn) sowie verschiedenen Auflagehorizonten (Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn). LE berechnet die trockene Deposition rezeptorspezifisch für 9 Landnutzungsklassen: Laubwald, Nadelwald, Acker, Grasland, Dauerkultur, Ödland, Wasserfläche, Siedlung, Sonstige. Als Gesamtdeposition wurde das entsprechend der Landnutzungsverteilung in jedem LE-Raster gewichtete Mittel der trockenen Deposition (Cd, Cr, Cu, Ni, Pb und Zn) sowie auch die nutzungsspezifische trockene Deposition, unterschieden nach Laub- und Nadelwald (Pb, Cd), jeweils zuzüglich der nassen Deposition aus LE (siehe Teilbericht 1) berücksichtigt. Zudem wurden folgende Metadaten aus der Level II -Datenbank in die Auswertung einbezogen:

- Probenart: Rot-Buche (Fagus sylvatica), Stiel-Eiche (Quercus robur), Trauben-Eiche (Quercus petraea), Rot-Fichte (Picea abies), Wald-Kiefer (Pinus sylvestris), Europäische Lärche (Larix decidua), Gewöhnliche Esche (Fraxinus excelsior), Douglasie (Pseudotsuga menziesii),
- Alter des Nadeljahrganges: diesjährig (0), vorjährig (1), zweijährig (2), dreijährig (3) gemäß BMVEL (2006),
- Auflagehorizont: Wenig zersetzte organische Auflage (OL), fermentierte organische Auflage (OF), fermentierte/humifizierte organische Auflage (OFH), humifizierte organische Auflage (OH).

Da für die LE-Modellierung ausschließlich Emissionsdaten des Jahres 2005 verwendet wurden und somit für den Zeitraum 2007-2011 kein signifikanter zeitlicher Trend der Schwermetalldeposition ableitbar war, wurden die Blatt-/Nadelspiegelwerte sowie Schwermetallgehalte in Auflagehorizonten der Jahre 2007-2011 – für Vergleiche mit LE – gemäß Gl. 11 für das Bezugsjahr 2010 trendbereinigt. Proben von Europäischer Lärche, Gewöhnlicher Esche und Douglasie wurden aufgrund der geringen Stichprobenumfänge von der Betrachtung ausgeschlossen. Nadel-/Blattspiegelwerte größer oder kleiner der 3-fachen sowie Schwermetallgehalte in Auflagehorizonten größer oder kleiner der 2-fachen Standardabweichung wurden als Ausreißer eliminiert.

Es wurde untersucht, inwieweit die statistischen Beziehungen probenarten- oder altersklassenspezifisch bei den Bodendaten auch horizontspezifisch sind und hierfür aufgrund der kleinen Stichprobenzahlen der Korrelationskoeffizient nach Kendall verwendet. Anschließend wurde für Pb und Cd die Unterschiedlichkeit der Korrelationskoeffizienten der Nadel/Blätter jeweils in Bezug auf die EMEPund LE-Modellierung ermittelt und nach Gl. 5 auf statistische Signifikanz geprüft. Für die vergleichende Analyse der **zeitlichen Trends** wurden Daten der Jahre 2002 bis 2010 herangezogen und normierte Jahresmediane (Normierungsjahr = 2005) berechnet. Bei den Depositionsdaten lagen jeweils 204 Werte pro Jahr vor. Die Datengrundlage der Level II Daten variiert von 13 bis 136 Werten insgesamt pro Jahr. Für die Daten der zweijährigen Kieferntriebe lagen jeweils nur Werte für die Jahre 2009 und 2010 vor. Aus diesem Grund ist auf die zeitliche Auswertung basierend auf nur zwei Medianwerten verzichtet worden. Wie bereits in den vorangegangenen Kapiteln erfolgt zunächst die Trendanalyse nach Mann-Kendall nach Gl. 8 auf Basis der normierten Jahresmediane (Normierungsjahr 2005). Für signifikante Zeittrends erfolgt der korrelationsanalytische Vergleich der Trends nach Kendall.

Im Gegensatz zu der Auswertung der Schwermetallgruppe A erfolgte bei der Auswertung der Schwermetallgruppe B (Korrelations-/Trendanalysen) nur der Vergleich zu den mittels LE modellierten Depositionswerten, da EMEP diese Metalle nicht modelliert. Bezüglich der Auflagehorizonte der Böden sind die Metalle As, Mn, Hg und V nicht in beiden Datengrundlagen (LE, Level II) enthalten, weshalb sich die Auswertung auf Cd, Cu, Cr, Ni, Pb und Zn beschränkt.

2.7.2 Ergebnisse

Nadel-/Blattspiegelwerte, Schwermetallgruppe A: Das Ergebnis der Korrelationsanalyse ist zusammenfassend in Tabelle 22 sowie den Abbildungen 28 und 29 wiedergegeben. Die Korrelationskoeffizienten sind bei beiden Metallen deutlich element- und probenartenspezifisch, bei den Pb-Gehalten in Nadeln zudem altersklassenspezifisch (siehe auch Anhang A2.9).

Cd - *Cadmium.* Die vergleichsweise höchsten Korrelationen zum entsprechend der Nutzungsverteilung gewichteten Mittel aus LE zeigen die Kiefernproben ($r_{\tau} = 0,34$, p < 0,01) und zur EMEP-Deposition die Fichte ($r_{\tau} = 0,28$, p < 0,01) und Buche ($r_{\tau} = 0,21$, p < 0,05). Die Unterschiede der Korrelationen (EMEP, LE) sind gemäß Gl. 5 nur bei der Fichte als statistisch signifikant anzusehen (p < 0,05). Die Korrelationen bei Trauben- und Stiel-Eiche sind nicht signifikant, insbesondere auch aufgrund der geringen Stichprobenzahl. Die Korrelationskoeffizienten in Bezug auf die nutzungsspezifische LE-Modellierung für Laub- und Nadelwald ist mit dem des gewichteten Mittels von LE vergleichbar.

Pb – Blei. Auch zwischen den Pb-Gehalten in Blättern/Nadeln und den entsprechend modellierten Gesamtdepositionen stellen sich die statistischen Relationen deutlich probenartenspezifisch, bei den Nadelspiegelwerten zudem altersklassenspezifisch dar. Bei Fichte, Kiefer und Buche zeigen sich schwache, aber signifikante Korrelationen (p < 0,05) sowohl mit dem EMEP-Modell als auch dem gewichteten Mittel aus LE (Tabelle 22). Die höchsten Korrelationskoeffizienten sich bei den zweijährigen Trieben der Rot-Fichte (LE, gewichtetes Mittel: r_{τ} = 0,58, p < 0,01; EMEP: r_{τ} = 0,44, p < 0,05) zeigen. Der Unterschied zwischen den Modellen ist aufgrund der geringen Stichprobengröße (n = 15) gemäß Test nach Gl. 5 allerdings als nicht signifikant einzustufen. Bezüglich der Wald-Kiefer findet man die stärksten Korrelationen zwischen Pb-Gehalten in zweijährigen Trieben und LE (r_{τ} = 0,47-0.56, p < 0,01) bzw. einjährigen Trieben bei EMEP (r_{τ} = 0,20 p < 0,01). Trauben-Eiche und Rot-Buche zeigen stärkere Korrelationen mit dem EMEP-Modell (r_{τ} = 0,40-0,64, p < 0,01) verglichen mit LE. Wie bei Cadmium stellen sich die statistischen Zusammenhänge zur nutzungsspezifischen Deposition aus LE nur bei der Wald-Kiefer als signifikant dar.

Tabelle 22:Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Nadel/Blattspiegelwerten
der Cd- und Pb-Konzentrationen aus der Level II Datenbank und der mit LE und dem
EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum
2007-2011)

Element	Probenart	N (LE) ¹	$r_{\tau(LE)}$ ¹⁾	p (LE) ¹⁾	N _(LE) ²⁾	r _{τ (LE)} ²⁾	p (LE) ²⁾	N (EMEP)	r _{τ (EMEP)}	P _(EMEP)
Cd	Picea abies	50	0,18	0,06	77	0,21	0,01	77	0,28	<0,01
Cd	Pinus sylvestris	74	0,38	<0,01	126	0,34	<0,01	126	0,08	0,19
Cd	Fagus sylvatica	32	-0,03	0,71	46	-0,03	0,79	46	0,21	0,04
Cd	Quercus robur	5	-0,11	0,72	6	0,33	0,47	6	-0,20	0,72
Cd	Quercus petraea	10	0,01	0,82	14	0,14	0,59	14	-0,03	0,91
Pb	Picea abies	50	0,02	0,87	68	0,19	0,03	68	0,30	<0,01
Pb	Picea abies, diesjährig	23	-0,23	0,17	31	0,04	0,71	31	0,34	0,01
Pb	Picea abies, vorjährig	14	-0,03	1,00	22	0,20	0,20	22	0,11	0,47
Pb	Picea abies, zweijährig	13	0,24	0,20	15	0,58	<0,01	15	0,44	0,05
Pb	Pinus sylvestris	74	0,44	<0,01	108	0,18	<0,01	108	0,20	<0,01
Pb	Pinus sylvestris, diesjährig	27	0,45	<0,01	47	0,22	0,02	47	0,20	0,06
Pb	Pinus sylvestris, vorjährig	14	0,48	<0,01	45	0,20	0,04	45	0,29	<0,01
Pb	Pinus sylvestris, zweijährig	22	0,47	<0,01	16	0,56	<0,01	16	0,03	0,89
Pb	Fagus sylvatica	32	0,22	0,12	39	0,26	0,02	39	0,40	<0,01
Pb	Quercus robur	5	0,32	0,82	6	0,2	0,72	6	0,47	0,27
Pb	Quercus petraea	10	0,13	0,60	13	-0,06	0,86	13	0,64	<0,01

1) = nutzungsspezifische Deposition (Laub-/Nadelwälder) aus LE (2009-11)

2) = entsprechend der Landnutzungsverteilung in jedem LE-Rasterelement gewichtetes Mittel der Schwermetalldeposition (2007-11)

n = Stichprobengröße, r_{τ} = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Abbildung 28: Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) und EMEP-Modellierung (unten)



Abbildung 29: Streudiagramme für die Beziehung zwischen Pb-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, nutzungsspezifisch (oben), LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) und EMEP-Modellierung (unten)



Bei den **zeitlichen Trends** der Proben von Level II gibt es nur in einem Fall einen signifikanten Zeittrend, selbst wenn zwei Ausreißerjahre (Cd-Gehalt in zweijährigen Fichtentrieben 2008 und Pb-Gehalt in Rot-Buchenblättern 2004) nicht berücksichtigt werden. Die zugehörigen statistischen Maßzahlen sind dem Anhang A2.11 zu entnehmen. Nach Unterteilung der Probenarten in diesjährige, einjährige und zweijährige Nadeln zeigt sich dieser lediglich beim Pb-Gehalt in einjährigen Kiefernnadeln ($r_{\tau} = -$ 0,65, p < 0,05). In den meisten Fällen liegen die p-Werte deutlich über dem gewählten Signifikanzniveau (Abbildung 30, Tabelle 23). Da auch die mit EMEP modellierten Depositionswerte für den entsprechenden Zeitraum 2002 – 2010) aufgrund des zu kurzen Betrachtungszeitraumes keinen signifikanten Zeittrend zeigte, wurde auf den korrelationsanalytischen Vergleich der Zeit-Trends von EMEP und Level II verzichtet.

Abbildung 30: Zeitliche Trends der mittels EMEP berechneten Depositionen und Cd-/Pb-Gehalte in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) mit Trendgeraden (Cd: oben; Pb: unten)



Element	Beschreibung	b	R²	rτ	р
Cd	Zeitlicher Trend der Depositionsmodellierung mittels EMEP	-2,20	0,13	-0,39	0,18
Cd	Zeitlicher Trend der Cd-Gehalte in Fagus sylvatica- Blättern	4,97	0,21	0,21	0,54
Cd	Zeitlicher Trend der Cd-Gehalte in Picea abies-Trieben	-7,92	0,35	0,27	0,27
Cd	- diesjährige Picea abies-Trieben	-1,85	0,06	<0,01	1,00
Cd	- einjährige Picea abies-Trieben	-6,38	0,42	-0,29	0,39
Cd	- zweijährige Picea abies-Trieben	-14,74	0,26	-0,36	0,27
Cd	Zeitlicher Trend der Cd-Gehalte in Pinus sylvestris- Trieben	-1,43	0,27	-0,57	0,06
Cd	- diesjährige Pinus sylvestris-Trieben	-2,00	0,33	-0,43	0,17
Cd	- einjährige Pinus sylvestris-Trieben	-2,20	0,29	-0,36	0,27
Cd	Zeitlicher Trend der Pb-Gehalte in Quercus petraea- Blättern	-1,13	0,02	-0,21	0,54
Pb	Zeitlicher Trend der Depositionsmodellierung mittels EMEP	-5,02	0,67	-0,50	0,08
Pb	Zeitlicher Trend der Pb-Gehalte in Fagus sylvatica- Blättern	-7,10	0,02	0,08	0,83
Pb	Zeitlicher Trend der Pb-Gehalte in Picea abies-Trieben	3,62	0,34	0,32	0,33
Pb	- diesjährige Picea abies-Trieben	2,50	0,15	0,14	0,71
Pb	- einjährige Picea abies-Trieben	-2,24	0,08	-0,07	0,90
Pb	- zweijährige Picea abies-Trieben	-1,97	0,02	-0,07	0,90
Pb	Zeitlicher Trend der Pb-Gehalte in Pinus sylvestris- Trieben	-3,27	0,33	-0,48	0,09
Pb	- diesjährige Pinus sylvestris-Trieben	-2,79	0,37	-0,39	0,18
Pb	- einjährige Pinus sylvestris-Trieben	-4,75	0,50	-0,65	0,02
Pb	Zeitlicher Trend der Pb-Gehalte in Quercus petraea- Blättern	2,07	0,01	0,06	0,92

Tabelle 23:Kennwerte zeitlicher Trends der Cd-/Pb-Gehalte von Blättern/Nadeln (Quelle LevelII)
und der Cd-/Pb-Depositionen nach EMEP

b = Steigung der Trendgeraden, R² = Bestimmtheitsmaß, r_{τ} = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikante Trends mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Nadel-/Blattspiegelwerte, Schwermetallgruppe B: Das Ergebnis der Korrelationsanalyse für die Beziehung zwischen den Blatt- und Nadelspiegelwerten für Cu und Zn aus dem Intensiven Monitoring und den entsprechenden LE-Modellierungen ist Tabelle 24 zu entnehmen.

Cu – *Kupfer.* Statistisch signifikante Korrelationen wurden allein für die Wald-Kiefer ermittelt (r_{τ} = 0,34, p < 0,01). Diese sind zudem altersklassenspezifisch, wobei die höchsten (= mittleren) Korrelationskoeffizienten nach Kendall bei vorjährigen (r_{τ} = 0,41, p < 0,01) und bei zweijährigen Kiefernnadeln (r_{τ} = 0,49, p < 0,01) auftreten. Alle anderen Biomonitore zeigen unplausible (= negative) oder nicht signifikante Korrelationen.

Zn - Zink. Für Zink gilt das gleiche wie für Kupfer. Allein die Nadelspiegelwerte der Wald-Kiefer zeigen einen signifikanten statistischen Zusammenhang mit der modellierten Deposition. Es findet sich ebenfalls eine ausgeprägte Altersklassenspezifik mit den höchsten Korrelationskoeffizienten bei vorjährigen, d.h. einjährigen Trieben ($r_{\tau} = 0,41$, p < 0,01) und bei den zweijährigen Trieben ($r_{\tau} = 0,35$, p < 0,01).

Element	Probenart	n _(LE)	$\mathbf{r}_{ au}$ (LE)	p (LE)
Cu	Picea abies	77	-0,03	0,69
Cu	Pinus sylvestris	79	0,34	<0,01
Cu	Pinus sylvestris, diesjährig	28	0,32	0,02
Cu	Pinus sylvestris, vorjährig	27	0,41	<0,01
Cu	Pinus sylvestris, zweijährig	24	0,49	<0,01
Cu	Fagus sylvatica	36	<0,01	0,99
Cu	Quercus robur	6	-0,33	0,47
Cu	Quercus petraea	12	-0,09	0,74
Zn	Picea abies	97	0,02	0,77
Zn	Pinus sylvestris	79	0,33	<0,01
Zn	Pinus sylvestris, diesjährig	28	0,30	0,02
Zn	Pinus sylvestris, vorjährig	27	0,41	<0,01
Zn	Pinus sylvestris, zweijährig	24	0,35	0,02
Zn	Fagus sylvatica	42	0,04	0,75
Zn	Quercus robur	6	0,20	0,72
Zn	Quercus petraea	12	-0,33	0,15

Tabelle 24:Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cu- und Zn-Gehalten in
Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) und der mit LE berechneten Gesamtdeposition (Zeit-
raum 2009-2011)

n = Stichprobengröße, r_{τ} = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Auflagehorizonte des Bodens, Schwermetallgruppe A: Das Ergebnis der Korrelationsanalyse ist zusammenfassend in Tabelle 25 und den Abbildungen 31 und 32 wiedergegeben. Die Zusammenhänge zwischen den Depositionsmodellierungen (LE, EMEP) und den Schwermetallgehalten in der Auflage sind deutlich horizontspezifisch, aber ohne dass sich eine Präferenz für einen bestimmten Horizont als der geeignetste abzeichnet. Insgesamt sind maximal schwache Korrelationen festzustellen,

Tabelle 25:Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cd- und Pb-Gehalten in
Auflagehorizonten (Quelle: Level II) und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten
Gesamtdeposition (Zeitraum 2007-2011)

Element	Auflagehorizont	n _(LE)	$r_{ au}$ (LE)	p (le)	n (EMEP)	Γ τ (EMEP)	P (EMEP)
Cd	OL – Wenig zersetzte organische Auflage	58	-0,04	0,74	58	0,09	0,40
Cd	OF – Fermentierte organische Auflage	86	0,12	0,11	86	0,04	0,58
Cd	OFH – Fermentierte/humifizierte organi- sche Auflage	25	0,02	0,98	25	-0,06	0,69
Cd	OH – Humifizierte organische Auflage	61	0,31	<0,01	61	0,27	<0,01
Pb	OL – Wenig zersetzte organische Auflage	58	0,38	<0,01	58	0,24	<0,01
Pb	OF – Fermentierte organische Auflage	85	0,21	0,01	85	0,15	0,04
Pb	OFH – Fermentierte/humifizierte organi- sche Auflage	25	-0,20	0,28	25	0,26	0,10
Pb	OH – Humifizierte organische Auflage	60	0,32	<0,01	60	0,23	0,02

n = Stichprobengröße, r_τ = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Cd - *Cadmium.* Zwischen den Cd-Konzentrationen in den unterschiedlichen Auflagehorizonten der Level II - Standorte und den beiden Modellrechnungen zeigen sich schwache aber statisch signifikante Korrelationen lediglich in Bezug auf den OH-Horizont. Die Korrelationen zu LE ($r_{\tau} = 0,31$, p<0,01) erweisen sich etwas höher als zu EMEP ($r_{\tau} = 0,27$, p < 0,01). Gem. Gl. 5 sind die Koeffizienten aufgrund der kleinen Stichprobe (n = 61) als nicht signifikant anzusehen. Alle weiteren Auflagehorizonte weisen keine signifikanten oder unplausible (= negative) Zusammenhänge mit den Depositionsmodellierungen auf. Diese Ergebnisse stehen im Einklang mit schwachen Korrelationen der Cd-Konzentrationen in Oberböden Norwegens (0-3 cm) und der entsprechenden EMEP–Deposition (Meyer et al. 2014, Nickel et al. 2014).

Pb – Blei. Die höchsten Korrelationen zwischen den Pb-Gehalten in den Auflagehorizonten und den modellierten Depositionen zeigen sich in Bezug auf den OL-Horizont ($r_{\tau} = 0,24-0,38$, p < 0,01) und den OH-Horizont ($r_{\tau} = 0,23-0,32$, p < 0,05). In beiden Fällen sind die Korrelationen mit LE höher als bei EMEP. Diese Unterschiede der Korrelationskoeffizienten sind allerdings nach

Gl. 5 sowohl beim OL- als auch OH-Horizont nicht signifikant (zu kleine Stichproben). Für die Beziehung zwischen LE und den Pb-Gehalten im OF-Horizont ergibt sich ein schwacher Zusammenhang (r_{τ} = 0,21, p < 0,05). Bei allen anderen Korrelationen finden sich sehr schwache oder unplausible (= negative) Zusammenhangsmaße. Von vergleichbaren Untersuchungen für Norwegen (Meyer et al. 2014 a, 2014 b; Nickel et al. 2014) mit dort gefundenen starken Korrelationen zwischen Pb-Konzentrationen im Oberboden (0-3 cm) und den entsprechenden atmosphärischen Pb-Depositionen (EMEP) weichen diese Ergebnisse deutlich ab.

Abbildung 31: Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cd-Gehalten in der Auflagehorizonten (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel (oben) und EMEP-Modellierung (unten)







67

Auflagehorizonte der Böden, Schwermetallgruppe B: Die Ergebnisse der Korrelationsanalyse für die Schwermetalle Cu, Cr, Ni und Zn sind zusammenfassend in Tabelle 26 und den Abbildungen 33 bis 36 wiedergegeben. Die Zusammenhänge zwischen den Depositionsmodellierungen (LE) und den Schwermetallgehalten in der Auflage sind weniger horizontspezifisch als bei Cd und Pb. Insgesamt sind eher schwache Korrelationen festzustellen. Lediglich für Cr im OFH-Horizont zeigt sich eine deutlich hohe, allerdings negative und daher unplausible Korrelation. Auch Zn ebenfalls im OFH-Horizont zeigt eine höhere Korrelation ($r_{\tau} = 0,49$, p < 0,01). Im Gegensatz zur Schwermetallgruppe A, wo nur bei 50 % (4 von insgesamt 8 untersuchten Beziehungen) signifikante Korrelationen ermittelt wurden zeigen sich bei der Schwermetallgruppe B bei ca. 63 % (10 von insgesamt 16 untersuchten Beziehungen) signifikant positive Korrelationen.

Element	Auflagehorizont	n _(LE)	$r_{\tau (LE)}$	p (le)
Cu	OL – Wenig zersetzte organische Auflage	48	0,44	<0,01
Cu	OF – Fermentierte organische Auflage	83	0,36	<0,01
Cu	OFH – Fermentierte/humifizierte organische Auflage	25	-0,04	0,76
Cu	OH – Humifizierte organische Auflage	59	0,32	<0,01
Cr	OL – Wenig zersetzte organische Auflage	47	0,29	<0,01
Cr	OF – Fermentierte organische Auflage	81	0,26	<0,01
Cr	OFH – Fermentierte/humifizierte organische Auflage	25	-0,65	<0,01
Cr	OH – Humifizierte organische Auflage	60	0,29	<0,01
Ni	OL – Wenig zersetzte organische Auflage	48	0,01	0,70
Ni	OF – Fermentierte organische Auflage	81	0,02	0,78
Ni	OFH – Fermentierte/humifizierte organische Auflage	27	0,38	0,01
Ni	OH – Humifizierte organische Auflage	60	-0,09	0,36
Zn	OL – Wenig zersetzte organische Auflage	47	0,07	0,55
Zn	OF – Fermentierte organische Auflage	81	0,28	<0,01
Zn	OFH – Fermentierte/humifizierte organische Auflage	27	0,49	<0,01
Zn	OH – Humifizierte organische Auflage	57	0,39	<0,01

Tabelle 26:Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cu-, Cr-, Ni- und Zn-
Gehalten in Auflagehorizonten (Quelle: Level II) und der mit LE -Modell berechneten Ge-
samtdeposition (Zeitraum 2007-2011)

n = Stichprobengröße, r_τ = Korrelationskoeffizient nach Kendall, **fett** = signifikant positive Korrelationen mit p < 0,05 (= Irrtumswahrscheinlichkeit)

Cu – Kupfer. Die höchsten Korrelationen (= schwach bis mittel) zwischen den Cu-Gehalten in den Auflagehorizonten und den modellierten Depositionen zeigen sich in Bezug auf den OL- und den OF-Horizont (r_{τ} = 0,44 bzw. 0,36). Das Ergebnis für den OFH-Horizont ist als unplausibel (= negative Korrelation) einzustufen.

Abbildung 33: Streudiagramme für die Beziehung zwischen Cu-Gehalten in der Auflage (Quelle: Level II) und LE-Modellierung, gewichtetes Mittel



Cr - *Chrom.* Die höchsten Korrelationen zwischen den Cr-Gehalten in den Auflagehorizonten und den modellierten Depositionen zeigen sich in Bezug auf den OFH-Horizont (r_{τ} = -0,65), sind jedoch bedingt durch das negative Vorzeichen als unplausibel zu werten. Zwischen dem OL-, dem OH- und dem OF-Horizont bestehen schwache Korrelationen zwischen r_{τ} = 0,26 und 0,29.





Ni – *Nickel.* Bei Nickel besteht nur eine signifikante Korrelation zum OFH-Horizont mit r_{τ} = 0,38. Für alle anderen Horizonte liegt der p-Wert über dem Signifikanzniveau von α = 0,05.





Zn- Zink. Zink weist die vergleichsweise höchste Korrelation innerhalb dieser Schwermetallgruppe mit dem Auflagehorizont OFH auf (r_{τ} = 0,49; mittelstark). Zu den OF- und OH-Horizonten bestehen signifikant schwache Korrelationen ($r_{\tau} = 0,28$ und $r_{\tau} = 0,39$).



2000

80

30 40 50

60

Schwermetallgehalt [µg/g]

70

80 90 8

40 50 60 70 80 90 100

Schwermetallgehalt [µg/g]

Diskussion und Schlussfolgerungen 2.7.3

80

Schwermetallgehalt [µg/g]

1400

1200

40 50 60 70 2000

60

80 100

Schwermetallgehalt [µg/g]

Dass Koniferennadeln als Indikatoren für die Hintergrundbelastung durch atmosphärische Schwermetalleinträge geeignet sind, wurde in der Vergangenheit vielfach aufgezeigt (Wyttenbach et al. 1990, Ceburnis & Steinnes 2000). Die Analysen der Level II-Daten bestätigt dies eindrücklich mit hohen und signifikanten Korrelationen zwischen LE (nutzungsspezifische Modellierung) und der Kiefer (Cd, Cu, Pb, Zn) sowie zwischen EMEP und der Fichte (Cd, Pb), aber auch der Buche (Cd, Pb). Anders die Ergebnisse bei der Kiefer und den nicht-nutzungsspezifischen LE-Modellierungen: Hier resultieren meist höhere Korrelationen zu EMEP im Vergleich zu LE. Gegenüber der UPB haben die Daten des intensiven Waldmonitorings den Vorzug, Nadelproben unterschiedlicher Altersklassen (diesjährige, einjährige, zweijährige Triebe) zu liefern. Die altersklassenspezifische Analyse erbrachte außer bei Cd meist höhere Korrelationen zwischen LE und den 2-jährigen Kiefernnadeln (Cu, Pb, Zn) und den 2-jährigen Fichtennadeln (Pb). Bei Cd sind es meist die diesjährigen Koniferennadeln, die die höchsten Korrelationen mit der Modellierung aufweisen. Einer bestimmten Altersklasse generell den Vorzug als Biomonitor zu geben, ist aufgrund der hier vorgelegten Ergebnisse nicht möglich.

Ein ähnlich uneinheitliches Ergebnis bringt der Vergleich der LE-Modellierung mit den Auflagehorizonten der Böden. Die relativ hohe Anzahl an signifikanten, meist schwach bis mittelstarken Korrelationen (Cd, Cu, Cr, Ni, Pb, Zn) weist die Schwermetallgehalte in den Auflagehorizonten zunächst als geeignete Indikatoren für die atmosphärische Hintergrundbelastung in Deutschland aus, wie dies ähnlich auch für die Beziehung zwischen Cd-, Hg- und Pb-Gehalten in den obersten 3 cm des A-Horizontes und der EMEP-Deposition in Norwegen gezeigt werden konnte (Meyer et al. 2014a, 2014b, Nickel et al. 2014). Allerdings führt die horizontspezifische Auswertung nicht zu einer eindeutigen Präferenz für einen der Auflagehorizonte. Als Einschränkung der Methodik gilt, dass weitere Faktoren wie Hintergrundgehalte in den Böden, Bodenreaktion, anthropogene Einträge durch die umgebende Nutzung sowie die verschiedenen Mobilitäten der Schwermetalle im Boden Auswirkungen auf die Schwermetallkonzentrationen im Boden haben (Schachtschabel et al. 1989). Weitere mögliche Prädiktoren sollten mit Methoden der multivariaten Statistik (Meyer et al. 2014b, Nickel et al. 2014) untersucht werden.

Auf einen korrelationsanalytischen Vergleich der Zeit-Trends von EMEP und Level II (Cd, Pb) musste verzichtet werden, da letztere so gut wie keine zeitlichen Trends aufwiesen. Dies könnte auf eine nicht gänzlich abgeschlossene Qualitätssicherung (etwa ab dem Jahr 2007) zurückzuführen sein.

2.8 Statistische Modellierung und Berechnung hochauflösender Depositionskarten mittels Regression Kriging

Ziel der regressionsanalytischen Quantifizierung der Modellierungs- und Moosdaten ist die statistische Modellbildung, die es erlaubt, die Regressionsfunktionen auf Daten der Schwermetallanreicherung in Moosen anzuwenden und so standortbezogen oder flächenmäßig atmosphärische Schwermetalldepositionen abschätzen zu können (Schröder et al. 2011). Dieser methodische Ansatz soll im Folgenden auf die Beziehungen zwischen den modellierten As-, Cd-, Ni- und Pb-Depositionen (LE) und den entsprechenden Schwermetallkonzentrationen im Moos angewendet werden. Auf dieser Grundlage soll aufgezeigt werden, ob und wie modellierte Depositiondaten (LE) mit entsprechenden Flächenschätzungen der Schwermetallgehalte im Moos so integriert werden können, dass hochauflösende Karten der atmosphärischen Schwermetalldeposition berechnet werden können. Die Datenintegration erfolgt mittels Regression-Kriging (Hengl et al. 2004, Odeh et al. 1995). Die Methode stützt sich auf hinreichend starke Zusammenhänge zwischen den zu integrierenden Daten sowie einer ausreichend hohen räumlichen Autokorrelation der Residuen.

2.8.1 Material und Methoden

Verwendet wurden die Schwermetall-Anreicherungskarten der geostatistischen Flächenschätzungen für das Jahr 2005 (Pesch et al. 2007b) sowie die entsprechenden LE-Modellrechnungen für die Elemente, bei denen Korrelationskoeffizienten (Spearman) >= 0,3 festgestellt wurden: As, Cd, Ni und Pb. Die Moos-Schätzungen (3 km mal 3 km) und Depositionsmodellierungen (25 km mal 25 km) für Cd und Pb (Jahr 2005) sowie As und Ni (Mittel der Jahre 2009-2011) wurden durch Rasterverschneidung zusammengeführt und für jede der 573 LE-Rasterzellen über Deutschland der Median der zugehörigen Schwermetallgehalte im Moos bestimmt. Die statistischen Zusammenhänge wurden regressionsanalytisch untersucht und in einem Regressionsmodell abgebildet. Die anschließende Residuenanalyse erfolgte graphisch mit Hilfe von OO-Plots und Scatterplots (Residuen vs. Schätzung), wobei Abweichungen von den Referenzlinien beider Plots daraufhin beurteilt wurden, ob die Residuen normalverteilt und / oder inhomogen sind. Ggf. nicht-lineare Zusammenhänge wurden durch geeignete Transformationen der Schwermetalldeposition linearisiert. Schließlich wurden der Gültigkeitsbereich und das Bestimmtheitsmaß (R²) für den durch das lineare Modell erklärten Anteil der Varianz der Zielvariablen ermittelt. Im Anlehnung an vergleichbare Vorarbeiten auf der Basis der EMEP-Modellierungen (Schröder et al. 2011) und im Hinblick auf den Zweck des Regression-Kriging werden R² kleinergleich 0,2 als schwach, R^2 zwischen 0,2 und 0,4 als mittel und R^2 größer 0,4 als gut eingestuft.

Auf der Grundlage der 4 Regressionsmodelle für As, Cd, Ni und Pb wurden hochauflösende Karten mittels Regression-Kriging nach folgenden Schritten berechnet:

- 1. Anwendung der Regressionsfunktionen auf die geostatistischen Flächenschätzungen der Konzentrationen im Moos (= Prädiktorvariable, 2005, 3 km x 3 km) zur Berechnung einer Regressionskarte der Schwermetalldeposition (= Zielvariable, 3 km x 3 km),
- 2. Geostatistische Untersuchung der Residuen auf räumliche Autokorrelation (Variogramm-Analyse) und bei nachgewiesener räumlicher Autokorrelation Berechnung einer Residuenkarte durch Kriging-Interpolation (3 km x 3 km),
- 3. Addition der Regressions- und Residuenkarten zur Erzeugung einer Schwermetalldepositionskarte Deutschlands (3 km x 3 km).

Räumliche Autokorrelation heißt, dass Werte dicht beieinander liegender Standorte sich ähnlicher sind, als Werte weiter entfernt liegender Standorte. Hohe räumliche Autokorrelationen sind damit kennzeichnend für kontinuierliche Oberflächen. Bei der Untersuchung von Messwerten (bzw. hier Residuen) auf räumliche Autokorrelation wird der Abstand zwischen den Punktepaaren mit der Ähnlichkeit der Messwerte in einem experimentellen Variogramm in Beziehung gesetzt und daran ein geeignetes Modellvariogramm (= Variogramm-Kurve) angepasst (Abbildung 37). Durch die *Lag Size* (= Trennungsentfernung) wird die Anzahl der Punkte bestimmt, an die das Modell angeglichen wird. Wichtige Parameter zur Beurteilung der räumlichen Autokorrelation bilden sodann neben der *Distanz* und der *Semivarianz* die so genannten *Nuggets* und *Sills*, anhand derer die *Nugget-Sill-Ratio* ermittelt werden kann, sowie die *Major range*.





Erläuterung: h = Distance [m]; der Wert von 3,75 (= h * 10⁻⁵) entspricht damit einer range von 375 km

Die Semivarianz χ ist ein Maß für die Ähnlichkeit der Messwertpaare und ergibt sich aus dem halbierten Quadrat der Messwertdifferenzen (Johnston et al. 2001). Der Nugget-Effekt gibt Auskunft über verzerrende Faktoren wie beispielsweise Messfehler oder hohe kleinräumige Variabilitäten. Die Major range oder auch nur Range (= Reichweite) bezeichnet die maximale Distanz, unterhalb derer eine Abhängigkeit zwischen Distanz und Semivarianz erkennbar ist und damit die Interpolation als statistisch sinnvoll angesehen werden kann. Die der Range zugeordnete Semivarianz wird als Sill bezeichnet. Je höher die Nugget-Sill-Ratio in %, desto niedriger die räumliche Autokorrelation. Geht dieses Verhältnis gegen 100 %, so liegt keine räumliche Autokorrelation vor. Nugget-Sill-Ratios < 75 % erlauben dagegen die Anwendung des Modellvariogramms für die Kriging-Interpolation. Vorteil des Kriging als geostatistische Methode ist, dass bei der Interpolation ein statistisches Modell verwendet wird, wodurch ermöglicht wird, dass nicht nur wie etwa bei der inverse distance weighted (IDW) Interpolation (Bill 1999) gewichtete Distanzen zu den Messpunkten, sondern auch die modellierten Beziehungen zwischen den Nachbarpunkten innerhalb der Range berücksichtigt werden. Durch Kreuzvalidierung werden zudem Schätzfehler bei der Vorhersage ermittelt.

2.8.2 Ergebnisse

Nachfolgend werden die Ergebnisse der statistischen Modellbildung und des darauf aufbauenden Regression-Kriging (RK) für die 4 Metalle Cd, Pb, As und Ni vorgestellt. Dabei werden neben den statistischen Maßzahlen auch die Verteilungskarten und die Ergebnisse der Variogramm-Analyse dargelegt.

Schwermetallgruppe A: Die statistischen Beziehungen zwischen den Cd- und Pb-Flächenschätzungen der Schwermetallgehalte im Moos (Prädiktor) und den modellierten Schwermetalleinträgen aus der Atmosphäre (Zielgröße) lassen sich regressionsanalytisch wie folgt quantifizieren:

Abbildung 38: Regressionsmodell für den Zusammenhang zwischen Flächenschätzungen der Cd-Gehalte (links) und Pb-Gehalte (rechts) im Moos (Jahr 2005) und entsprechend mit LE modellierter Gesamtdeposition (Jahr 2005)



Cd – *Cadmium.* Für das Modell stehen 573 Wertepaare zur Verfügung. Zwischen Zielgröße und Prädiktor wird ein nicht-linearer, aber monotoner, progressiv steigender Zusammenhang vermutet. Die Residuenanalyse mit Hilfe von QQ-Plots und Scatterplots (Anhang A2.8 und A2.9) ergibt, dass sich durch logarithmische Transformation die Residuen der Normalverteilung annähern lassen, d.h. die nichtlineare Funktion linearisiert werden kann (Abbildung 37). Die zugehörige Regressionsgleichung lautet:

y = 1.7	788x +	2.633	Gl. 12	
mit:	у	=	ln Cd-Gesamtdeposition (LE) [μg/m²a]	
	х	=	Cd-Gehalt im Moos, geostatistische Flächenschätzung [µg/g]	

Das Bestimmtheitsmaß R² beträgt 0,26 (= mittel) und gibt in erster Näherung an, dass 26 % der gesamten auftretenden Varianz durch das logtransformierte Regressionsmodell erklärt werden können. Der Gültigkeitsbereich des Modells kann mit 0,01 < x < 0,55 µg/g Cd-Gehalt im Moos angegeben werden.

Das Variogramm-Modell offenbart ein *Nugget/Sill-Verhältnis* von 15 % und eine *Major range* von 375 km, innerhalb derer das Modell-Variogramm für die räumliche Interpolation angewendet wurde (Abbildung 39). Die Cd-Deposition zeigt Werte zwischen 12,09 und 60,44 μ g/m²a. Das arithmetische Mittel der Daten aus dem RK liegt bei 32,30 μ g/m²a (Sd = 4,79). Das Verhältnis des Medians des RK

 $(20,60 \ \mu g/m^2 a)$ zum Median von LE $(19,45 \ \mu g/m^2 a)$ liegt nahe 1 (= 1,05). Die Schwankungsbreite der LE-Depositionsraten ist aber vergleichsweise höher (LE: 9,65-81,85 $\ \mu g/m^2 a)$.





Kernzonen mit Gesamtdepositionen über 25,3 μ g/m²a (= 90. Perzentil der RK-Verteilung) finden sich – wie auch bei der LE-Modellierung – in Nord-Rhein-Westfalen, Berlin, im Osten Sachsens und in Bayern nahe der Grenze zu Österreich. Damit erfolgt durch das RK eine starke Anpassung an die mit LE modellierte Deposition, weniger an die räumliche Verteilung der Konzentrationen im Moos (Abbildung 11), was sich insbesondere aus der Festlegung der atmosphärischen Deposition als Zielvariable und des daraus abzuleitenden Residuums ergibt. Die räumliche Auflösung wird gegenüber LE von 25 km x 25 km auf 3 km x 3 km erhöht. *Pb – Blei.* Die Modellierung erfolgt anhand von 573 Wertepaaren. Auch bei Blei zeigt sich zunächst ein nicht-linearer Zusammenhang, der durch eine kubische Transformation der Schwermetalldepositionen (Sachs und Hedderich 2009) annähernd linearisiert werden konnte (Abbildung 38 und Anhang A2.14 / A2.15). Das lineare Regressionsmodell lässt sich wie folgt darstellen:

y = 0,0001813x -0,0026695 Gl. 13
mit: y =
$$-1 / Pb$$
-Gesamtdeposition (LE) [µg/m²a]
x = Pb-Gehalt im Moos, geostatistische Flächenschätzung [µg/g]

Bei einem Bestimmtheitsmaß von R² = 0,30 (= mittel) werden näherungsweise 30 % der Varianz durch das linearisierte Modell erklärt. Der Gültigkeitsbereich liegt zwischen 2,5 < x < 9,0 μ g/g Pb-Gehalt im Moos.

Im Ergebnis der Residuenanalyse ist deren räumliche Autokorrelation mit einer *Nugget-Sill-Ratio* von 10 % als hoch zu bezeichnen (Abbildung 40). Das exponentielle Variogramm-Modell wurde im Ordinary-Kriging-Verfahren innerhalb einer der *Range* von 420 km angewendet. Die Gesamtdeposition liegt in einem Bereich von 330,70 bis 2147,98 μ g/m²a. Auch hier zeigen die modellierten Pb-Depositionen eine höhere Variationsbreite (LE: 274,72-2864,29 μ g/m²a). Das arithmetische Mittel des RK für die Gesamtdeposition liegt bei 563,05 μ g/m²a (Sd = 176,39). Der Median nach Anwendung des RK liegt bei 520,11 μ g/m²a, der Median der mit LE modellierten Deposition bei 495,87 μ g/m²a, und somit resultiert auch hier ein Verhältnis der beiden Mediane von nahezu 1 (= 1,05). Kernzonen mit Werten über 704,27 μ g/m²a (= 90. Perzentil der RK-Verteilung) liegen im Jahr 2005 in Nord-Rhein-Westfalen und im Süden Bayerns und Baden-Württembergs. Auch hier erfolgt durch RK eine starke Anpassung an die räumlichen Muster der der LE-Modellierung (Abbildung 12).



Abbildung 40: Räumliche Verteilung der atmosphärischen Pb-Deposition in Deutschland (2005), berechnet mittels Regression-Kriging **Schwermetallgruppe B:** Die Regressionsanalyse für die Zusammenhänge zwischen den As- und Ni-Flächenschätzungen der Schwermetallkonzentrationen im Moos und den entsprechenden LE-Depositionsberechnungen ergibt:

Abbildung 41: Regressionsmodell für den Zusammenhang zwischen Flächenschätzungen der As-Gehalte (links) und Ni-Gehalte (rechts) im Moos (Jahr 2005) und entsprechend mit LE modellierter Gesamtdeposition (Mittel der Jahre 2009-2011)



As – Arsen. Die statistische Modellierung beruht auf 409 Wertepaaren. Für den nicht-linearen Zusammenhang zwischen beiden Größen erfolgte zunächst eine Linearisierung durch log-normal-Transformation der atmosphärischen Deposition (Abbildung 41 und Anhang A2.16 / A2.17). Das linearisierte statistische Modell lautet:

$$y = 1.180x + 3.316$$
Gl. 14mit: $y =$ ln As-Gesamtdeposition (LE) [µg/m²a] $x =$ As-Gehalt im Moos, geostatistische Flächenschätzung [µg/g]

Das korrigierte Bestimmtheitsmaß beträgt R² = 0,17. Der Erklärungswert des Modells ist damit nur als schwach einzustufen. Der Gültigkeitsbereich liegt zwischen $0,1 < x < 0,6 \mu g/g$ As-Konzentration im Moos.

Mit einem *Nugget-Sill-Verhältnis* von 1 % erweisen sich die Residuen zwischen Regressionskarte und LE-Modellierung als räumlich hoch autokorreliert (Abbildung 42). Nach Anwendung der Variogramm-Kurve in einer *Range* von 360 km und anschließenden Addition der interpolierten Residuen auf die Regressionskarte liegt die As-Desposition des Jahres 2005 in einem Bereich zwischen 23,91 und 84,36 μ g/m²a. Der arithmetische Mittel des RK für die Gesamtdeposition liegt bei 35,24 μ g/m²a (Sd = 8,46) und der Median bei 33,46 μ g/m²a. Wird die in das RK eingegangene LE-Deposition zum Vergleich herangezogen, so sind die Variationsbreite (LE: 21,43-84,81 μ g/m²a) und der Median (LE: 32,88

 μ g/m²a) nahezu identisch. Beim Vergleich beider räumlicher Verteilungen (Abbildung 15, Abbildung 42) ist wie auch bei Cd und Pb eine sehr starke Anpassung an die LE-Modellierung festzustellen. Die beispielsweise in Sachsen in den Moos-Daten nachgewiesene hohe As-Belastung geht zwar erkennbar, aber nur sehr schwach in das RK der As-Gesamtdeposition ein.



Abbildung 42: Räumliche Verteilung der atmosphärischen As-Deposition in Deutschland (2005), berechnet mittels Regression-Kriging

Ni – Nickel. Für dieses Modell stehen 409 Wertepaare zur Verfügung. Durch logarithmische Transformation der Ni-Deposition wurde der nicht-lineare Zusammenhang zunächst annähernd linearisiert (Abbildung 41 und Anhang A2.18 / A2.19). Das entsprechende Regressionsmodell lautet:

y = 0.3	3287x	+ 5.0611	Gl. 1	5
mit:	у	=	ln Ni-Gesamtdeposition (LE) [µg/m²a]	
	Х	=	Ni-Gehalt im Moos, geostatistische Flächenschätzung [µg/	/g]

Die erklärte Varianz durch das Modell beträgt 24 % (R 2 = 0,24 = "mittel"). Der Gültigkeitsbereich des Modells kann mit 0,7 < x < 2,4 µg Ni /g im Moos beziffert werden.

Bei Nickel beträgt das *Nugget-Sill-Verhältnis* 1% und die *Range* 385 km (Abbildung 43). RK führt zu Ni-Depositionen in Deutschland (2005), die in einem Bereich zwischen 161,60 und 604,84 µg/m²a liegen. Der arithmetische Mittelwert für die Gesamtdeposition beträgt 251,25 µg/m²a (Sd = 62,33), der Median 237,66 µg/m²a. Die mit LE modellierte Ni-Deposition schwankt in einem größeren Variationsbereich zwischen 143,20 und 609,46 µg/m²a. Der Quotient zwischen den Medianen RK / LE liegt bei 1,02. Auch der Vergleich beider räumlicher Verteilungen (Abbildung 43, Abbildung 18) zeigt die starke Anpassung durch das RK an die LE-Modellierung.





2.8.3 Diskussion und Schlussfolgerungen

Die Quantifizierung der statistischen Beziehungen zwischen LE-Modellrechnung sowie entsprechenden Konzentrationen im Moos ergab Modelle mit schwachen (As) bis mittleren (Cd, Ni, und Pb) Bestimmtheitsmaßen zwischen $0,17 \le R^2 \le 0,30$. Für die statistische Modellbildung erwiesen sich insbesondere die geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallanreicherungen im Moos auch bei bisher nicht untersuchten Metallen (As, Ni) als geeignet. Bei künftigen Moos-Kampagnen sollte daher weiterhin auf die räumliche Verallgemeinerbarkeit der Biomonitoringdaten mit geostatistischen Methoden geachtet werden. Im Falle von As sollte im Moos-Monitoring 2015/16 untersucht werden, ob die für das Jahr 2005 in Sachsen zu konstatierenden Abweichungen der Konzentrationen im Moos zu den Depositionsberechnungen nur eine vorrübergehende Erscheinung war bzw. wie stark sich die zeitliche Variabilität auf die Güte der Regressionsmodelle auswirkt.

Die hohen räumlichen Autokorrelationen der Residuen, die bereits durch Schröder et al. (2011) für EMEP und die Moos-Daten des Jahres 2005 (Cd, Pb) nachgewiesen wurden, konnten hier für LE bzw. As, Cd, Ni und Pb bestätigt werden. Dies zeigt, dass die Regressionsmodelle zumindest zum Zwecke des Regression-Kriging eine ausreichende Güte ($R^2 > 0,17$) aufwiesen. Für Depositionsberechnungen allein aus den Moosdaten haben alle 4 Modelle allerdings eine zu geringe Erklärungskraft. Dass die Resultate des Regression-Kriging sich bei allen 4 Schwermetallen stark an die LE-Modellierung angleichen, bedeutet, dass durch die Berücksichtigung der räumlich interpolierten Residuen der Einfluss weiterer unbekannter Störgrößen, die die Schadstoffkonzentrationen im Moos auch mitbestimmen, in Abhängigkeit von der Höhe der Residuen in die Depositionsberechnung einfließt . Der wesentliche Effekt der Datenintegration durch RK ist die Berechnung höheraufgelöster Karten der atmosphärischen Deposition (RK: 3 km x 3 km, LE 25 km x 25 km).

2.9 Synoptischer Vergleich

Im Folgenden werden die statistischen Beziehungen zwischen den Schwermetallgehalten in Moosen, Nadeln, Blättern und den CTM (LE, EMEP) zusammenfassend gegenübergestellt. Ferner werden 5 unterschiedliche Ansätze der Bestimmung atmosphärischer Deposition verglichen.

2.9.1 Korrelationsanalytische Vergleiche

Die Gegenüberstellung der Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen der LE-Depositionsberechnung für 8 Schwermetalle (Deutschland, 2009-2011) und den gemessenen Schwermetallkonzentration im Moos (Deutschland, 2005) bzw. entsprechenden geostatistischen Flächenschätzungen verdeutlicht Abbildung 44. Danach sind die Korrelationen zwischen der LE-Gesamtdeposition und den entsprechenden As-, Cd-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalten im Moos bei den geostatistischen Flächenschätzungen i.d.R. höher als bei den ursprünglich gemessenen Schwermetallgehalten im Moos. D.h. die Varianz der geostatistischen Berechnungen und der daraus abgeleiteten Medianwerte in jedem Depositionsfeld entspricht der LE-Modellierung eher als die Varianz der Messwerte in jedem Depositionsfeld. Die stärksten (= mittleren) Korrelationen zu den geostatistisch berechneten Konzentrationen wiesen As ($r_s = 0,48$) und Pb auf ($r_s = 0,49$), schwächere (= schwache) Korrelationen Ni ($r_s = 0,34$), Cd ($r_s = 0,37$), Cu ($r_s = 0,26$), und V ($r_s = 0,31$) (alle signifikant mit p < 0,01).

Abbildung 44: Korrelationskoeffizienten nach Spearman (r_s) für die Beziehung zwischen LE-Depositionsberechnung (2009-2011) und gemessener Schwermetallkonzentration im Moos des Jahres 2005 (links) bzw. geostatistischer Flächenschätzung der Schwermetallkonzentration im Moos des Jahres 2005 (rechts)



Abbildung 45: Korrelationskoeffizienten nach Spearman (r_s) für die Beziehung zwischen LE-Depositionsberechnung und geostatistischer Flächenschätzung der Schwermetallkonzentration im Moos gruppiert nach Trocken-, Nass- und Gesamtdeposition



Für Vergleiche der räumlichen Muster der Modellierungs- und Monitoringdaten waren daher die geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallgehalte im Moos vergleichsweise besser geeignet. Dies galt nicht nur für die Elemente der Gruppe A, sondern auch für die überwiegende Anzahl der Schwermetalle der Gruppe B. Die Korrelationen zwischen LE und den geostatistisch berechneten Schwermetallgehalten im Moos bei der trockenen LE-Deposition sind i.d.R. höher als bei der nassen Deposition (Abbildung 45), d.h. es bestehen stärkere Unsicherheiten bei der Schätzung der nassen Deposition, welche für jedes Schwermetall anhand der Konzentrationen im Niederschlag aus einer Kombination von gemessenen und modellierten atmosphärischen Depositionen und meteorologischen Daten ermittelt wird (siehe Teilbericht 1 zu diesem Projekt).

Eine vergleichende Gegenüberstellung der berechneten Korrelationen zwischen Modellierungs- und Bioindikationsdaten zeigt Tabelle 27. Diese enthält nur signifikante Korrelationen (p < 0,05) sowohl in Bezug auf EMEP als auch auf LE. Zwischen den Depositionsmodellierungen (LE, EMEP) und den Moos-Daten des Surveys 2005/06 bestehen gegenüber den anderen hier betrachteten Erhebungen die höchsten signifikanten Zusammenhänge mit Korrelationskoeffizienten nach Spearman r_s zwischen 0,31 und 0,81. LE zeigt in 5 von 8 Fällen stärkere Zusammenhänge zu den Moos-Daten als EMEP. Die Bioindikationsdaten der UPB (Cd, Pb, Deutschland, 2007-2011) weist in allen 7 Fällen höhere signifikante Korrelationen (Kendall) zu LE und niedrigere zu EMEP auf (r_{τ} = 0,29 bis 0,64). Die Blatt-/

Tabelle 27:Vergleich der Korrelationskoeffizienten für die Beziehung zwischen Cd- und Pb-Gehalten
in unterschiedlichen Biota und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und
Pb-Gesamtdeposition über Deutschland bzw. Europa

Bioindikationsmessnetz / Probenart	Element	r _(LE)	r _(EMEP)
European Moss Survey (2005/2006)			
Moos, gemessen (Deutschland)	Cd	0,31	0,27
Moos, gemessen (Europa)	Cd	0,66	0,59
Moos, gemessen (Deutschland)	Pb	0,35	0,31
Moos, gemessen (Europa)	Pb	0,56	0,65
Moos, geostatistische Flächenschätzung (Deutschland)	Cd	0,37	0,43
Moos, geostatistische Flächenschätzung (Europa)	Cd	0,81	0,70
Moos, geostatistische Flächenschätzung (Deutschland)	Pb	0,49	0,44
Moos, geostatistische Flächenschätzung (Europa)	Pb	0,42	0,57
Umweltprobenbank des Bundes (2007-2011)			
Fagus sylvatica	Cd	0,29	0,23
Populus nigra 'Italica'	Cd	0,36	0,26
Picea abies (Naturnahe Ökosystemtypen)	Cd	0,49	0,36
Picea abies (Forst-Ökosystemtypen)	Cd	0,64	0,40
Fagus sylvatica	Pb	0,44	0,43
Populus nigra 'Italica'	Pb	0,63	0,44

Bioindikationsmessnetz / Probenart	Element	r _(LE)	r _(EMEP)
Picea abies	Pb	0,29	0,27
ICP Forests Level II (2007-2011)			
Fagus sylvatica	Cd	-0,03	0,21
Picea abies	Cd	0,21	0,28
Pinus sylvestris	Cd	0,34	0,08
Fagus sylvatica	Pb	0,26	0,40
Picea abies	Pb	0,19	0,30
Pinus sylvestris	Pb	0,18	0,20

fett = im Vergleich höhere signifikante Korrelationen mit p < 0,05, r = Korrelationskoeffizient nach Spearman (European Moss Survey) und nach Kendall (Umweltprobenbank des Bundes, ICP Forests Level II)

Nadelspiegelwerte des ICP Forests Level II (Cd, Pb, Deutschland, 2007-2011) zeigen ein entgegengesetztes Bild: Hier waren nach räumlicher Verknüpfung mit den modellierten Depositionsfeldern in 6 von 7 Fällen stärkere Korrelationen zu EMEP festzustellen ($r_{\tau} = 0,29$ bis 0,64). Insgesamt waren damit 12 von 20 signifikanten Korrelationen zu LE höher als zu EMEP.

2.9.2 Vergleich unterschiedlicher Depositionsschätzungen

Für den Vergleich der 5 unterschiedlichen Ansätze zur Bestimmung der atmosphärischen Deposition wurden verwendet:

- ▶ mit LE und EMEP modellierte atmosphärische Depositionen (Cd, Pb, 2005, Deutschland),
- standortbezogene Depositionsschätzungen mittels der in Kapitel 2.8 auf der Basis von LE entwickelten Regressionsmodelle sowie zweier weiterer aus der Literatur übernommener Regressionsmodelle nach Schröder et al. (2011).

2.9.3 Flächenschätzungen der atmosphärischen Deposition mittels Regression-Kriging

Für die standortbezogenen Depositionsschätzungen erfolgte zunächst eine Umrechnung der Konzentrationswerte an den 769 Moos-Standorten 2005/06 in entsprechende Cd- und Pb-Depositionsraten nach den Gl. 12 und Gl. 13 (Bezug: LE). Auf dieselben Standorte wurden die folgenden Regressionsmodelle nach Schröder et al. (2011, Gl. 16 und 17) angewendet, welche sich auf europaweite Flächenschätzungen der Cd- und Pb-Gehalte im Moos (European Moss Survey 2005/2006) sowie auf entsprechende EMEP-Depositionsdaten stützen:

$$y = 0,8593x + 4,8074$$
Gl. 16mit: $y =$ ln Cd Gesamtdeposition (EMEP) [µg/m²a] $x =$ ln Cd im Moos, geostatistische Flächenschätzung [µg/g]

y = 0,7	7976x	+ 5,5981		Gl. 17
mit:	у	=	ln Pb Gesamtdeposition (EMEP) [µg/m²a]	
	х	=	ln Pb im Moos, geostatistische Flächenschätzung [μξ	g/g]

Der anschließende synoptische Vergleich fußt auf statistischen Verteilungsgrößen (Mittelwert, Median, Min, Max, Standardabweichung) der Deposition (Abbildung 46, Tabelle 28) sowie teilweise inferenz-statistischen Kennwerten (Wilcoxon-Test).

Cd - *Cadmium.* Die Mediane der 5 Depositionsberechnungen liegen zwischen 19,45 µg/m ²a (LE) und 41.29 µg/m ²a (EMEP). Das Regressionsmodell nach Schröder et al. (2011, Gl. 16) bezogen auf das EMEP Modell nimmt mit 31,36 µg/m ²a eine Mittelstellung ein. Die Anwendung der Gl. 12, welche sich auf die LE-Modellierung bezieht, führt mit 20,37 µg/m ²a zu einem Medianwert nahe der LE-Modellierung (19,45 µg/m ²). Für letztere sind nach dem Wilcoxon-Vorzeichen-Rangtest beide Verteilungen und damit auch die Medianwerte als gleich anzusehen (p-Wert > 0,05). Mit einem Median 20,60 µg Cd /m ²a liegen auch die Ergebnisse des Regressions-Gl. 12 als die Mediane der EMEP-Modellierung bzw. der darauf bezogenen Regressions-Gl. 12 als die Mediane der EMEP-Modellierung bzw. dem Regressionsmodell von Schröder et al. (2011, Gl. 16). Die höchsten Varianzen finden sich bei den Cd-Depositionen der EMEP-Modellierung bzw. der nach Gl. 12 (aus LE abgeleitet) auftritt. D.h. LE und die daraus abgeleiteten Depositionen führen im Vergleich zu EMEP zu einer Glättung der räumlich verteilten Deposition.

Element	Methode	Einheit	Min	Max	Median	Mean	SD
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005, gewichtetes Mittel (LE)	μg/m² a	9,65	81,45	19,45	20,14	6,18
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (EMEP)	µg/m² a	19,59	98,13	41,29	44,15	14,55
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (berechnet nach Gl. 12)	µg/m² a	17,17	36,02	20,37	21,10	2,43
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (berechnet nach Schröder et al 2011, Gl. 14)	μg/m² a	10,91	194,11	31,36	34,09	16,52
Cd	Cd-Gesamtdeposition 2005 (Regression-Kriging)	µg/m² a	12,09	60,44	20,60	32,30	4,79
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005, gewichtetes Mittel (LE)	µg/m² a	274,72	2864,29	495,87	524,59	212,72
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (EMEP)	µg/m² a	634,72	3244,38	1660,33	1692,04	539,45
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (berechnet nach Gl. 13)	µg∕m² a	453,70	945,07	511,93	536,75	76,48
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (berechnet nach Schröder et al 2011, Gl. 15)	µg/m² a	310,08	5158,42	764,68	876,09	462,52
Pb	Pb-Gesamtdeposition 2005 (Regression-Kriging)	µg/m² a	330,70	2147,98	520,11	563,05	176,39

Tabelle 28:Kennwerte von Flächenschätzungen der Cd- und Pb-Deposition in Deutschland (5 Me-
thoden, Bezugsjahr 2005)

SD = Standardabweichung



Abbildung 46: Vergleich der Zentraltendenzen (Medianwerte) der Cd- und Pb-Gesamtdeposition $(\mu g/m^2 a)$, für das Jahr 2005 jeweils mit fünf unterschiedlichen Methoden berechnet

Erläuterungen: Median der Depositionsschätzungen mittels CTM (LE, EMEP), Median der Regressionsmodellierungen gemäß der Gl. 12 / 13 (Kapitel 2.8), Median der Regressionsmodellierungen gemäß Gl. 16 / 17 (Schröder et al. 2011); Median der Regression-Kriging-Flächenschätzung (Kapitel 2.8)

Pb – *Blei.* Für Blei ergibt sich eine ähnliche Rangfolge der Medianwerte der modellierten Pb-Depositionen (Tabelle 28): EMEP (1660,33 µg/m²a) > Gl. 17 nach Schröder et al. 2011 (764,68 µg/m²a) > Regression-Kriging (520,11 µg/m²a) > Regressions-Gl. 13 (511,93 µg/m²a) > LE (495,87 µg/m²a). Wie für Cadmium liefert der Wilcoxon-Test für die beiden verbundenen Stichproben (LE, Gl. 13), dass diese signifikant gleich verteilt sind ($\alpha = 0,05$). Die höchsten Varianzen zeigt auch bei Pb wieder die EMEP-Modellierung bzw. die mit Gl. 17 (aus EMEP abgeleitet) berechneten Depositionen. **Diskussion und Schlussfolgerungen**. Generell kann aus dem synoptischen Vergleich keine Überschätzung der Deposition durch EMEP oder Unterschätzung durch LE in Deutschland sicher abgeleitet werden. Der Befund, dass die Berechnungen aufgrund der Regressionsgleichungen nach Schröder et al. (2011) eine Mittelstellung zwischen LE und EMEP einnehmen, könnte zumindest die These einer Überschätzung durch EMEP in Deutschland aber stützen, wenn man voraussetzt, dass die auf Basis der europaweiten Cd- und Pb-Gehalten im Moos sowie entsprechenden EMEP-Depositionsmodellierungen entwickelten Modelle von der europäischen auf die bundesweite Ebene übertragbar ist. Dass die Unterschiede so deutlich ausfallen, spricht eher für die These der Überschätzung durch EMEP in Deutschland. Dass beide Modelle vermutlich unterschiedliche Emissionsquellen bei der Modellierung berücksichtigen, wurde bereits in Kapitel 2.3 diskutiert. Dabei muss insbesondere bei LE zumindest die Möglichkeit nicht berücksichtigter oder unterschätzter Emissionsquellen als Faktor für eine mögliche Unterschätzung der Deposition in Betracht gezogen werden.

Die Untersuchungen legen schlussfolgernd die Empfehlung nahe, die Erfassung und Bewertung atmosphärischer Stoffeinträge methodisch breiter und tiefer abzusichern. Dies gilt insbesoon-dere für die räumlich differenzierte Validierung und die Spezifikation der Exposition für Ökosystemty-pen. Hierzu bedarf es der Verwendung identischer Daten für die Emissionen und die Meteorologie zur Depositionsmodellierung mit chemischen Transportmodellen wie EMEP und LOTOS-EUROS. Für die damit abgebildeten Zeiträume gültige Daten der atmosphärischen Deposition, die mit technischen Sammlern und mit Biomonitoring-Verfahren methodisch jeweils harmonisiert erhoben wurden, müss-ten verwendet werden. Für diese durch den integrativ-komplementären Ansatz ermittelten Expositionsdaten sollte geprüft werden, ob diese sich für die in den Ökosystemintegritätsvorhaben des UBA klassifizierten und kartierten Ökosysteme (Jenssen et al. 2013, 2015; Nickel et al. 2015, 2016, 2017 a, 2017 b; Schröder et al. 2015, 2016, 2017) fachlich sinnvoll spezifizieren lasssen.

3 Erheblichkeitsbeurteilung

3.1 Einführung

Im Berichtsteil 1 des Forschungsvorhabens "Auswirkungen der Schwermetall-Emissionen auf Luftqualität und Ökosysteme in Deutschland. Quellen, Transport, Eintrag, Gefährdungspotenzial" und in Kapitel 2 seines zweiten Berichtsteiles werden Schwermetalleinträge in die Ökosysteme Deutschlands mit Hilfe von chemischen Transportmodellen (EMEPS, LOTOS-EUROS) und anhand von Bioindikationsverfahren quantifiziert. In diesem vorliegenden dritten Kapitel des zweiten Teilberichts werden Depositionsraten hinsichtlich ihrer Wirkungen und der Einhaltung gesetzlicher Vorschriften bzw. Umweltqualitätsziele beurteilt. Da Schwermetalle über große Strecken und Ländergrenzen überschreitend in der Atmosphäre transportiert werden können, spielen neben den nationalen auch internationale Regelungen und Bewertungsmethoden eine Rolle.

Das Risikopotenzial erhöhter Schwermetallkonzentrationen in der Luft, in Lebensmitteln und Trinkwasser für die menschliche Gesundheit ist ebenso seit langem bekannt, wie das der Schwermetallanreicherungen für aquatische und terrestrische Ökosysteme. Um schädlichen Wirkungen vorzubeugen und Gefahren abzuwenden, regeln in Deutschland insbesondere das Bundesimmissionsschutzgesetz und nachfolgende Verordnungen (BImSchV), untersetzt durch die TA Luft, die Begrenzung der Schwermetallemissionen (Blei, Cadmium, Quecksilber, Arsen, Nickel) und -immissionen. Die 39. BIm-SchV setzt die EU-Richtlinien 2008/50/EG (EU 2008) und 2004/107/EG (EU 2004) um.

Die Richtlinie 2008/50/EG (EU 2008) bestätigt den bereits 1999 in der Richtlinie 1999/30/EG (EU 1999) festgelegten Grenzwert für Blei von 0,5 μ g m⁻³ als Jahresmittel. Bis zum 10. Juni 2010 war die neue Richtlinie in den Mitgliedstaaten in nationales Recht umzusetzen bzw. bis dahin einzuhalten. In Deutschland erfolgte die Umsetzung mit der 39. Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes¹⁰.

Die EU hat Ende 2013 ein neues Maßnahmenpaket für saubere Luft in Europa vorgelegt, mit dem die bestehenden Rechtsvorschriften aktualisiert werden sollen. Ziel ist, den Ausstoß von Luftschadstoffen weiter zu verringern, damit Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit und die Umwelt reduziert oder gänzlich vermieden werden. Bestandteil des Pakets ist ein Programm "Saubere Luft für Europa", mit dem zunächst die Einhaltung der bestehenden Ziele gesichert werden soll. Darüber hinaus sind auch neue Luftqualitätsziele für die Jahre 2020 und 2030 formuliert. Das für 2020 angestrebte Ziel dieser Strategie ist, die Luftverschmutzung so weit zu vermindern, dass von ihr keine inakzeptablen Auswirkungen für Mensch und Umwelt mehr ausgehen. Mit der Erheblichkeitsbeurteilung in diesem Projekt soll auch eingeschätzt werden, ob dieses Ziel mit den bestehenden Regelungen erreicht werden kann.

Eine weitere internationale, völkerrechtlich verbindliche Regelung liegt mit dem Schwermetallprotokoll der CLRTAP (auch "Århus- Protokoll zu Schwermetallen") vor. Es trat Ende 2003 in Kraft und wurde im Dezember 2012 revidiert und den modernen Anforderungen an Industrieanlagen angepasst. In diesem Protokoll werden Emissionen von Pb, Cd, Hg in die Luft geregelt, z.B. durch technische Standards für Industrien, die Schwermetalle emittieren. Außerdem reglementiert es den Einsatz von Blei in Benzin oder von Cadmium und Quecksilber in bestimmten Produkten. Die Wirkungsbewertung von Schwermetalleinträgen erfolgt in der CLRTAP mit dem Critical-Loads-Ansatz, der sich bereits seit langem für die Bewertung der Einträge eutrophierenden Stickstoffs oder von Säure in Ökosysteme bewährt hat. Diese Methode ermöglicht eine flächendeckende Risikobewertung für große Gebiete (z. B. für Deutschland, die EU oder die EMEP-Region). Die für die Risikobewertung (Überschreitung der Cri-

 $^{10}\,http://www.umweltbundesamt.de/themen/luft/regelungen-strategien/luftreinhaltung-in-der-eu$

tical Loads) erforderliche Depositionsermittlung erfolgt durch Messung und Modellierung im EMEP-Programm (Teilbericht 1 dieses Projektes) und wird durch Biomonitoring mit Moosen untersetzt (Kapitel 2 dieses zweiten Teilberichtes).

Neben den Regelungen zum Immissionsschutz sind in Deutschland bodenschutzrechtliche Regelungen relevant, die den Eintrag von Schwermetallen einschließlich atmosphärischer Deposition begrenzen, wenn die Konzentrationen im Boden bereits ein bestimmtes Niveau erreicht haben. Schließlich enthält die Wasserrahmenrichtlinie (European Commission 2013) für prioritäre Stoffe, darunter die Schwermetale Blei, Cadmium, Nickel und Quecksilber. Diese Grenzkonzentrationen sind bei der Beurteilung von Schwermetalleinträgen aus der Atmosphäre einzubeziehen, auch wenn daraus nicht direkt kritische Depositionen abgeleitet werden können.

In den nationalen und internationalen Regelwerken erfolgt die Bewertung oder Begrenzung von Schwermetalleinträgen meist getrennt nach Eintragspfaden (Luft, Wasser, Boden), nach Schutzgütern (Nahrungsmittel, Trinkwasser, Ökosysteme) oder auch auf die Emittenten bezogen. In den nachfolgenden Kapiteln werden für jedes untersuchte Schwermetall die entsprechenden Regelwerke zur Belastungsbewertung herangezogen und kommentiert.

Hinsichtlich der anlagenbezogenen Emissionen ist die beste verfügbare Technik (best available technique, BAT) der Vergleichsmaßstab. Dafür existierende Regelungen sind nicht Gegenstand der hier durchgeführten Erheblichkeitsbeurteilung von Schwermetalleinträgen.

3.2 Zusammenstellung von Beurteilungswerten für Schwermetalle

Die im Folgenden betrachteten Regelungen und Empfehlungen beinhalten unterschiedliche Kategorien von Beurteilungswerten, die sich hinsichtlich ihres Schutzzweckes, des jeweiligen Schutzniveaus und Schutzzieles unterscheiden (Kapitel 3.2.3). Deshalb wird in dieser Studie der übergreifende Begriff "Beurteilungswert" benutzt, jedoch bei Zitaten aus den Regelwerken die dortige Nomenklatur übernommen.

Wir unterscheiden im Folgenden vorsorgeorientierte Beurteilungswerte und solche, die der Gefahrenabwehr dienen: Vorsorgeorientierte Beurteilungswerte kennzeichnen Belastbarkeitsgrenzen (Konzentrationen in Umweltmedien oder Stoffflüsse), bei deren Unterschreiten keine Besorgnis einer signifikanten Beeinträchtigung der Ökosysteme und ihrer Funktionen und Leistungen für den Menschen besteht. Sie gelten allgemein, das heißt über den Einflussbereich konkreter Anlagen, Projekte oder Bewirtschaftungsmaßnahmen hinaus, und sie sind unabhängig von Nutzungsansprüchen. Der Gefahrenbegriff ist im Recht immer mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit des Eintretens erheblicher, schädlicher Veränderungen verknüpft. Beurteilungswerte, die der Gefahrenabwehr dienen, erlauben prinzipiell höhere Schadstoffkonzentrationen oder -einträge als vorsorgeorientierte. Sie dienen in der Regel der Beurteilung konkreter (auch geplanter) Anlagen, Projekte oder Bewirtschaftungsmaßnahmen und sind nutzungsspezifisch abgeleitet (z.B. Prüfwerte und Maßnahmewerte im Bodenschutz).

3.2.1 Vorgaben von Beurteilungswerten aus gesetzlichen Regelungen und Empfehlungen

Zum Schutz von terrestrischen Ökosystemen und der menschlichen Gesundheit sind Beurteilungswerte für den Eintrag von Luftschadstoffen in folgenden Verordnungen, Richtlinien und Empfehlungen enthalten:

39. BlmSchV (2010)

Die Neununddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen vom 2. August 2010 BGBl. I S. 1065) ist rechtlich verbindlich. Sie dient der Umsetzung europäischer Vorgaben und ihrer nationalen Umsetzung im Rahmen des BImSchG. Konkret sind das die Richtlinie 2008/50/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft für Europa (ABl. L 152 vom 11.6.2008, S. 1) und die Richtlinie 2004/107/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 15. Dezember 2004 über Arsen, Cadmium, Quecksilber, Nickel und polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe in der Luft (ABl. L 23 vom 26.1.2005, S. 3). Als Schutzgüter sind hier neben Nutzpflanzen ausdrücklich auch wildwachsende Pflanzen und besonders empfindliche Ökosysteme berücksichtigt (§1 Satz 17).

Es wird ein Immissionsgrenzwert für Blei zum Schutz der menschlichen Gesundheit vorgegeben. Außerdem werden Immissionszielwerte für Arsen, Cadmium und Nickel zum Schutz von Mensch und Umwelt vorgegeben, die nach Möglichkeit ab dem 01. Januar 2013 erreicht werden sollten. Entsprechend § 23 bedeutet "nach Möglichkeit", dass dies mit verhältnismäßigen Maßnahmen, …, die keine unverhältnismäßig hohen Kosten verursachen, möglich ist".

Diese Zielwerte,, die aus dem EU-Positionspapier (Europäische Kommission (2000) (Kap. "EU Position Paper 2000" unten) übernommen wurden, basieren ausschließlich auf humantoxikologischen Daten (Kleihauer et al. 2012, S. 152) und sind daher als Beurteilungswert für die Empfindlichkeit von Umweltkompartimenten nur bedingt geeignet.

EU Position Paper (2000)

Das "Position Paper" "Ambient air pollution by As, Cd and Ni compounds" (Europäische Kommission 2000) wurde durch eine Expertengruppe im Auftrag der Europäischen Kommission erarbeitet. Darin ist der für die Setzung europäischer Luftreinhaltestandards relevante Stand des Wissens zusammengestellt. Dieses Papier diente als eine wissenschaftliche Basis (und rechtlich unverbindliche Empfehlung) für europäische und damit auch deutsche Regelwerke. Es werden Schwellen "limit values" auf der Basis aktueller Risikoabschätzungen vorgeschlagen.

Die Arbeitsgruppe ging davon aus, dass schädliche Wirkungen von Schwermetallen auf die Vegetation in erster Linie über den Boden erfolgen, eine Aufnahme der Luftschadstoffe aus der Luft spiele nur direkt am Entstehungsort der Schadstoffe eine Rolle.

Es werden Immissions-Zielwerte (Konzentrationen in der Feinstaub-Fraktion PM10) für Arsen, Cadmium und Nickel benannt. Für Cadmium wird ein limit value für die Deposition vorgeschlagen, der mit Hilfe von Pfadbetrachtungen (direkt Atmosphäre – Vegetation und indirekt Atmosphäre Boden – Vegetation) abgeleitet wurde. Dabei handelt es sich um Vorschläge auf der Basis von Expertenschätzungen, die allein anhand humantoxikologischer Daten abgeleitet wurden. Die Arbeitsgruppe geht davon aus, dass die humantoxikologischen Schwellenwerte auch die Umwelt hinreichend schützen, weil der empfindlichste Pfad betrachtet wird.

TA Luft (2002)

Die TA Luft (Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes–Immissionsschutzgesetz -Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft vom 24. Juli 2002) konkretisiert die Anforderungen, die Behörden bei der Anlagengenehmigung an die Anlagenbetreiber zu stellen haben. Die entsprechende Vorarbeit für die aktuellen Anforderungen an einzelne Stoffe hat der Unterausschuss "Wirkungsfragen" der Bund-/Länder-Arbeitsgemeinschaft für Immissionsschutz (LAI) Grundlagen für eine Bewertung vorgelegt (LAI 1996, 2000).

Für die aus dem Bodenschutzrecht (s. unten) übernommenen "Depositionswerte" stützt man sich auf den Bericht einer gemeinsamen Arbeitsgruppe des Länderausschusses für Immissionsschutz (LAI) und der Bund-/Länderarbeitsgemeinschaft Boden (LABO). Die Grundlagen bildeten die Prüf- und Maßnahmenwerte der BBodSchV, für die Bachmann et al. (1997) die fachlichen Grundlagen schufen.

Prinz und Bachmann (1999) beschrieben die Ableitung von Depositionswerten für Schwermetalle für die Anwendung in der TA Luft ("niederschlagsbegrenzende Werte"). Es werden Böden von Siedlungsflächen sowie landwirtschaftliche Nutzflächen berücksichtigt. Die akzeptablen Depositionsraten werden unter Berücksichtigung der Differenz zwischen den 90-Perzentilen der Hintergrundwerte und Maßnahme- bzw. Prüfwerten für die Schwermetallkonzentration im Boden, einer festgelegten Bodentiefe und der Bodendichte berechnet. Obwohl die TA Luft entsprechend in Nr. 1 Abs. 1 sowohl der Gefahrenabwehr als auch der Vorsorge dienen will, zielen die festgelegten Werte, die Umweltgüter zum Gegenstand haben, lediglich auf den Schutz vor Schäden ab. Sie sind mithin der Gefahrenabwehr zuzurechnen und nicht vorsorgeorientiert.

Zudem werden die Immisionsgrenzwerte für Arsen, Blei, Cadmium, Nickel, Quecksilber und Thallium sowie deren anorganische Verbindungen in der TA Luft auf die Prüf- und Maßnahmewerte der BBodSchV, Anhang 2, mithin auf humantoxikologische Wirkungsschwellen zurückgeführt. Sie sind somit weder effektbasiert auf natürliche Ökosysteme oder deren Bestandteile ausgerichtet, noch sind sie als vorsorgeorientierte Beurteilungswerte zu verstehen.

Die TA Luft (2002) enthält zudem einen Immissionswert für Blei im PM10 von 0,5 μ g/m³ und Cadmium im PM10 von 0,02 μ g/m³, jeweils im Jahresmittel.

Gegenwärtig wird eine Änderungsfassung vorbereitet.

Wirkungsbewertung von Schwermetallen in der CLRTAP

Critical Loads für Cd, Pb, Hg wurden bereits für die gesamte EMEP-Region berechnet. Sie dienen der Politikberatung, insbesondere der Prüfung und Begründung, ob weitere Emissionsminderungen erforderlich sind. Sie sind bislang nicht als verbindliche Immissions- bzw. Depositionswerte ausgestaltet.

Die Critical Loads geben die Gesamteintragsrate (Deposition und Bewirtschaftung) an, unterhalb derer nachteilige Wirkungen auf Ökosysteme und die menschliche Gesundheit (Pfade Atmosphäre – Boden – Grundwasser zur Trinkwassernutzung und Atmosphäre – Boden – Nahrungsweizen (nur für Cd)) nach aktuellem Wissenstand auch langfristig ausgeschlossen werden können. Folglich wird bei Einhaltung der Critical Loads eine Risikominimierung unterhalb der klassischen Gefahrenschwelle erreicht, es handelt sich mithin um sehr vorsorgeorientierte Beurteilungswerte.

Im Focus des Critical Load-Konzeptes stehen Stoffumsetzungen in Ökosystemen. Bei der Berechnung der Critical Load-Werte werden ökosystemspezifische Besonderheiten (Boden, Klima, Nutzung etc.) berücksichtigt. Daraus ergibt sich, dass es nicht "den Critical Load", sondern jeweils eine Spanne von Werten gibt, die eine flächendeckende, regionalisierte Darstellung der Empfindlichkeit der Ökosysteme gegenüber Schwermetallen ermöglicht.

Anders als bei Critical Loads für Säure und eutrohpierenden Stickstoff werden auch landwirtschaftliche Flächen betrachtet und zwar in ihrer Eigenschaft sowohl als Ökosysteme als auch als Flächen, auf denen humantoxikologische Werte einzuhalten sind. Critical Loads, die auf den Schutz der Ökosysteme abzielen, werden im Folgenden mit $CL(M)_{eco}$ bezeichnet. Critical Loads, die auf den Schutz der menschlichen Gesundheit abzielen, z. B. auf den Schutz des Trinkwassers, werden mit $CL(M)_{drink}$ und solche, die auf den Schutz von Nahrungsmitteln für den Menschen abzielen, mit $CL(M)_{food}$ abgekürzt, wobei das (M) für Schwermetall steht und durch das jeweilige Elementzeichen (Cd, Pb, Hg,...) ersetzt werden kann.

Die Ermittlung der $CL(M)_{eco}$ basiert ausschließlich auf ökotoxikologischen Schwellenwerten. Das heißt, die $CL(M)_{eco}$ werden effektbasiert ermittelt. Experimentell ermittelte Null-Effekt-Schwellenwerte (NOEC oder PNEC) gehen als "Critical Limits" in die Berechnung der $CL(M)_{eco}$ ein. Für die $CL(M)_{drink}$ wurden international abgestimmte kritische Konzentrationen im Trinkwasser bzw. für $CL(Cd)_{food}$ im Nahrungsweizen verwendet (Details Kapitel 0).
Im Vorfeld der Revision des Schwermetallprotokolls wurden CL(M) von vielen europäischen Ländern ermittelt. So lagen deutschlandweit CL(Pb, Cd, Hg) für Gesamteinträge in die Acker-, Wald- und Offenlandflächen vor (Nagel et al. 2000, Nagel et al. 2008).

BBodSchV (1999; 2015)

Mit dem Inkrafttreten des Gesetzes zum Schutz vor schädlichen Bodenveränderungen und zur Sanierung von Altlasten (Bundes-Bodenschutzgesetz – BBodSchG) (BGBl. I 1998, zuletzt geändert 2015) wird die Bundesregierung ermächtigt, Anforderungen für die Untersuchung und Bewertung von schädlichen Bodenveränderungen zu erlassen.

Zu diesem Zweck ist die Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) (GBBl. I S. 1554 vom 12. Juli 1999, zuletzt geändert durch Art. 102 der Verordnung vom 31. August 2015 (GBl. I S. 1474) erlassen worden.

Die BBodSchV enthält in ihrem Anhang 2 Prüfwerte und Maßnahmenwerte sowie folgende vorsorgeorientierte Beurteilungswerte (zu den Definitionen vergleiche BBodSchG 1998/2015):

- ► Vorsorgewerte für die Metalle Blei, Cadmium, Chrom, Kupfer, Nickel, Quecksilber und Zink
- Zulässige Zusatzbelastungen, wenn Vorsorgewerte bereits erreicht sind. Das sind zusätzliche jährliche Frachten für Blei, Cadmium, Chrom, Kupfer, Nickel, Quecksilber und Zink über alle Eintragspfade nach § 8 Abs. 2 Nr. 2 des Bundes-Bodenschutzgesetzes, also nicht explizit für den Eintrag aus der Luft.

Vorsorgewerte i. S. des BBSchG (1998/2015) sind kritische Konzentrationen von Schadstoffen im Boden, bei deren Überschreitung unter Berücksichtigung von geogenen oder großflächig siedlungsbedingten Schadstoffgehalten in der Regel davon auszugehen ist, dass die Besorgnis einer schädlichen Bodenveränderung besteht. Die Vorsorgewerte zielen auf den Schutz des Bodens ab, insbesondere auf die Abwehr und die Vermeidung von Beeinträchtigungen der Bodenfunktionen. Damit verbunden ist auch, einen nicht tolerierbaren Austrag in andere Umweltkompartimente wie Pflanzen, Tiere, Grundwasser und Luft zu unterbinden (Bachmann et al. 1997). Bei Böden mit naturbedingt oder großflächig siedlungsbedingt erhöhten Schadstoffgehalten ist die Überschreitung der Vorsorgewerte akzeptabel, wenn keine erhebliche Freisetzung von Schadstoffen mit entsprechend nachteiligen Wirkungen auf die Bodenfunktionen erfolgt.

Die Vorsorgewerte sind grundsätzlich unter ökotoxikologischen Gesichtspunkten abgeleitet, jedoch mit Hintergrundwerten (*HGW*) für diffus-ubiquitär belastete Böden abgeglichen. Für anorganische Schadstoffe sind sie als königswasserextrahierbare Konzentrationen auf die Bodentrockenmasse bezogen. Da es sich bei den Beurteilungswerten um Konzentrationsangaben handelt, sind diese nicht ohne weiteres vergleichbar mit tolerierbaren Eintragsraten.

Die Hintergrundwerte geben den Ist-Zustand der diffus-ubiquitär belasteten Böden an und beinhalten den geogenen Grundgehalt und die ubiquitäre Stoffverteilung als Folge diffuser Einträge in den Boden (LABO 2003). Der geogene Grundgehalt ist der Stoffbestand des Bodens, der sich aus dem Ausgangsgestein und der durch pedologische Prozesse beeinflussten Umverteilung von Stoffen im Boden ergibt.

Im Vorfeld der anstehenden Aktualisierung der BBodSchV hat das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) die BGR gebeten, für weitere Spurenelemente (Arsen, Antimon, Beryllium, Kobalt, Molybdän, Selen, Thallium, Uran, Vanadium) aus länderübergreifender Sicht Hintergrundwerte abzuleiten. Dies ist mit der Veröffentlichung (Utermann et al. 2008) der Ergebnisse einer bundesweiten Messkampagne von Hintergrundwerten erfolgt.

Zulässige Zusatzbelastungen zielen auf die Vermeidung oder Verminderung weiterer Schadstoffakkumulationen im Boden ab, wenn Vorsorgewerte bereits überschritten sind. Hierbei handelt es sich um kritische Eintragsraten von Schwermetallen. Obwohl sie, wie die CL(M) alle Eintragspfade (Luft, Bewirtschaftung, ggf. weitere) berücksichtigen, unterscheiden sie sich im methodischen Ansatz deutlich von den CL(M). Sie gehen von einer akzeptablen Erhöhung der Konzentrationen im Boden aus, wenn Vorsorgewerte bereits überschritten sind, während CL(M) unter Annahme eines Gleichgewichts zwischen Ein- und Austrägen auf dem Konzentrationsniveau der Critical Limits (den Wirkungsschwellenwerten), unabhängig von der derzeitigen Konzentration im Boden berechnet werden. Die zulässigen Zusatzbelastungen haben daher nur noch eingeschränkt vorsorgenden Charakter im Sinne einer nachhaltigen Vermeidung von Risiken nachteiliger Wirkungen durch Schadstoffakkumulation. Sie sind eher mit einer Bagatellgrenze oder Irrelevanzschwelle vergleichbar.

Die Bund-/Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (LAWA) veröffentlichte 2004 mit Zustimmung der Umweltministerkonferenz den Bericht "Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für das Grundwasser" (LAWA 2004). Rechtliche Änderungen durch EU und Bund sowie neue fachliche Erkenntnisse machten eine Überprüfung der Werte notwendig. Durch eine gemeinsame Arbeitsgruppe mit Vertretern von LAWA, LABO und LAGA wurden 2013 bis 2015 die entsprechenden Änderungen und die Neuformulierung eines Kapitels "Grundsätze für die Anwendung der Geringfügigkeitsschwellenwerte" erarbeitet (Zeddel 2016). Diente die Ableitung von Geringfügigkeitsschwellen ursprünglich der Untersetzung der Prüfwerte der BBodSchV, so werden sie aktuell auch in den Rechtsbereichen Wasser-, Abfall- und Bodenschutzrecht genutzt.

Die Geringfügigkeitsschwelle (GFS) ist die Konzentration eines anthropogen eingetragenen Stoffes bis zu der eine räumlich begrenzte Änderung der chemischen Beschaffenheit des Grundwassers als geringfügig einzustufen ist und ab der eine nachteilige Veränderung der Grundwasserbeschaffenheit vorliegt. Die Geringfügigkeitsschwelle wird weiter definiert als die Konzentration, bei der trotz einer Erhöhung der Stoffgehalte gegenüber regionalen Hintergrundwerten die Anforderungen der Trinkwasserverordnung oder entsprechend abgeleiteter Werte eingehalten werden und keine relevanten ökotoxischen Wirkungen auftreten können. Human- und ökotoxikologische Wirkungen eines Stoffes im Sickerwasser bei Eintritt in das Grundwasser werden zunächst parallel betrachtet und der jeweils kleinere Wert führt nach abschließenden Plausibilitätsprüfungen zur Ausweisung der GFS (Kapitel 3.3.8.5).

Basiswerte sind definiert als geogene Hintergrundkonzentration eines Elements im unbelasteten Grundwasser, ermittelt als flächengewichtetes Mittel der 90er Perzentilwerte von 15 hydrogeologischen Bezugsräumen (LAWA 2004; Zeddel et al. 2016). Sie dienen der Plausibilitätsprüfung, da ökotoxikologisch abgeleitete Werte, die im Bereich der natürlichen Hintergrundkonzentration liegen, nicht eine nachteilige Veränderung indizieren können.

Die Konzentration der Stoffe im Sickerwasser natürlicher, unbelasteter Böden wurde durch die Untersuchung von Eluaten im 2:1-Eluat abgeschätzt. Die daraus abgeleiteten Hintergrundwerte (als 95er-Perzentil), sind veröffentlicht und werden als sogenannte methodenspezifische Eluatwerte mit den Geringfügigkeitsschwellen abgeglichen. Der doppelte methodenspezifische Eluatwert dient dann als Prüfwert für den Pfad Boden – Grundwasser.

Brandenburgische Vollzugshilfe zur Ermittlung erheblicher und irrelevanter Stoffeinträge in Natura-2000-Gebiete (LUA Bbg 2008)

Die Vollzugshilfe (LUA Brandenburg 2008) dient als Anleitung zur FFH-Verträglichkeitsuntersuchung gemäß Art. 6 Abs. 3 der Fauna-Flora-Habitat-Richtlinie: Richtlinie 92/43/EWG (EU 1992) zur Erhaltung der natürlichen Lebensräume sowie der wild lebenden Pflanzen und Tiere. Die Vollzugshilfe ist nicht rechtsverbindlich. Sie hat jedoch große Beachtung in allen Bundesländern Deutschlands gefunden, weil sie erstmals umfassend und wegweisend die Problematik der Erheblichkeit von Schadstoffeinträgen in Natura 2000-Gebiete praxistauglich operationalisiert. Schutzziele sind die geschützten Lebensraumtypen der FFH-Richtlinie, Anhang I sowie die geschützten Arten nach Anhang II und IV. Die Vollzugshilfe legt anlagen- bzw. projektbezogene Irrelevanzschwellen (anzuwenden in der FFH-Vorprüfung) und Erheblichkeitsschwellen für die FFH-Verträglichkeitsprüfung fest. Die Irrelevanzschwellen entsprechen einem Prozentsatz wirkungsbasierter Beurteilungswerte. Für prioritäre Stoffe nach Anhang 2D (Pb, Cd, Ni, Hg) beträgt sie 2%. Der Beitrag, den die Anlage bzw. das Projekt zur Erhöhung der Konzentration im Boden leistet, ist nur dann irrelevant, wenn dieser Prozentsatz unterschritten wird. Laut Urteil des Bundesverwaltungsgerichtes (BVerwG) vom 14. April 2010 (Az 9A 5.08) sind die Irrelevanzschwellen für die nicht prioritären Stoffe (5%) aber nicht mehr anwendbar.

Die Erheblichkeitsschwelle ist mit dem Beurteilungswert (als Stoffkonzentrationen im Boden) identisch, solange diese nicht schon durch die Vorbelastung überschritten ist. Das heißt, der Beitrag der Anlage/des Projekts ist unerheblich, wenn der Beurteilungswert (als Konzentration im Boden) auch in der Summation mit anderen Planvorhaben nicht überschritten wird.

Ein Sonderfall ist gegeben, wenn der Beurteilungswert entweder bereits durch die bestehende Vorbelastung allein oder nach Realisierung des Vorhabens durch die Gesamtbelastung (ggf. auch infolge von Summationswirkungen durch andere Vorhaben) überschritten wird. In diesen Fällen ist ein zusätzlicher projektbedingter Stoffeintrag unerheblich, wenn er irrelevant ist, auch wenn der Beurteilungswert überschritten wird. Dies bedeutet: die Irrelevanzschwelle wird zur Erheblichkeitsschwelle.

In Anhang 3 der Brandenburgischen Vollzugshilfe (LUA Brandenburg 2008) sind die Beurteilungswerte für terrestrische Ökosysteme aufgelistet. Diese entsprechen in Bezug auf Schwermetalle den Bodenqualitätskriterien (Konzentrationen im Boden) der dänischen Umweltbehörde.

Die dänische Umweltbehörde definierte ökotoxikologisch begründete Beurteilungswerte für das Kompartiment Boden für 8 Schwermetalle und Arsen (Tabelle 29: Spalte 2). Diese Qualitätskriterien wurden mit Hilfe von Wirkungsschwellen für Bodenmikroorganismen und die durch sie verursachten Prozesse sowie für Pflanzen und Invertebraten von Labor auf Freilandbedingungen extrapoliert (mit den Methoden DIABEX und FAME, soweit möglich). Die Vollzugshilfe weist darauf hin, dass diese ökotoxikologischen Beurteilungswerte durch noch abzuleitende Vorsorgewerte der überarbeiteten BBodSchV ersetzt werden können.

Die Umrechnung der prognostizierten, durch eine Anlage verursachten Frachten in einen Beitrag zur Aufkonzentrierung des Stoffes im Boden soll nach einer Formel (LUA Brandenburg 2008, S. 16) erfolgen, in die die Einwirkzeit der Stoffeinträge (normative Nutzungsdauer der Anlage) eingeht. Nach der Berechnung wird dieser Beitrag mit der Irrelevanzschwelle verglichen. Ist er irrelevant, entfällt die FFH-Verträglichkeitsprüfung. Ist er relevant, so dass eine FFH-Verträglichkeitsprüfung durchgeführt wird, darf die Gesamtbelastung (Vor- und Zusatzbelastung bei Summation von Einzelvorhaben) nicht zur Überschreitung der Beurteilungswerte führen. Sind die Beurteilungswerte schon durch die Vorbelastung oder die Gesamtbelastung (einschließlich Zusatzbelastung) überschritten, gilt die Belastung durch die Anlage dann als unerheblich, wenn sie irrelevant ist (s. oben).

Am Beispiel einer Braunerde (zutreffend auch auf weitere Bodentypen mit gleicher Trockenrohdichte) ergeben sich die in Tabelle 29: dargestellten nicht erheblichen zusätzlichen Frachten für Einzelfälle, bei denen der Beurteilungswert (Konzentration im Boden) bereits überschritten ist. Ist der Beurteilungswert, d. h. die tolerierbare Konzentration im Boden, erreicht, entspricht die zulässige nicht erhebliche Zulastbelastung (= irrelevante Eintragsrate) der akzeptierten Akkumulationsrate, da Austräge nicht berücksichtigt werden. Diese akzeptierte Akkumulationsrate kann aber über lange Zeiträume (100-200 Jahre) beträchtlich sein (Tabelle 29: Spalten 6 und 7), vorausgesetzt, die Anlage wird über ihre Nutzungsdauer hinaus genutzt, erneuert oder ersetzt, was in der Regel üblich ist.

Tabelle 29:Beispielhafte Umrechnung der Beurteilungswerte für Metallkonzentrationen im Boden
in irrelevante zusätzliche Frachten sowie Akkumulationsrate des Metalls bei Einhaltung
der Irrelevanzsschwellen in 100 und 200 Jahren

Metall	Beurtei- lungswert nach LUA Bbg 2008	Trockenroh- dichte	Mächtigkeit des Oberbodens	irrelevante Eintragsrate des Metalls in 25 Jahren	Anreiche- rungsrate des Metalls in 100 Jahren	Anreiche- rungsrate des des Metalls in 200 Jahren	
	g t ⁻¹ Boden	g cm ⁻³ Boden	m	(g ha ⁻¹ a ⁻¹)	(g ha ⁻¹ 100a ⁻¹)	(g ha ⁻¹ 200a ⁻¹)	
Pb	50	1,6	0,3	192	768	1536	
Cd	0,3	1,6	0,3	1,15	5	9,216	
Ni	10	1,6	0,3	38	154	307,2	
Hg	0,1	1,6	0,3	0,38	2	3,072	

Da die gewählten Beurteilungswerte für die Konzentration im Boden sehr niedrig sind (sie entsprechen in etwa den unteren Werten der Vorsorgewerte der BBodSchV) haben sie Vorsorgecharakter. Die nach der Methode der Vollzugshilfe für die Vorprüfung berechneten irrelevanten Eintragsraten können insofern als wirkungsbasierte und vorsorgeorientierte Beurteilungswerte gewertet werden. Sie zielen darauf ab, Schwellenwerte für schädliche Wirkungen möglichst nicht oder höchstens sehr geringfügig zu überschreiten. Der Vorsorgecharakter ist gewährleistet, solange die tatsächlichen Konzentrationen im Boden deutlich unterhalb der Beurteilungswerte liegen. Er ist zu relativieren, wenn die Beurteilungswerte bereits überschritten sind, denn dann birgt jede weitere Akkumulation des Metalls das Risiko gewisser schädlicher Wirkungen. Weil dann die eigentliche Wirkungsschwelle bereits überschritten ist und schädliche Wirkungen auf den FFH-LRT nicht mehr ausgeschlossen werden können, dient die Irrelevanzschwelle dann eher der Gefahrenabwehr. Im Vergleich zur zulässigen Zusatzbelastung nach BBodSchV (wenn Vorsorgewerte bereits überschritten sind) trifft das umso mehr zu, weil Belastungen aus anderen Quellen nicht berücksichtigt werden. Bei der Berechnung akzeptabler (=unerheblicher) Eintragsraten, die nicht zur Überschreitung der Beurteilungswerte führen, ist die Differenz zwischen bereits vorhandener Stoffkonzentration im Boden und dem Beurteilungswert bedeutsam Die Auffüllung des Beurteilungswertes von 15 g Pb t⁻¹ auf 50 g Pb t⁻¹, die innerhalb von wenigen Jahrzehnten erlaubt wäre, bedeutet eine mehr als dreifache Erhöhung der Konzentration im Boden. Deshalb wäre es eher als vorsorgeorientiert zu bezeichnen, die über 100-200 Jahre oder andere sehr lange Zeiträume berechnete Eintragsraten zu verwenden, da ein nachhaltiger Schutz der Ökosystemkompartimente und ihrer Funktionen auf lange Zeiträume angelegt sein muss. Legt man wie vorgesehen die Nutzungsdauer der Anlage zu Grunde, kann der Spielraum bis zum Erreichen der Wirkungsschwelle nach Ablauf der Nutzungsdauer ausgeschöpft sein. Danach wären in dem Gebiet nur noch wirtschaftliche Aktivitäten mit irrelevanten Emissionen zulässig, deren Wirkung über längere Zeiträume, wie in Tabelle 29 gezeigt, durchaus beträchtlich ist. Dem Verschlechterungsverbot, auf das die Vollzugshilfe auch verweist, würde ein solcher Ansatz ebenfalls nicht gerecht.

Wie die Festlegung der zulässigen Zusatzbelastung nach BBodSchV berücksichtigt die Rechenvorschrift der Vollzugshilfe die Austräge durch Ernteentzug von Biomasse sowie die Bioverfügbarkeit nicht. Sie unterscheiden sich dadurch von den Critical Loads. Es wird der worst case unterstellt, dass eingetragene Schwermetalle vollständig in der betrachteten Bodenschicht verbleiben und die Eintragsraten deshalb umso niedriger sein müssen. Dieser Ansatz unterstützt wiederum den Vorsorgegedanken.

3.2.2 Besorgnispotenzial bisher nicht regulierter Metalle

Laut Aufgabenstellung des Projektes sollen für zwei Metalle anhand vorliegender Eintragsdaten (Berichtsteil 1 dieses Projektes) und human- sowie ökotoxikologischer Wirkungsdaten Aussagen getroffen werden, ob sich gegenwärtig oder in absehbarer Zukunft eine Besorgnis aufgrund zu hoher Stoffeinträge in terrestrische Ökosysteme ergibt. Dafür wurden in Absprache mit dem Umweltbundesamt Thallium und Vanadium aus einer Liste von Metallen ausgewählt, für die bisher insgesamt relativ wenige Informationen vorliegen. Hier werden zunächst verfügbare Informationen zum Vorkommen der Metalle in der Umwelt und zu Wirkungen und bereits existierenden Beurteilungswerten zusammengestellt. Das Besorgnispotenzial kann dann erst im Vergleich mit Informationen zu Einträgen ermittelt werden.

3.2.2.1 Thallium

Die in Deutschland bedeutendste Quelle für Thallium-Verunreinigungen der Luft ist der Einsatz von Stein- oder Braunkohle sowie von Schweröl für die Energieerzeugung.

Thallium ist kein seltenes Element. Die mittlere Konzentration in landwirtschaftlich genutzten Böden Europas beträgt im Königswasseraufschluss 0,116 mg kg ⁻¹ in Ackerböden (Tiefenstufe 0-20 cm) bzw. 0,115 mg kg ⁻¹ in Grünlandböden (Tiefenstufe 0-10 cm) (Demetriades 2014). Je höher der Tongehalt in Böden, desto höher die Konzentration von Thallium (ebenda).

Für Thallium wurde noch keine biologische Funktion bestätigt. Thallium ist ein hochtoxisches Element für lebende Organismen, vergleichbar mit der Wirkung von Quecksilber (Madejón in Alloway 2013).

Im Boden wird Tl kaum verlagert und dadurch bei langandauernder Immission im durchwurzelten Oberboden stark angereichert (Scholl und Metzger 1981). Madejón (in Alloway 2013) gibt an, dass anthropogen eingetragenes Thallium zu 80% im humusreichen Oberboden gespeichert wird.

Die Pflanzenverfügbarkeit von Tl im Boden wird durch bodenphysikalische Parameter wie Tongehalt, pH-Wert und Kationenaustauschkapazität beeinflusst. Bei gleichen Bodengehalten zeigen Pflanzen artspezifische Unterschiede in der Tl-Aufnahme (Kurz et al., 2002). Darüber hinaus wird die Pflanzenverfügbarkeit von Tl offensichtlich im Laufe der Zeit durch Festlegung in schwerer mobilisierbare Bindungsformen vermindert (Crößmann 1984, Kick et al. 1981). Pflanzen nehmen Thallium rasch auf, so dass es in der Nahrungskette angereichert wird und bei Tieren und Menschen toxische Effekte hervorrufen kann.

Die toxischen Effekte in Pflanzen basieren auf der Interaktion von Thallium mit Kalium, da beide Elemente etwa den gleichen Ionendurchmesser aufweisen. So werden das essentielle Kalium, aber auch andere monovalente Kationen, insbesondere in den Enzymen durch Thallium substituiert (Madejón, in Alloway 2013). So entstehen Chlorosen und Wachstumshemmungen.

Für Thallium sind keine Studien zur Bestimmung von effektbasierten Critical Limits zum Schutz von Ökosystemkompartimenten bekannt.

1979 wurde ein vorläufiger Richtwert für Tl in Nahrungs- bzw. Futterpflanzen von 0,5 mg Tl kg⁻¹ Frischsubstanz (FS) festgesetzt (Scholl und Metzger, 1981). Der 1997 veröffentlichte Richtwert des Bundesgesundheitsamtes (BGA) von 0,1 mg Tl kg⁻¹ FS (Anonym, 1997) wurde im Jahre 2000 durch das Bundesinstitut für gesundheitlichen Verbraucherschutz und Veterinärmedizin (BgVV, Nachfolgeinstitut des BGA) zurückgezogen (Anonym, 2000). Einen Referenzwert für den Thallium-Gehalt in Pflanzen gibt Markert (1992) mit 0,05 mg kg⁻¹ an.

Ein Austrag mit dem Sickerwasser ist nach Madejón (in Alloway 2013) mit 20 % des Eintrags anzunehmen. Der Referentenentwurf einer Neufassung der BBodSchV (BMU 2015) enthält in Anlage 1 die Vorsorgewerte für Thallium in Böden mit weniger als 30% Humusgehalt in Höhe von 0,5 mg Tl kg⁻¹ Boden (Trockenmasse, Feinboden, Königswasseraufschluss) in Sand und 1 mg Tl kg⁻¹ in Lehm, Schluff oder Ton. Die BBodSchV gibt als Prüfwert für den Schadstoffübergang Boden-Nutzpflanze (unabhängig von der Pflanzenart) auf Ackerbauflächen und in Nutzgärten 100 µg Gesamt-Tl kg⁻¹ Feinboden an. Er zielt auf den Schutz der tierischen und menschlichen Gesundheit ab (Anonym, 1999). Obwohl es diesen Prüfwert gibt, wird Thallium hier weiterhin als "nicht reguliert" betrachtet, weil noch kein Vorsorgewert verbindlich vorgegeben ist und der Prüfwert den Schutz naturnaher Ökosystemen nicht einbezieht.

Eine gemeinsame Arbeitsgruppe der Bund-/Länderarbeitsgemeinschaften Wasser (LAWA), Boden (LABO) und Abfall (LAGA) aktualisierten und erweiterten die Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für das Grundwasser (Zeddel et al. 2016). Darin wird erstmals für Thallium eine Geringfügigkeitsschwelle auf der Grundlage ökotoxischer Wirkungen (PNEC) angegeben und zwar in Höhe von 0,2 μ g l⁻¹ im Sickerwasser des Übergangsbereiches von der ungesättigten in die wassergesättigte Bodenzone. Der methodenspezifische Prüfwert (etwa das 95er Perzentil der deutschlandweit erhobenen Hintergrundwerte), das durch die Geringfügigkeitsschwellenwerten nicht überschritten werden soll, wird mit 0,2 μ g l⁻¹ in Böden mit einem Humusgehalt < 1% sowie mit 0,3 μ g l⁻¹ in Böden mit einem Humusgehalt von 1 < 4 % angegeben.

3.2.2.2 Vanadium

Vanadium (V) ist ein natürlicher Bestandteil von Gesteinen und deren Verwitterungsprodukten. Es kommt in Form von 2-, 3-, 4- oder 5-valenten Oxiden vor. Natürliche Gehalte sind in der Spanne von 98 bis 230 mg kg⁻¹ Boden festgestellt worden (Reimann u. Caritat 1998). Eine Anreicherung von Vanadium in Böden aus anthropogenen Quellen wird von vanadiumhaltigen Stäuben verursacht, die bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe (Kohle, Erdöl) und bei der Stahlherstellung entstehen. Vanadiumhaltige Industrieabwässer können in natürliche Gewässer gelangen. Vanadium ist in der Umwelt allgegenwärtig und weit verbreitet und hat dadurch ein hohes Potenzial, in die Nahrungskette zu gelangen.

V ist für Pflanzen, Menschen und Tiere essentiell. Es dient der Steuerung von Enzymen der Phosphorylierung und wird von Bakterien zur Stickstofffixierung benötigt. In Pflanzen spielt V eine wichtige Rolle bei der Bildung von Chlorophyll und steuert dadurch die Photosynthese. Geringe Konzentrationen fördern somit das Pflanzenwachstum, während höhere Konzentrationen toxisch wirken. Konzentrationen von bis zu 2 μ g V kg⁻¹ Trockenmasse von verschiedenen Gemüsen und Feldfrüchten wurden als wachstumsfördernd ermittelt (Welch et al. 1973).

Effekte in Pflanzen und Tieren sind bei zu hohen Dosen nachgewiesen. Die Toxizität nimmt mit zunehmender Valenz der Vanadium-Verbindungen zu, d.h. 5-wertiges Vanadium ist am gefährlichsten. Hohe Vanadiumkonzentrationen verursachen eine drastische Hemmung der Chlorophyll-Biosynthese, der Löslichkeit von Proteinen und der Netto-Photosynthese (Wilkison u. Duncan 1993). Eine Vanadium-Überdosis verringert die Ca-Absorbtion in den Wurzelspitzen (ebenda). Vanadium neigt dazu, sich im Wurzelbereich anzulagern, es vermindert dadurch die Phosphor-Aufnahme (Sklenar et al. 1994) und hemmt das Wachstum (Hidalgo et al. 1988; Wallace et al. 1977).

Welch et al. (1973) fanden eine lineare Korrelation zwischen der V-Aufnahme in Pflanzenteile mit der V-Konzentration im Boden und dem pH-Wert. Bei einem pH-Wert von 4 war die Aufnahmerate am höchsten, bei pH-Werten um 10 sank die Aufnahmerate auf ein sehr niedriges Niveau. Bei pH-Werten zwischen 5 und 8 bleibt die Aufnahmerate konstant. Gleichzeitig ist aber die V-Aufnahme innerhalb der pH-Wertspanne 5-9 aus wassergesättigten Böden niedriger als aus luftgefüllten Bodenschichten (Wang u. Liu 1999).

Schroeder et al. (1963) fassen aus bis dato veröffentlichten Studien durchschnittliche V-Gehalte in Pflanzen auf nicht kontaminierten Böden von 0,5-2 mg V kg⁻¹ TS zusammen. Kabata-Pendias u. Muk-

herjee (2007) weisen Normalwerte für den Gehalt von V in der Trockensubstanz von unbelasteten Vegetationsbeständen in der Spanne von 0,01 bis 0,7 mg V kg⁻¹ TS aus. Andererseits sind bei einigen Pflanzen auf verunreinigten Böden auch durchschnittliche Gehalte von 144 mg V kg⁻¹ TS nachgewiesen worden, ohne dass diese Pflanzen Beeinträchtigungen aufwiesen (ebenda).

In Deutschland wurden Hintergrundkonzentrationen aus Messungen in siedlungs- und industriefernen Regionen mit Böden ohne geogen erhöhte V-Gehalte abgeleitet (Utermann et al. 2008). Sie betragen auf Sandböden für Acker 13 mg kg⁻¹, für Grünland 15 mg kg⁻¹, für Forste 8 mg kg⁻¹, auf Schluffen und Lehmen für Acker 23-66 mg kg⁻¹, für Grünland 26-71 mg kg⁻¹, für Forste 16-52 mg kg⁻¹, auf bindigen Böden aus sauren Magmatiten und Metamorphiten für Acker, Grünland und Forste 156 mg kg⁻¹, auf Tonen für Grünland 41 mg kg⁻¹.

Eine gemeinsame Arbeitsgruppe der Bund-/Länderarbeitsgemeinschaften Wasser (LAWA), Boden (LABO) und Abfall (LAGA) aktualisierten und erweiterten die Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für das Grundwasser (Zeddel et al. 2016). Darin wird erstmals für Vanadium eine Geringfügigkeitsschwelle auf der Grundlage humantoxikologischer Wirkungen in Höhe von 4 μ g l⁻¹ im Sickerwasser des Übergangsbereiches von der ungesättigten in die wassergesättigte Bodenzone angegeben. Der methodenspezifische Prüfwert (etwa das 95er Perzentil der deutschlandweit erhobenen Hintergrundwerte), das durch die Geringfügigkeitsschwellenwerte nicht überschritten werden soll, wird mit 20 μ g l⁻¹ in Böden mit einem Humusgehalt < 1% sowie mit 35 μ g l⁻¹ in Böden mit einem Humusgehalt von 1-< 4 % angegeben. Konkrete Anhaltspunkte für ökotoxikologische wirkungsbasierte Schwellenwerte im Sickerwasser existieren nicht.

3.2.3 Zusammenfassung und Vergleich der Beurteilungswerte

Die Beurteilungswerte der in den vorhergehenden Abschnitten betrachteten Empfehlungen, Gesetze und untergesetzlichen Regelungen sind in Tabelle 30 zusammengestellt. Aufgrund der methodischen Unterschiede ihrer Ableitung sind sie nur bedingt untereinander und mit den Critical Loads vergleichbar.

Tabelle 30:	Zusammenstellung von Beurteilungswerten für Schwermetallflüsse bzw. Konzentratio-
	nen zum Schutz von Ökosystemen

	TA Luft Tab. 6	TA Luft Tab. 8 ²⁾	39. BlmSchV	BBodSchV (zusätzliche Fracht) ³⁾	EU-Position Paper	CL(M) _{eco} (5-95er Perz.)	CL(M) _{drink} (5-95er Perz.)
				[g h	a ⁻¹ a ⁻¹]		
Hg	4	110		1,5		0,2 – 0,6	0,6-5,7
Cd	7	9	Nadelwald: 7	6	9-18	4,1 - 42,4	2,5-18
			Laubwald: 4				
			Grünland: 2,5				
			Acker: 2,5				
Pb	365	675	Nadelwald: 716	400		6 - 601	9-61
			Laubwald: 420				
			Grünland: 250				
			Acker: 250				
As	15	4271	Nadelwald: 6		Nadelwald:3-9 ⁴⁾	181-711	6-56
	·		Laubwald: 4		Laubwald: 4-13 ⁴⁾		
			Grünland: 2,2		Grünland: 1,5-5 ⁴⁾		
			6/4/2,2		Acker: 1,5-5 ⁴⁾		
Ni	55		Nadelwald: 28	100	Nadelwald: 8-42 ⁴⁾	109-3338	-
			Laubwald: 17		Laubwald: 14-72 ⁴⁾		
			Grünland: 10		Grünland: 5-25 ⁴⁾		
			Acker: 10		Acker: 5-25 ⁴⁾		
Cu				360		13-710	1070-11268
Zn				1200		189-1032	2848-28316
Cr				300		115-448	28-282
ΤI	7	26					

1) Immissionswerte für Schadstoffdepositionen

2) Depositionswerte als Anhaltspunkte für die Sonderfallprüfung

3) zulässige Zusatzbelastung nach §11 Abs. 2 BBodSchV

4) aus Beurteilungswerten für Konzentrationen umgerechnet anhand Berichtsteil 1 dieses Projektes, Tabellen 33 und 34

Die zum Teil deutlichen Unterschiede bestehen aufgrund unterschiedlicher Schutzniveaus, Schutzziele und dem Wirkungsbezug (Tabelle 31).

Tabelle 31	Zusammenstellung der Kategorien von Beurteilungswerten für Schwermetallflüsse zum
	Schutz von Ökosystemen, Schutzgüter, -niveau- und –ziele sowie Wirkungsindikatoren

Quellen für Beur- teilungs- werte	Bezeich- nung/Kateg orie der Beurtei- lungswerte	Verbind- lichkeit	Schutzgü- ter	Angestreb- tes Schutz- niveau	Anwen- dung zur Berurtei- lung von Anla- gen/Projekt en oder der allgemei- nen Belas- tung	Wirkungsindikator
Vorgaben	von Beurteilur	ngswerten aus	gesetztlichen, der Luftreir	untergesetzlic haltung	hen Regelunge	en und Empfehlungen
39. Blm- SchV (2010)	Immissi- onsgrenz- wert (Pb)	rechtsver- bindlich	Mensch +	Vorsorge + Gefahren- abwehr	allgemeine Belastung	humantoxikologische Wirkungsschwellen
	Zielwerte (As, Cd, Ni)	Empfeh- lung	Mensch + Umwelt	Vorsorge + Gefahren- abwehr	allgemeine Belastung	humantoxikologische Wirkungsschwellen
TA Luft (2002)	Immissi- onswerte für Schad- stoffdepo- sitionen	verbindlich für das Verwal- tungshan- deln	Umwelt	Gefahren- abwehr (Immissi- onswerte)	genehmi- gungsbe- dürftige Anlagen	humantoxikologische Wirkungsschwellen
EU Positi- on Paper (2000)	Immissi- ons- Zielwerte	EU- behördli- che Emp- fehlung	Mensch und Um- welt (via Boden, Pflanzen)	Vorsorge + Gefahren- abwehr	allgemeine Belastung	humantoxikologische Wirkungsschwellen
CLRTAP 2014, 2016)	Critical Loads (CL(M) _{eco})	Empfeh- lung/Orient ierung	Terr. Öko- systeme, Bodenor- ganismen u. Pflanzen,	Vorsorge	allgemeine Belastung	ökotoxikologische Schwellen NOEC, LOEC Mikroorganis- men, Invertebraten u. Pflanzen
	Critical Loads (CL(M) _{drink}), (CL(Cd) _{food})	Empfeh- lung/Orient ierung	Mensch	Vorsorge	allgemeine Belastung	Grenzwerte der Trinkwasser-VO und Critical Limit für Cd im Weizen
Vorgaben von Beurteilungswerten aus gesetzlichen, untergesetzlichen Regelungen und Empfehlungen anderer Rechtsbereiche						

Quellen für Beur- teilungs- werte	Bezeich- nung/Kateg orie der Beurtei- lungswerte	Verbind- lichkeit	Schutzgü- ter	Angestreb- tes Schutz- niveau	Anwen- dung zur Berurtei- lung von Anla- gen/Projekt en oder der allgemei- nen Belas- tung	Wirkungsindikator
BBodSchV (2012)	Vorsorge- werte	rechtsver- bindlich	Ökosyste- me, Bo- denorga- nismen u. Pflanzen	Vorsorge	generelle Geltung (nutzungs- übergrei- fend)	ökotoxikologische Schwellen NOEC, LOEC, (zukünftig: HC5, EC10) von Bo- denorganismen u. Pflanzen (alle Wir- kungspfade) + Hin- tergrundwerte
	zulässige jährliche Zusatzbe- lastung	Rechtsver- bindlich ¹¹	Ökosyste- me, Bo- denorga- nismen u. Pflanzen (alle Wir- kungspfa- de)	Vorsor- geanspruch u. E. einge- schränkt	generelle Geltung (nutzungs- übergrei- fend)	Informationen zur Höhe ubiquitärer Einträge
AG der LAWA/ LABO/ LAGA	Geringfü- gigkeits- schwellen- werte	Empfeh- lung, Ori- entierung	Mensch, Ökosyste- me	Vorsorge	generelle Geltung (nutzungs- übergrei- fend)	human- und ökotoxi- kologische Schwellen (Boden-Grund- wasser), Abgleich mit Hintergrundwerten
Branden- burgische Vollzugs- hilfe 2008	Beurtei- lungswerte zur Prüfung der Erheb- lichkeit von Schwerme- talleinträ- gen	landesbe- hördliche Empfeh- lung	terrestri- sche Le- bensge- meinschaf- ten (FFH- LRT)	Vorsorge, z. T. Gefah- renabwehr	Anlagenbe- zogen, Einfluss auf FFH- Gebiete	ökotoxikologische Schwellen von Bo- denmikroorganis- men, Invertebraten u. Pflanzen
	Zielvorgabe	landesbe- hördliche Empfeh- lung	aquatische Lebensge- meinschaf- ten (FFH- LRT)	Gefahren- abwehr	anlagenbe- zogen	ökotoxikologische Schwellen von Bak- terien, Grünalgen, Kleinkrebsen, Fi- schen

¹¹ Rechtsverbindlich festgelegt ist, dass Werte für die zulässige Zusatzbelastung abgeleitet werden. Die Werte selbst haben eher orientierenden Charakter, da es keine konkreten vorgeschriebenen Anwendungsfälle gibt. Anlagen oder bewirschaftungsbedingte Eintragswerte unterliegen anderem Fachrecht.

Der Schutz der menschlichen Gesundheit sowie der Ökosysteme und ihrer Funktionen vor Beeinträchtigungen durch Luftschadstoffeinträge ist in der Regel gegeben, wenn Schwermetalleinträge völlig vermieden werden. Das ist jedoch keine realistische Annahme. Der Schutz dieser Schutzgüter ist ebenso gegeben, wenn öko- und humantoxikologisch begründete spezifische kritische Konzentrationen von Schwermetallen in Umweltmedien nicht erreicht werden.

Die Immissionsgrenzen der 39. BImSchV (2010), der TA Luft (2002) und des Positionspapiers der EU basieren auf humantoxikologischen Wirkungsschwellen, dienen folglich prioritär dem Schutz der menschlichen Gesundheit.

Anhaltspunkte für ökotoxikologisch wirkungsbasierte kritische Konzentrationen für Schwermetalle in Böden bieten die Beurteilungswerte nach LUA Brandenburg (2008) in Anlehnung an die Beurteilungswerte der dänischen Umweltbehörde. Auch die Vorsorgewerte der BBodSchV bieten ökotoxikologisch wirkungsbasierte kritische Konzentrationen für Schwermetalle im Boden. Die Ableitung einer tolerierbaren jährlichen Gesamteintragsrate aus den Vorsorgewerten allein ist nicht möglich. Entsprechend der Methodik, wie sie LUA Brandenburg (2008) verwendet, kann sie aber aus der Differenz Hintergrundwert – Vorsorgewert berechnet werden, so geschehen in der TA Luft (2002) als Differenz Hintergrundwert – Prüf- bzw. Maßnahmewert (Prinz und Bachmann 1999).

Im Verfahren der Konventionsbildung (sowohl unter fachlichen als auch politischen Aspekten) wurden tolerierbare Eintragsraten auch für die Fälle festgelegt bzw. empfohlen, in denen die kritischen Konzentrationen im Boden bereits überschritten sind. Damit wird jedoch eine weitere Anreicherung der Schadstoffe in den Ökosystemen in Kauf genommen. Dazu gehören die zulässige jährliche Zusatzbelastung nach BBodSchV (2012) und die Erheblichkeitsschwellen für prioritäre Schwermetalle nach LUA Brandenburg (2008), sofern sie als prozentualer Anteil an den Beurteilungswerten berechnet werden (weil die kritischen Konzentrationen bereits erreicht sind, siehe 5.2.1).

Höhere Sicherheit für den Ökosystemschutz bieten Beurteilungswerte für akzeptable zusätzliche Eintragsraten, die ein Gleichgewicht mit den unschädlichen Austrägen gewährleisten. Bei Einhaltung der bilanzierten Beurteilungswerte kann bei derzeitiger Unterschreitung kritischer Konzentrationen eine weitere Anreicherung über diese hinaus langfristig ausgeschlossen werden. Sind die kritischen Konzentrationen heute bereits überschritten, kann unter günstigen Voraussetzungen (tolerierbare Austräge höher als Einträge) auch eine Abreicherung erfolgen.

Vom methodischen Ansatz her gibt es keinen allgemein gültigen Unterschied zwischen verbindlichen Werten und Empfehlungen, beide orientieren sich an humantoxikologischen Wirkungsschwellen oder an experimentell ermittelten Dosis-Wirkungsbeziehungen für empfindliche Pflanzen, Tiere oder Mikroorganismen. Allein bei den Critical Load-Berechnungen wird eine Bilanzierung der Ein- und Austräge vorgenommen. Dadurch könnte erwartet werden, dass die Einbeziehung von unschädlichen Austrägen die Belastungsgrenzen gegenüber anderen Beurteilungswerten anhebt. Dieser Effekt ist allerdings nur bei den beiden Schwermetallen Arsen und Nickel hinsichtlich der Critical Loads für den Ökosystemschutz (CL(M)_{eco}) zu verzeichnen. Die Grenzwerte und Empfehlungen für Quecksilber, Cadmium und Arsen liegen innerhalb der Spannen der Critical Loads für den Trinkwasserschutz (CL(M)_{drink}). Die Spannen der CL(M)_{drink} liegen bei Blei und Chrom deutlich unterhalb der anderen Beurteilungswerte, während die CL(M)_{drink}-Spannen für Kupfer und Zink deutlich oberhalb der zulässigen zusätzlichen Fracht nach BBodSchV liegt.

Von den gesetzlichen bzw. untergesetzlichen Regelungen und Empfehlungen kann keine identifiziert werden, aus der sich für alle untersuchten Schwermetalle jeweils der niedrigste Belastungsgrenzwert ableiten ließe. Daher muss diese Bewertung stoffspezifisch erfolgen. Für Cadmium und Blei ergeben sich die strengsten Beurteilungswerte aus der 39. BImSchV. Dabei findet sich auch eine gute Übereinstimmung mit den in der TA Luft angegeben Werten. Auch die in der 39. BImSchV angegebenen Werte für Arsen liegen eng bei denen nach dem EU-Positionspapier und zur CL(As)_{drink}-Spanne. Beim Nickel

stimmen die in der 39. BImSchV angegeben Werte gut mit den Empfehlungen des EU-Positionspapiers überein, liegen jedoch deutlich unter den Werten nach TA Luft.

Beim Chrom existiert neben den CL(Cr) nur die Belastungsgrenze nur aus der BBodSchV ,. Die Berechnungen für den CL(Cr)_{eco} stützen ebenfalls den dort angegeben Wert. Für Thallium wird ausschließlich in der TA Luft ein Beurteilungswert angegeben, der für das Handeln der Verwaltung im Rahmen von Anlagengenehmigungen verbindlich ist.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass von den 9 untersuchten Schwermetallen zumindest 5 hinsichtlich des Schutzes der menschlichen Gesundheit und im Sinne des vorsorgenden Umweltschutzes rechtsverbindlich (39. BImSchV, BBodSchV) bzw. als verbindlich in Genehmigungsverfahren (TA Luft) mit strengen Beurteilungswerten belegt sind.

Bei Quecksilber ergaben die Berechnungen für $CL(Hg)_{eco}$ eine Wertespanne, die deutlich geringer liegt als die 1,5 g ha⁻¹ a⁻¹ aus der BBodSchV bzw. die Werte der TA Luft. Der Median für $CL(Hg)_{eco}$ (0,32 g ha⁻¹ a⁻¹) beträgt weniger als ein Zehntel des Wertes aus der TA Luft Tab. 6 (4 g ha⁻¹ a⁻¹). In diesen Fällen sollten weitere Untersuchungen angestrebt werden und die diesen Berechnungen zu Grunde liegenden Daten intensiv geprüft werden.

3.3 Ermittlung von Critical Loads für Schwermetalleinträge

3.3.1 Einleitung

In den folgenden Kapiteln wird eine Bilanzierung von Eintragsraten in Ökosysteme im Gleichgewicht von Ein- und unschädlichen Austrägen nach dem Critical Loads-Konzept durchgeführt. Sie erfolgt im Maßstab 1:1 Mio. und liefert einen Überblick über die Empfindlichkeit der terrestristischen Ökosysteme in Deutschland für 9 Schwermetalle. Dabei werden 2 Schutzziele verfolgt: Ökosystemschutz und Schutz der menschlichen Gesundheit.

Critical Loads für Schwermetalle sind definitionsgemäß die höchste Gesamteintragsrate des betrachteten Metalls (aus atmosphärischer Deposition, Düngemitteln und anderen anthropogenen Quellen), unterhalb derer nach heutigem Stand des Wissens langfristig keine schädlichen Wirkungen auf die menschliche Gesundheit und auf Struktur und Funktion von Ökosystemen zu erwarten sind (Manual des ICP Modelling &. Mapping, Kapitel 5) (CLRTAP 2004-2016).

Die Berechnung von Critical Load erfolgt nach dem Massenbilanzansatz unter Annahme eines chemischen Gleichgewichtes im betrachteten System sowie eines Gleichgewichtszustandes (steady state) zwischen Ein- und Austrägen bei einem Konzentrationsniveau definiert durch das Critical Limit.

Das Critical Limit ist eine wirkungsbasiert abgeleitete Grenzkonzentration in bestimmten Ökosystemkompartimenten, unterhalb derer signifikante Schadwirkungen auf die menschliche Gesundheit sowie auf definierte empfindliche Bestandteile der Ökosysteme nach heutigem Stand des Wissens ausgeschlossen werden können.

Bei der Berechnung von Critical Loads für Schwermetalle werden neben naturnahen bzw. halbnatürlichen Ökosystemen auch durch den Menschen stark beeinflusste Ökosysteme wie Ackerland und intensiv genutztes Grünland als Rezeptorflächen einbezogen.

In Bezug auf die Erhaltung der Nahrungsqualität zum Schutz der menschlichen Gesundheit wurde Cadmium als wichtiger Schadstoff identifiziert. Bei diesem Metall ist eine Aufnahme aus dem Boden in die Vegetation vergleichsweise hoch, so dass Anreicherungen im Boden die potenzielle Gefahr von Gesundheitswirkungen über pflanzliche Nahrung nach sich ziehen. Als Indikatorpflanze wurde Weizen ausgewählt. Weizenkorn stellt einen erheblichen Anteil der Nahrung in Deutschland (wie in Europa) dar und sein Anbau nimmt in Deutschland (und anderen europäischen Ländern) einen hohen Anteil der landwirtschaftlichen Nutzflächen ein (Nagel et al. 2008).

Für alle Ökosystemtypen werden Critical Loads zum Schutz des Trinkwassers kartiert.

Die Ermittlung von Critical Loads erfolgt deshalb im Folgenden für drei verschiedene Schutzgüter:

- ► CL(M)_{eco} Critical Load für ein Metall (M steht anstelle Hg, Cd, Pb, Cu, Zn, Ni, As, Cr, Zn) zum Schutz der empfindlichen Biota des Ökosystems
- CL(M)_{drink} Critical Load für ein Metall (M steht anstelle Hg, Cd, Pb, Cu, As, Cr, Zn) zum Schutz des Trinkwassers für Menschen
- CL(Cd)_{food} Critical Load für Cadmium zum Schutz von Ackerfrüchten (hier: Weizenerzeugnissen) als Lebensmittel für Menschen

3.3.2 Geografische Datengrundlagen für den deutschen Critical Load-Datensatz

Für die Critical Load-Berechnung werden die notwendigen Datengrundlagen mit Hilfe eines Geographischen Informationssystems ArcView miteinander verschnitten und in eine Datenbank überführt. Dabei kommen sowohl originäre Daten, z. B. Niederschlag, als auch abgeleitete Daten, z.B. aus der Bodenübersichtskarte abgeleitete Werte für den Gehalt an organischer Substanz (OM) und pH-Werte, zur Anwendung. Die Haltung, Auswertung und Darstellung der Daten erfolgt in Polygonen, die sich aus der Verschneidung der Eingangsdaten ergeben.

3.3.2.1 Biotoptypen- und Landnutzungskartierung

Die flächige Verteilung der untersuchten Rezeptoren in Deutschland wird aus der CORINE Land Cover 2006 (CLC 2006) entnommen. Dabei erfolgt eine Berechnung von Critical Load für natürliche und halbnatürliche Ökosysteme sowie für landwirtschaftliche Nutzflächen (Acker und Intensivgrünland). Siedlungsflächen, Wasserflächen u. ä. (21,8% der Fläche Deutschlands) werden nicht als Rezeptorflächen einbezogen. Folgende Legendeneinheiten der CLC 2006 werden daher als Rezeptorflächen betrachtet (Tabelle 32):

CORINE-Code	Beschreibung	Fläche in Deutsch- land [ha]	Fläche in Deutsch- land [%]	Anteil an Rezepto- ren gesamt [%]
211	Ackerflächen	13.410.853	37,53	47,9
231	Wiesen und Wei- den	4.266.058	11,94	15,2
311	Laubwälder	2.359.267	6,60	8,4
312	Nadelwälder	5.436.535	15,21	19,4
313	Mischwälder	2.302.725	6,44	8,3
321	Natürliches Grün- land	99.061	0,28	0,4
322	Heiden und Moorheiden	35.776	0,10	0,1
411	Sümpfe	19.755	0,06	0,1
412	Torfmoore	58.577	0,16	0,2
Summe der Rezeptorflächen		27.988.609	78,32	100,0

Tabelle 32: Rezep	tortypen und deren Flächenanteile nach	CORINE (CLC 2006) in Deutschland
-------------------	--	----------------------------------

3.3.2.2 Bodenübersichtskarte Deutschlands

Die nutzungsdifferenzierte Bodenübersichtskarte der Bundesrepublik Deutschland im Maßstab von 1 : 1.000.000 (BÜK 1000 N Version 2.3.1), herausgegeben von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR 2014a), stellt die flächenhafte Verbreitung von Bodenformen, zusammengefasst in Leitbodenassoziationen (= Bodeneinheiten), dar. Im Unterschied zur BÜK 1000 (Utermann et al. 2008) mit ihren 71 bodenkundlichen Legendeneinheiten werden die Polygone der BÜK 1000 N maßgeblich durch eine Boden- und Landnutzungsinformation gekennzeichnet. So sind 66 Legendeneinheiten mit der Landnutzung Ackerland kombiniert, 56 mit Grünland und 63 Legendeneinheiten mit Wald. Berücksichtigt man die durch Regionalisierung (Europäische Klimagebiete) erfolgte Differenzierung, so liegen insgesamt 210 Legendenbeschreibungen und Leitbodenprofile für diese drei Hauptnutzungen vor.

Für jedes Leitbodenprofil sind die Humusform der organischen Schichten, die (Fein-)Bodenarten der mineralischen Horizonte, die Horizontabfolge mit Mächtigkeitsangaben, sowie für jeden Horizont die bodensystematische Einheit, der Gesamt-Stickstoffgehalt und die Carbonatklasse, die pH-Stufe, die Rohdichte, die Lagerungsdichte, die Feldkapazitäten, das Gesamtporenvolumen, die Humusklasse und die Konzentrationen austauschbarer Kationen angegeben.

3.3.2.3 Langjähriges Mittel von Temperatur und Niederschlag

Vom Deutschen Wetterdienst in Offenbach (DWD), Abteilung Klima und Umwelt, wurden folgende Raster-Datenbanken zur Verfügung gestellt:

- Mittlere monatliche Lufttemperatur f
 ür die Monate Januar-Dezember aus dem Zeitraum 1981-2010 (DWD 2012 a)
- Mittlere monatliche Niederschlagsmengen f
 ür die Monate Januar-Dezember aus dem Zeitraum 1981-2010 (DWD 2012b)

Die Daten liegen als ASCII-Datei vor und ergeben eine Matrix von 650 x 880 Punkten. Jeder dieser Punkte verkörpert den Wert einer 1 x 1 km² großen Zelle. Die Grenzen des Datenfeldes reichen von Rechtswert 3.280.000 bis Rechtswert 3.930.000 und von Hochwert 5.230.000 bis Hochwert 6.110.000 des Gauß-Krüger-Koordinatensystems.

3.3.2.4 Mittlere jährliche Sickerwasserrate

Die Daten zur landnutzungsdifferenzierten mittleren jährlichen Sickerwasserrate aus dem Boden für die Klimaperiode 1981-2010 wurden seitens der BGR digital im Oktober 2014 zur Verfügung gestellt (BGR 2014b). Die regionale Zuordnung von Landnutzungsklassen basiert auf CORINE Land Cover 2006 (CLC 2006). Der Datensatz beschreibt die räumliche Verteilung der Sickerwasserraten mit einer Rasterauflösung von 1 x 1 km² auf der geometrischen Bezugsbasis des ATKIS-DLM 1000.

3.3.3 Ableitungen und Regionalisierung der ökologischen Rezeptoren

Während die Datengrundlage für die bodenspezifischen Parameter, die in die Einfache Massenbilanz eingehen, mit der BÜK 1000N (BGR 2014a), insbesondere mit den nutzungstypspezifischen Leitbodenprofilen, ausreichend genau für die Bestimmung der Empfindlichkeit der Ökosysteme ist, reichen die groben Biotoptypen- und Landnutzungstypen der CORINE Land Cover 2006 (CLC 2006) nicht für alle vegetationsspezifischen Parameter für die Massenbilanz aus. Deshalb wurde in diesem Projekt eine Zuordnung von typischen naturnahen/halbnatürlichen Vegetationseinheiten und Ackerfruchtfolgen zu den Leitbodenprofilen der BÜK1000N vorgenommen. Die Nutzungsdifferenzierung der BÜK1000N ist aber auch hierfür zu grob. So gibt es Leitbodenprofile nur für die Nutzungsklassen Ackerflächen, Grünland und Wälder. Die Zuordnung der Vegetationseinheiten zu Leitbodenprofilen erfolgte deshalb zu

- ► BÜK-Leitbodenprofil "Grünland" differenziert nach Wiesen und Weiden (CORINE-Klasse 231), natürliches Grünland (CORINE-Klasse 321), Heiden und Moorheiden (CORINE-Klasse 322), Sümpfe (CORINE-Klasse 411) und Torfmoore (412).
- ► BÜK-Leitbodenprofil "Wälder" differenziert nach Laubwald (CORINE-Klasse 311), Nadelwald (CORINE-Klasse 312).
- ► BÜK-Leitbodenprofil "Ackerflächen" undifferenziert für die CORINE-Klasse 211

Die Zuordnung der naturnahen/halbnatürlichen Vegetationseinheiten basiert auf der Datenbank des BERN-Modells, das bei ÖKO-DATA entwickelt wurde (nähere Erläuterung hierzu siehe BMVBS 2013, S. 135-147).

Für die intensiv genutzten Vegetationskomplexe wurden den Kombinationen aus BÜK1000N-Leitbodenprofil und CORINE-Einheit die aktuell typischen Vegetationseinheiten zugeordnet, d. h. z. B. zum "Nadelwald" überwiegend Forstgesellschaften (außer in den Hochgebirgsregionen), zu "Wiesen und Weiden" überwiegend Wirtschaftswiesen-Gesellschaften. Für die CORINE-Klassen Laubwald (311), natürliches Grünland (CORINE-Klasse 321), Heiden und Moorheiden (CORINE-Klasse 322), Sümpfe (CORINE-Klasse 411) und Torfmoore (412) wurde jeweils die halbnatürliche bzw. naturnahe Pflanzengesellschaft zugeordnet, die aufgrund der Standortbedingungen entsprechend den Angaben der BÜK1000N zum Leitbodenprofil und zum Klimagebiet als typisch zu erwarten ist. Es wurden 226 verschiedene Pflanzengesellschaften zu den 210 Leitbodenprofilen mit jeweils 7 CORINE-Klassen zugeordnet. Insbesondere für die Wälder ist damit nunmehr die Möglichkeit gegeben, eine standorttypische Mischung von Baumarten zu berücksichtigen, so dass ggf. auch eine empfindlichere Mischbaumart anstelle der weniger empfindlichen dominanten Hauptbaumart – wie bisher üblich - das Critical Limit (Kapitel 3.3.5.4) bestimmt. Auch die potenzielle Erntemenge lässt sich für Mischungen von Arten, wie sie in Laub- und Mischwäldern, aber auch im Offenland - mit wenigen Ausnahmen - vorkommen, feiner differenzieren.

Der CORINE-Klasse Ackerflächen (211) wurden Ackerfruchtfolgen zugeordnet, die entsprechend der Bodenform der guten fachlichen Praxis entsprechen. Die Anbauflächenverteilung wurde mit den Angaben des Statistischen Bundesamtes (2014) der Jahre 2007-2013 (Mittelwert über Bundesländer) überprüft und entsprechend angepasst.

Die unterstellten Ackerfruchtfolgen entsprechend guter fachlicher Praxis auf den Bodeneinheiten der BÜK1000N sowie die für die Berechnung der Critical Loads angenommene typische Anbauflächenverteilung der Fruchtfolgeglieder enthält Anhang A3.2.

3.3.4 Methodischer Ansatz und allgemeine Grundlagen

Der methodische Ansatz zur Berechnung von Critical Loads für Schwermetalle folgt in diesem Projekt den Empfehlungen im Manual des ICP Modeling &. Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel V.5). Hierbei werden alle relevanten Flüsse in bzw. aus einer bestimmten Bodenschicht, in der die wesentlichen Stoffumsetzungen geschehen bzw. in denen die Rezeptoren ihren Verbreitungsschwerpunkt haben und die daher für die Wirkungen im System relevant ist, gegenüber gestellt. Die Betrachtung von Schwermetallflüssen, -vorräten und -konzentrationen beziehen sich auf die mobilen bzw. potenziell mobilisierbaren Metalle, nur sie sind für die Betrachtung der Stoffflüsse relevant. Die Massenbilanzgleichung bezieht als Austragspfade aus dem terrestrischen Ökosystem die Aufnahme in die Biomasse mit nachfolgender Ernte und den Austrag mit dem Sickerwasserfluss wie folgt ein:

$$CL(M) = M_u + M_{le(crit)}$$

mit:

CL(M)	=	Critical Load des Metalls M [g ha-1 a-1]
Mu	=	Nettoaufnahme (u ptake) des Metalls M in erntbare Pflanzenteile [g ha ⁻¹ a ⁻¹]
$M_{le(crit)}$	=	tolerierbare (critical) Auswaschung (le aching) des Metalls M aus der betrachte-
		ten Bodenschicht bei ausschließlicher Betrachtung vertikaler Flusse (Sicker- wasser) [g ha ⁻¹ a ⁻¹]
\mathbf{V}_{1} , \mathbf{I}_{2} , \mathbf{P}_{1} , \mathbf{I}_{2}		

Von der Einbeziehung weiterer Terme wird entsprechend den Empfehlungen des Expert Panel for Heavy Metals an das ICP Modeling &. Mapping (EP CLHM 2005, Nagel et al. 2008) abgesehen.

An diesem Ansatz gibt es seit 2004 keine Änderungen (Nagel et al. 2008).

3.3.5 Erhebung und Berechnung der Eingangsdaten

3.3.5.1 Ernteentzug von Schwermetallen

Die Entzugsrate von Schwermetallen mit der Ernte von Biomasse ergibt sich aus dem Ertrag der zu erntenden Biomasse, multipliziert mit dem Stoffgehalt wie folgt:

 $M_u = [M]_{ha} \cdot E$

mit

M_u = Entzugsrate des Schwermetalls [g ha⁻¹a⁻¹]

[M]_{ha} = Metall-Gehalt in der Trockenmasse des Erntegutes (**ha**rvest) [mg kg⁻¹TS⁻¹]

E = Ertrag an Trockenmasse des Erntegutes [kg TS ha^{\cdot 1} a⁻¹].

Die Critical Load sollen definitionsgemäß langfristig keine schädlichen Wirkungen auf die menschliche Gesundheit und auf Struktur und Funktion von Ökosystemen zulassen. Somit sollen sie auch nicht den Status quo hinsichtlich der Bewirtschaftungsweise und der hieraus resultierenden Anbauverhältnisse und Erträge widerspiegeln, sondern langfristig geltenden Grundsätzen einer nachhaltigen Land- und Forstwirtschaft folgen. Deswegen geht der Critical Load-Ansatz von folgenden Annahmen zur Bewirtschaftungsweise der Rezeptorflächen aus:

Wald:

Langfristig ist davon auszugehen, dass die bundesweit bereits begonnene Umstellung auf eine naturnahe Waldbewirtschaftung in Kombination mit der tendenziellen Abnahme von Stickstoffeinträgen die potenzielle Holzertragserwartung sowie die Stoffgehalte auf ein nachhaltig stabiles Gleichgewicht regulieren wird. Deshalb werden für die Ertrags- und Gehaltsabschätzung konservative Annahmen getroffen, die aus Messdaten an mehr oder weniger unbelasteten Standorten abgeleitet wurden.

Acker:

Die Ackererträge sind aus aktuellen Erntestatistiken abgeleitet. Anders als bei der Waldbewirtschaftung sind beim Ackerbau in Deutschland keine Tendenzen einer Extensivierung erkennbar (abgesehen von der Öko-Landwirtschaft, deren Flächenanteil aber in den letzten Jahren auf stabil niedrigem Niveau verbleiben ist). Auch die Düngeverordnung toleriert selbst nach ihrer Novellierung immer noch eine hohe Überschussdüngung mit Stickstoff. Hinsichtlich der Fruchtfolgen, mithin für die Anbauverhältnisse der einzelnen Fruchtarten, wird jedoch davon ausgegangen, dass die Regeln der guten fachlichen Praxis (insbesondere phytosanitär günstige, nährstoffeffektive und bodenerhaltende Fruchtfolgen) angewendet werden, auch wenn gegenwärtig insbesondere die Anbauverhältnisse, aber auch der Düngereinsatz und damit die Erträge in der Landwirtschaft überwiegend abhängig gemacht werden von Förderprogrammen und vom Markt. Im Folgenden muss dies vorausgesetzt werden, da einerseits die Critical Loads langfristig gelten sollen, aber andererseits die Anbauverhältnisse in der längerfristigen Zukunft nicht auf der Basis der heutigen Marktbedingungen prognostiziert werden sollten. Für die Zukunft sollte vielmehr die Anbaustruktur langfristig als im Einklang mit der guten fachlichen Praxis angenommen werden.

Offenland:

Es wird unterschieden in nicht genutzte Offenland-Ökosystemtypen (Torfmoore, Sümpfe, Moorheiden) und solche, die regelmäßig genutzt werden (natürliches Grünland, trockene Heiden, Salzwiesen). Die Abschätzung des Trockenmasseertrages in genutzten Offenland-Lebensräumen geht davon aus, dass eine bestandserhaltende Mindestnutzung bzw. Pflegenutzung notwendig ist. Diese notwendige Mindestnutzung ist aber auch abhängig vom Biomasseproduktionspotenzial des jeweiligen Standortes.

Gehalte an Schwermetallen in der Biomasse

Der jährliche Schwermetallentzug (M_u) für genutzte Wälder ergibt sich aus dem geschätzten Biomasseentzug durch den Jahreszuwachs an Derbholz und Rinde der Haupt- und Nebenbaumarten der aktuellen Bestockung am Standort, multipliziert mit den Durchschnittsgehalten an Schwermetallen in Derbholz und Rinde (vgl. Tabelle 33). Diese Gehalte können als nachhaltig verträglich und somit als langfristig akzeptabel angesehen werden, da hierfür nur Messwerte von nicht spezifisch belasteten Flächen ausgewertet wurden.

M_u für genutzte Grünlandbiotope und Ackerfrüchte ergibt sich aus der Zuwachsrate oberirdischer Grünmasse im Jahr [t TS ha⁻¹ a⁻¹] und den Schwermetall-Gehalten in der Erntemasse (aus Untersuchungen ohne spezifische Belastung) entsprechend Tabelle 34. Diese Werte sind gegenüber der Datengrundlage von 2008 (Nagel et al. 2008) verändert und ergänzt worden.

Baumart	Schwermetallgehalte [M] _{ba} (mg kg ⁻¹ Trockensubstanz)								
	Pb ¹⁾	Cd ¹⁾	Hg ¹⁾	Cu ¹⁾	Ni ¹⁾	Zn ¹⁾	As ²⁾	Cr ¹⁾	
Eiche	2,97	0,13	0,02	2,19	1,58	5,27	0,02	0,74	
Buche	1,52	0,15	0,02	1,77	1,28	10,53	0,02	0,54	
Fichte	1,29	0,36	0,02	1,67	1,18	31,2	0,01	0,42	
Kiefer	1,75	1,31	0,02	1,35	1,85	25,24	0,01	0,35	
alle anderen im Durchschnitt	1,81	0,29	0,02	1,91	1,48	11,20	0,015	0,53	

Tabelle 33:Schwermetallgehalte (mg/kg Trockensubstanz) in Derbholz mit Rinde der Hauptbaumar-
ten

Quellen: ¹⁾ Jacobsen et al. (2002), ²⁾Reinds et al. (2006)

Pflanzenart	Schwermetallgehalte [M] _{ha} (mg kg ⁻¹ Trockensubstanz)									
	Pb	Cd	Hg	Cu	Ni	Zn	As	Cr		
Winterweizen ^{a)}	0,03	0,03	0,005	4,6	0,23	20	0,035	0,48		
Roggen	0,07	0,02	0,005	4,6	0,44	26	0,035	0,25		
Wintergerste ^{b)}	0,1	0,02	0,01	3,6	0,23	25	0,035	0,27		
Raps ^{c)}	0,1	0,08	0,003	3,8	0,81	39	0,035	1,7		
Kartoffeln	0,04	0,09	0,001	4,6	0,23	14	0,035	0,17		
Zuckerrübe	0,2	0,08	0,01	3,9	0,8	12	0,035	0,47		
'Silomais ^{e)}	0,2	0,04	0,02	3,5	0,58	19	0,035	0,73		
Gras und Grün- landpflanzen ^{d)}	0,99	0,13	0,03	6,2	0,91	49,5	0,1	0,395		

Tabelle 34:	Schwermetallgehalte (mg/kg Trockensubstanz) von Ackerfrüchten und Grasland
-------------	--

Quelle: Knappe et al. 2008

- a) Der Anteil der Anbaufläche mit Sommerweizen ist gegenüber der Anbaufläche von Winterweizen vernachlässigbar gering (Statistisches Bundesamt 2014) und wird daher in der Fruchtfolge nicht betrachtet
- b) Der Anteil der Anbaufläche mit Sommergerste ist gegenüber der Anbaufläche von Wintergerste vernachlässigbar gering (Statistisches Bundesamt 2014) und wird daher in der Fruchtfolge nicht betrachtet
- c) Der Anteil der Anbaufläche mit Sonnenblumen ist gegenüber der Anbaufläche von Raps vernachlässigbar gering (Statistisches Bundesamt 2014) und wird daher in der Fruchtfolge nicht betrachtet
- d) Der Anteil der Anbaufläche mit Leguminosen ist gegenüber der Anbaufläche von Grünlandpflanzen vernachlässigbar gering (Statistisches Bundesamt 2014) und wird daher in der Fruchtfolge nicht betrachtet
- e) unter Silomais wird hier Energiemais, Grünmais und der Futter-Silomais zusammengefasst

Abschätzung des pflanzenphysiologischen Ertragspotentials zu erntender Biomasse

Der Entzug von Biomasse muss aus der Biomasseproduktivität in Abhängigkeit vom Ertragspotential des Standortes unter Berücksichtigung des pflanzenphysiologisch möglichen Biomassezuwachses abgeschätzt werden. Als Grundlage für die standorttypspezifische Abschätzung des potenziellen Holzertrages in Wäldern dienen Ertragstafeln des laufenden Zuwachses der Baumarten. Über 100 Jahre wird der durchschnittliche Zuwachs pro Jahr für die Ertragsklasse I und die schlechteste Ertragsklasse der Baumart aus den Ertragstafeln ermittelt (Tabelle 35). Die so ermittelten Festmaß-Zuwächse (DGZ 100) werden in Gewichtsmaß-Zuwächse mit Hilfe der baumartenspezifischen Holz- und Rindendichte (Nagel et al. 2008) umgerechnet.

Baumart	Spannen der d nach 100 Jahre	wachsraten	Ertragstafel von:		
	Ertragsp der besten E für Stammho E _{maxt}	ootential rtragsklasse I olz mit Rinde (Phyto)	Ertragsp der schlechte kla für Stammhe E _{min(}	ootential esten Ertrags- sse olz mit Rinde Phyto)	
	[m³ ha⁻¹ a⁻¹]	[m³ ha⁻¹ a⁻¹]	[m³ ha ⁻¹ a ⁻¹]	[m³ ha⁻¹ a⁻¹]	
Gemeine Kiefer	7,8	3,1	2,0	0,8	Wiedemann 1943 ¹⁾
Gemeine Fichte	12,0	4,9	7,5	3,2	Wiedemann 1936 ¹⁾
Berg-/ Schwarzkie- fer	1,5	0,7	1,5	0,7	geschätzt
Weiß-Tanne		3,5		3	Schober 1967 ¹⁾
Europ. Lärche		2,5		2	Schober 1967 ¹⁾
Rotbuche	7,8	4,9	3,7	2,4	Schober 1967 ¹⁾
Stiel- und Trauben- Eiche	6,7	4,0	2,1	1,4	Mitcherlich 1950
Erle	8,0	4,3	4,5	2,5	Mitcherlich 1950
Birke, alle Arten	4,9	2,8	3,6	2,1	Schwappach 1912
Weiden, alle Arten	5,0	2,3	3,4	1,6	Schober 1975
Ulme, alle Arten		4,8		3	Bauer 1953
Esche	6,2	3,7	4,1	2,5	Wimmenauer 1919
Eberesche		2,1		1,6	Erteld 1962
Linde, alle Arten	8,8	5,2	5,0	3,0	Böckmann 1990
Ahorn, alle Arten		3,5		2,5	Schober 1987
Pappeln, Espe	13,2	4,5	3,0	1,1	Knapp 1973
Hainbuche		5,6		2,5	Schober 1987

Tabelle 35:	Spannen der Ertragspotenziale der Haupt- und Nebenbaumarten

¹⁾ In Schober 1975

Es wird angenommen, dass die Rinde, wie derzeit allgemein üblich, aus dem Bestand ausgetragen wird.

Die Abschätzung des Trockenmasseertrages in den halbnatürlichen Offenland-Rezeptorflächen sowie für Wirtschaftswiesen- und weiden (Tabelle 36) geht davon aus, dass eine Nutzung oder Pflege-Nutzung durchgeführt wird.

Vegetationstyp	Trockenmasseertrag bei extensiver Grünlandnutzung [t TS ha ⁻¹ a ⁻¹]				
	E _{max(Phyto)}	E _{min(Phyto)}			
Magerrasen	1,5	0,65			
Heiden	1,4	0,8			
Kalktrockenrasen	1,7	0,11			
Nass- und Feuchtwiesen	2,5	0,1			
Flutrasen und Auenwiesen	1,6	0,8			
Frischwiesen/ Frischweiden	1,5	0,65			

Tabelle 36:Spannen der Ertragspotenziale der verschiedenen Vegetationstypen der waldfreien na-
turnahen/halbnatürlichen Ökosysteme

Abgeleitet aus Bobbink und Hettelingh (2011), Bohner et al. (2007), Bolte (2006), Brenner et al. (2004), Briemle et al. (1991), Brünner und Schöllhorn (1972), Dierschke und Briemle (2008), Elsäßer (2007), Keienburg und Prüter (2004), Klapp (1954), Luthardt et al. (2008), Petersen (1981), Quade (1993), Ruhr-Stickstoff-Aktiengesellschaft (Hrsg.) (1988), Stein-Bachinger et al. (2004), Tischew (2011).

Die Erträge der Nutzpflanzen bei intensiver Landwirtschaft (Tabelle 37) sind aus den Angaben des Statistischen Bundesamtes (2014) der Jahre 2007-2013 (Mittelwert) entnommen. Dabei wurden die unteren Spannengrenzen den Angaben aus dem Bundesland mit den geringsten Erträgen entnommen, wie auch die Spannenobergrenze dem Mittel der Jahre 2007-2013 des Bundeslandes mit den höchsten Erträgen dieser Fruchtart entspricht.

Tabelle 37:Ertragsspannen Emin(Phyto)-Emax(Phyto) zwischen den Bundesländern jeweils im Mittel der
Jahre 2007-2013

Erträg	Erträge in t Trockensubstanz pro Jahr														
Weize	en	Rogge	n	Gerste	1	Rauhfu	utter	Beta Rübe	- :n	Karto feln	of-	Raps		Silon	nais
E _{min} (Phyto)	E _{max} (Phyto)	E _{min} (Phyto)	E _{max} (Phyto)	E _{min} (Phyto)	Ema x (Phy- to)	E _{min} (Phyto)	E _{ma} x (Phy- to)	Emin (Phy- to)	E _{max} (Phyto)	Emin (Phy- to)	E _{ma} x (Phy- to)	E _{min} (Phyto)	Ema x (Phy- to)	Emin (Phy- to)	E ma x (Ph y- to)
6,2	8,8	4,2	6,5	5,3	7,6	5,3	8,6	58	72	35	48	3,4	3,9	34	5 1

Quelle: Statistisches Bundesamt (2014)

Der zu erntende Biomasseertrag ist abhängig vom Ertragspotential des jeweiligen Standortes (siehe nächster Abschnitt). Anhand des standortspezifischen Ertragspotenzials (Bodenfruchtbarkeit) kann innerhalb der angegebenen Ertragsspannen ein potenzieller Ertrag interpoliert werden.

Ermittlung der bodenspezifischen Ertragspotenziale

Die nachfolgend beschriebene Methode dient dazu, einen diskreten bodentypischen Ertragswert innerhalb der vegetationstypspezifischen Ertrags-Spanne (Tabelle 36 und Tabelle 37) unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Bodeneigenschaften zu konkretisieren. Dazu ist zunächst die bestmögliche Abschätzung der Bodenfruchtbarkeit in Abhängigkeit von den Bodenarten der Horizonte der Leitbodenprofile der BÜK1000N (BGR 2014a) notwendig (Tabelle 38). Das Modell wurde in Schütze et al. (2003) entwickelt und in auch Nagel et al. (2008) ausführlich beschrieben. Nachfolgende Ausführungen beziehen sich daher auf die Änderungen und Ergänzungen gegenüber dem Stand 2008.

Verschiedene Bodeneigenschaften werden im Hinblick auf die Ertragsbildung jeweils als sehr ungünstig (Wert 1) bis sehr günstig (Wert 5) eingeschätzt. Diese Werte beziehen sich auf die Horizonte der Leitbodenprofile aus der BÜK-1000N-Datenbank. Zur Überprüfung der in Nagel et al. (2008) genutzten Ertragspotenziale wurde die Karte des "Ackerbaulichen Ertragspotenzials der Böden in Deutschland" (BGR 2013) auf Basis des "Soil Quality Rating" (SQR) (Mueller et al. 2007) herangezogen. Eine komplette Übernahme dieser Karte war nicht zielführend, da dieses Verfahren nur für Acker und nicht auch für Wälder, für natürliches Offenland, Wiesen und Weiden entwickelt wurde. Der Vergleich der Punktwerte hat jedoch zu Veränderungen der Bewertung in Bezug auf den Grund-/Stauwassereinfluss und in Bezug auf die Durchwurzelbarkeit in Tabelle 38 gegenüber dem Stand in Nagel et al. (2008) geführt.

		Bodenwasserhaushalt									
nlei			Nährstoffhaushalt Bodengefüge					ge			
Bodenart nach bodenkundlicher Kartiera tung 5. Auflage	Entstehung	Porenanteil <0,2 µm mit Tot- wasser (pF>4,2)/ Staunässe- bildung	Austrocknungsgefährdung	Grund- o. Stauwassereinfluß	nutzbare Feldkapazität (Po- renanteil 0,2-50 µm mit pflan- zenverfügbarem Haft-wasser pF4,2-1,8)	Humusspiegel in Abhängigkeit von der Bodenart	Kationenaustauschkapazität	Gründigkeit	Durchwurzelbarkeit (Poren- anteil >50 µm mit Luft, pF<1,8)	Verfestigungsneigung im B- Horizont	Relatives Ertragspotenzial EP _{(geo-hoz})
Ss	D	5	1	1	1	1	1	3	5	1	2,00
	Al	5	1	4	1	1	1	4	5	1	2,36
	к	5	1	1	1	1	1	2	5	1	1,89
	V	5	1	1	1	1	1	2	5	1	1,89
Su2, Sl2,	D	4	2	1	3	1	2	3	5	1	2,50
SI3,	Al	4	2	5	3	1	2	4	5	1	2,94
St2	к	4	2	4	3	1	2	3	5	1	2,75
	V	4	2	3	3	1	2	2	5	1	2,56
Su3, Su4	D	3	3	2	4	2	2	3	5	2	3,00
·	Lö	3	3	2	4	2	2	5	5	2	3,22
	Al,K	3	3	5	4	2	2	4	5	2	3,36
	V	3	3	3	4	2	2	2	5	2	2,97
	Vg	3	3	1	4	2	2	1	5	2	2,69
Slu, Sl4,	D	3	4	2	5	2	3	3	4	3	3,39
St3	Lö	3	4	2	5	2	3	5	4	3	3,61

Tabelle 38:Klassifizierung bodenart- und -entstehungs abhängiger Bodeneigenschaften der einzel-
nen Horizonte eines Bodenprofils bezüglich des Einflusses auf potenzielle Acker-, Holz-
und Grünlanderträge

		Bodenwasserhaushalt							1		
nlei-					Nährsto	offhausha	lt		Bodengefü	ge	
Bodenart nach bodenkundlicher Kartieraı tung 5. Auflage	Entstehung	Porenanteil <0,2 µm mit Tot- wasser (pF>4,2)/ Staunässe- bildung	Austrocknungsgefährdung	Grund- o. Stauwassereinfluß	nutzbare Feldkapazität (Po- renanteil 0,2-50 µm mit pflan- zenverfügbarem Haft-wasser pF4,2-1,8)	Humusspiegel in Abhängigkeit von der Bodenart	Kationenaustauschkapazität	Gründigkeit	Durchwurzelbarkeit (Poren- anteil >50 µm mit Luft, pF<1,8)	Verfestigungsneigung im B- Horizont	Relatives Ertragspotenzial EP _(geo-hoz)
	Al,K	3	4	5	5	2	3	5	4	3	3,86
	V	3	4	3	5	2	3	2	4	3	3,36
	Vg	3	4	1	5	2	3	1	4	3	3,08
ls7-/1	D	3	4	3	5	3	4	3	3	4	3,69
Lt2,	Lö	3	4	2	5	3	4	5	3	4	3,83
Lts, Ts4,	Al	3	4	5	5	3	4	5	3	4	4,08
Ts3	К	3	4	4	5	3	4	3	3	4	3,78
	V	3	4	3	5	3	4	2	3	4	3,58
	Vg	3	4	1	5	3	4	1	3	4	3,31
Uu. Us.	D	2	3	3	4	4	3	3	2	5	3,33
Ut2-4,	Al	2	5	5	4	4	4	5	2	5	4,00
Uls, Lu	Lö	2	3	2	4	4	4	5	2	5	3,58
	К	2	3	4	4	4	3	4	2	5	3,53
	V	2	3	3	4	4	3	2	2	5	3,22
	Vg	2	3	1	4	4	3	1	2	5	2,94
	D	1	1	2	3	5	5	3	1	5	3,03
Lt3,	Al	1	1	5	3	5	5	4	1	5	3,39
Tuz-4, Ts2, Tl,	Lö	1	1	2	3	5	5	5	2	5	3,36
Tt	К	1	1	4	3	5	5	1	1	5	2,97
	V	1	1	3	3	5	5	2	1	5	3,00
	Vg	1	1	2	3	5	5	1	1	5	2,81
Hh		1	1	1	1	5	1	1	1	1	1,44
Hn		1	1	1	2	5	3	4	3	1	2,42

Erläuterung:

EP_(geo-hor) = relatives, durch den Boden bestimmtes Ertragspotenzial

1= sehr ungünstig, 2= ungünstig, 3= mäßig günstig, 4= günstig, 5= sehr günstig

D = diluviale Böden des wellig-hügeligen Flachlandes und der Hügelländer

Lö = Böden der Lößgebiete

Al = alluviale Böden der breiten Flusstäler, einschließlich Terrassenflächen und Niederungen

K = Böden der Küstenregionen

V = Verwitterungsböden aus Festgesteinen und deren Umlagerungsdecken der Berg- und Hügelländer

Vg = gesteinsreiche Verwitterungsböden des Hochgebirges

Zusammenführung der Einzelparameter

Die hier zur Kennzeichnung des Ertragspotenzials beschriebenen einzelnen Kriterien können nicht gleichgewichtet in die Abschätzung des Ertragspotenzials eingehen, weil einzelne Kriterien einen größeren Einfluss als andere auf das Pflanzenwachstum haben und mitunter auch auf mehrere verschiedene physiologische Vorgänge einwirken. Aus diesem Grunde wurden die einzelnen Parameter der Tabelle 38 entsprechend der folgenden Übersicht (Tabelle 39) zu Haupteinflussfaktoren der Ertragsbildung zusammengefasst und die Mittelwerte der Klassen gebildet. Anschließend wurde der Mittelwert aus den 3 Haupteinflussfaktoren ermittelt. Er entspricht dem Ertragspotenzial des Bodenhorizontes EP_(geo-hor) in der letzten Spalte der Tabelle 38.

Tabelle 39: Haupteinflussfaktoren der Ertragsbildung

Einzelparameter	Synthese zu den Haupteinflussfaktoren:
Nutzbare Feldkapazität Porenanteil mit Totwasser (Staunässeneigung) Austrocknungsgefährdung Grund- und Stauwassereinfluss	Bodenwasserhaushalt
Kationenaustauschkapazität Nutzbare Feldkapazität Humusspiegel	Nährstoffhaushalt
Gründigkeit Durchwurzelbarkeit Verfestigungsneigung	Bodengefüge

Das relative *Ertragspotenzial des Bodens EP*_(geo-hor) wurde nun für jeden Horizont des Leitbodenprofils der BÜK 1000N basierend auf den Angaben zur Bodenart zugeordnet und dann bis zur Durchwurzelungstiefe (folgender Abschnitt) tiefenstufengewichtet gemittelt. Das entspricht dem Ertragspotenzial des Referenzprofils EP_(geo-prof).

Ermittlung der durchwurzelten Bodentiefe in Abhängigkeit von vegetations- und bodenspezifischen Durchwurzelungspotenzialen

Anhand der zugeordneten Pflanzengesellschaft (Kapitel 3.3.3) konnte die vegetationsspezifische Durchwurzelungstiefe der dominanten und charakteristischen Arten abgeschätzt werden. Dies war die Voraussetzung für die Mittelwertbildung der horizontweisen Angaben der Critical Load-relevanten Parameter aus den Leitbodenprofilen.

Die tatsächlich von Pflanzen durchwurzelte Tiefe hängt zum anderen aber auch von der durchwurzelbaren Tiefe des Bodens ab.

Geht man zunächst von der potenziellen Länge der Hauptwurzeltracht (= 80 % der Gesamtwurzelmasse) der charakteristischen Hauptbaumart bzw. der charakteristischen Art der Krautschicht aus (Köstler et al. 1968), kann man die in Tabelle 40 dargestellten potenziellen Durchwurzelungstiefen für die Hauptbestände angeben. Diese potenziellen Wurzellängen werden bei den meisten Vegetationstypen (außer bei den Pionierbaumarten Bergkiefer, Espe und Birke) eingeschränkt durch den oberen Rand des terrestrischen Unterbodenhorizontes (C-Horizonte), bei nässemeidenden Baumarten durch den oberen Rand des sauerstofffreien (reduzierten) Grundwasser- bzw. Stauwasserhorizontes (Gr/Sr-Horizonte) oder bei allen Vegetationstypen durch den oberen Rand des durch Reduktgase geprägten Horizontes (Y-Horizonte). Das bedeutet, die vegetationstypische potenzielle Wurzellänge wird durch das standortspezifische Bodenprofil abgeschnitten in den Fällen, bei denen die potenzielle Wurzellänge größer ist als die obere Tiefe des obersten nicht durchwurzelbaren Horizontes (= physiologische Gründigkeit).

Tabelle 40:Länge der Hauptwurzeltracht nach Köstler et al. (1968) und die Wurzeltracht abschnei-
dende nicht durchwurzelbare Horizonte (aus Nagel et al. 2008, ergänzt und aktualisiert)

Vegetationstyp/ Hauptbaumart	Potenzielle Haupt- wurzellänge [cm]	nicht durchwurzelbare Horizonte (nach Bodenkundlicher Kartieranlei- tung KA 5, S. 83ff
Ackerfruchtarten	40	C C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg
Natürliches Grünland	40	C;P;Gr;Y;F;Go;S
Heiden und Moorheiden	20	C;P;Gr;Y;F;Sr;S
Sümpfe	110	C; P; Y; Fr
Torfmoore	90	C; P; Y; Fr
Wiesen und Weiden	60	C C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg
Gemeine Kiefer	180	C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg
Fichte	80	C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg
Rotbuche	80	C;P;Gr;Y;F;Go;Sr;Sd;Sg
Erle, Esche	80	C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg
Eiche (alle Arten)	180	C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg
Lärche, Douglasie	100	C;P;Gr;Y;F;Go;S
Ahorn (alle Arten)	80	C;P;Gr;Y;F;Go;S
Pappeln, Espe	120	
Bergkiefer	180	
Schwarzkiefer	180	C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg
Birke	100	
Linde (alle Arten), Hainbuche, Robinie	100	C;P;Gr;Y;F;Go;S
Weiden u. Ulmen (alle Arten)	60	C;P;Gr;Y;F;Sr;Sd;Sg

Die obere Tiefe der anstehenden schneidenden Horizonte wurde der Datenbank zu den Leitbodenprofilen der BÜK 1000N entnommen.

Die Mittelwertbildung der bodenspezifischen relativen Ertragspotenziale EP_{geo} der einzelnen Horizonte erfolgt nun tiefenstufengewichtet bis zur realen Durchwurzelungstiefe. Anschließend wird das Ergebnis in Abhängigkeit von Klimaparametern wie folgt korrigiert:

Ermittlung der klimaspezifischen Ertragspotenziale

Bis hierher sind ausschließlich boden- und vegetationstypspezifische Parameter in die Bestimmung der Ertragspotenziale eingegangen.

Ein klimaökologisch hochsignifikanter Einflussfaktor ist vor allem die Länge der Vegetationszeit. Je länger die Vegetationszeitdauer im Jahr (Anzahl der Tage im Jahr mit einer durchschnittlichen Lufttemperatur von ≥ 10 °C), desto größer die Nettoprimärproduktion. Gute bis sehr gute Zuwachsleistungen werden durch Vegetationszeiten von 100 Tagen (mittlere montane Lagen) bis 200 Tagen (planare Tieflandlagen) gefördert, während im hochmontanen und alpinen Raum (60-100 Tage) die Nettoprimärproduktion deutlich unter das bodenspezifische Ertragspotenzial sinkt. Deshalb wird das bodenspezifische Ertragspotenzial mit der Vegetationszeitdauer wie folgt in Beziehung gesetzt:

$$EP_{(Klima-korr)} = EP_{(geo-prof)} \cdot (1 + \frac{VZ-165}{200-100})$$

wobei:

EP_(klima-korr) = klimakorrigiertes Ertragspotenzial

EP_(geo-prof) = bodenspezifisches Ertragspotenzial des durchwurzelten Bodenprofils (zwischen 1...5)

VZ = Vegetationsdauer (langjährig durchschnittliche Anzahl der Tage im Jahr mit einer durchschnittlichen Lufttemperatur von ≥ 10 °C), wobei 165 d der Mittelwert in Deutschland ist, 100 d-200 d beträgt die Spanne in Deutschland.

Berechnung des Biomasse-Ertrages

Die Differenz aus Minimum und Maximum der Erträge laut Ertragstafeln (Tabelle 35 und Tabelle 36) wird nun entsprechend dem relativen Ertragspotenzial $EP_{(klima-korr)}$ interpoliert.

Der Ertrag ergibt sich somit unter Berücksichtigung der vegetationsspezifischen Ertragsspannen und des standortspezifischen relativen Ertragspotenzials wie folgt:

 $E = E_{min(Phyto)} + (((E_{max(Phyto)} - E_{min(Phyto)})/4) \cdot (EP_{(klima-korr)} - 1))$

3.3.5.2 Austrag von Schwermetallen mit dem Wasserabfluss

Die tolerierbare (critical) Auswaschung (leaching) des Metalls M ($M_{le(crit)}$) aus der betrachteten Bodenschicht bei ausschließlicher Betrachtung vertikaler Flüsse (Sickerwasser) [g ha⁻¹ a⁻¹] ergibt sich aus dem Produkt von Sickerwasserrate (Q_{le}) und kritischer Konzentration des Metalls im Sickerwasser ([M]_{sdw(crit)}).

Die Ermittlung der Sickerwasserrate unterhalb des zu betrachtenden Bodenhorizonts wird wie folgt durchgeführt:

Für die verschiedenen Schutzgüter sind unterschiedliche Bodenhorizonte und dementsprechend die Sickerwasserraten in diesen Bodenhorizonten relevant (Tabelle 41).

Die Grundlageninformation zur Bestimmung des Wasserabflusses aus der betrachteten Bodenschicht liefert die Karte der Sickerwasserrate für Deutschland (BGR 2014b). Der originale Datensatz der BGR beinhaltet auf ca. 3,3 % der Rasterzellen Werte, welche kleiner oder gleich 0 sind. Bei einer Berechnung der Critical Loads mit der einfachen Massenbilanzmethode führen negative Sickerwasserraten zu nicht plausiblen Ergebnissen. Es wurde daher eine Methode angewendet, welche im Mapping Manual (S. V – 48) vorgeschlagen wird, um die ursprünglichen Sickerraten mit Hilfe der Niederschlagsdaten (Langzeitmittelwert 1981-2010) des DWD wie folgt zu korrigieren: Für jedes Grid wird der Jahresniederschlag mal 0,05 (= 5 % des Niederschlages) berechnet. Dann wird die originale Sickerwasserrate aus BGR (2014b) in jedem Grid verglichen mit 5% des Niederschlages. Der jeweils größere Wert bildet den neuen Wert für die Sickerwasserrate im Grid. Mit dieser Methode können negative Werte ausgeschlossen werden.

Diese korrigierten Wasserflüsse sind den Sickerwasserraten unterhalb der durchwurzelten Bodenschicht (z) gleichzusetzen (Q_{le,z}). Diese Wasserflüsse werden in der Berechnung von CL(M)_(drink) unverändert verwendet. Es wird davon ausgegangen, dass der Schutz des Grundwassers hinsichtlich der Überschreitung der Trinkwassergrenzwerte durch anthropogene Schadstoffeinträge garantiert ist, wenn die Grenzwerte im Sickerwasser direkt unterhalb der Wurzelzone nicht überschritten werden. Mögliche Wechselwirkungen der ausgewaschenen Metalle mit Austauscherplätzen in tieferen Schichten der wasserungesättigten Bodenzone werden dabei vernachlässigt.

Bodenmikroorganismen, Invertebraten und empfindliche Pflanzenarten der Krautschicht sind überwiegend in den humusreicheren O- und A-Horizonten verbreitet bzw. verwurzelt. Deshalb wird für die CL(M)_{eco} und CL(Cd)_(food) die geringer mächtige biologisch aktive Bodenschicht (zb) betrachtet, wo der Wasserabfluss (hier als Bodenwasser bezeichnet) höher ist. Die Differenz-Wassermenge zum Sickerwasserfluss unterhalb der Wurzelzone wird in den tieferen Bodenschichten durch Pflanzenwurzeln aufgenommen und unterliegt der Transpiration.

Tabelle 41:Verwendete Sickerwasserraten für die Berechnung des Schwermetallaustrags mit dem
Sickerwasser für die verschiedenen Schutzgüter

Schutzgut:	Trinkwasser	Ökosysteme	Nahrungsmittel (Weizen)
	V	erwendete Sickerwasserra	te
Pb	Q _{le(z)}	Q _{le(zb)}	
Cd	Q _{le(z)}	Q _{le(zb)}	Q _{le(zb)}
Hg	Q _{le(z)}	Q _{le(zb)}	
As	Q _{le(z)}	Q _{le(zb)}	
Cu	Q _{le(z)}	Q _{le(zb)}	
Ni		Q _{le(zb)}	
Zn		Q _{le(zb)}	
Cr	Q _{le(z)}	Q _{le(zb)}	

 $Q_{le(zb)}$ wird wie folgt berechnet:

 $Q_{le(zb)} \!= Q_{le(z)} + (1 \! - \! f_{ET(zb)}) * (P \! - \! (P \! * \! f_i))$

wobei:

 $Q_{le(zb)}$ = Sickerwasserrate unterhalb der biologisch aktiven Bodenhorizonte (zb)

Q_{le(z)} = Sickerwasserrate unterhalb der gesamten durchwurzelten Bodenschicht (z) (entspricht der Rate aus der Sickerwasserkarte der BGR (2014b)

P = Niederschlag (durchschnittliche Jahressumme über 30 Jahre von 1981-2010)

 $f_{ET(zb)}$ = Faktor zur Bestimmung des Anteils der Evapo-Transpiration aus der biologisch aktiven Bodenschicht (zb)

 $f_{i(zb)}$ = Faktor zur Berechnung der Anteile der Interzeption am Jahresniederschlag

Folgende generalisierenden Annahmen werden getroffen (Nagel et al. 2008):

 $f_{ET(zb)} = 0,25 \text{ für CL(Hg)}_{eco}$

$$f_{ET(zb)} = 0.5 \text{ für CL}(Pb)_{eco}, \text{ CL}(Cd)_{eco}, \text{ CL}(As)_{eco}, \text{ CL}(Cu)_{eco}, \text{ CL}(Ni)_{eco}, \text{ CL}(Zn)_{eco}, \text{ CL}(Cr)_{eco}$$

 $f_{i(zb)}$ = 0,15 für Acker- und Grünlandvegetation

 $f_{i(zb)}$ = 0,25 für Rot- und Hainbuche

- $f_{i(zb)}$ = 0,20 für alle anderen Laubbäume
- $f_{i(zb)}$ = 0,35 für Nadelbäume

3.3.5.3 Kritische Konzentrationen zum Schutz der menschlichen Gesundheit

Schutz des Trinkwassers

Gegenwärtig gibt es weltweit verschiedene gesetzliche Grenzwerte bzw. Richtwerte für die Konzentration von Schwermetallen im Trinkwasser. Eine Übersicht gibt Tabelle 42.

Tabelle 42:Aktuell international verwendete Richt- und Grenzwerte für die Konzentration von
Schwermetallen im Trinkwasser

Richtlinie bzw. Verordnung	Richt- und Grenzwerte für die Konzentration im Trinkwasser [mg l $^{-1}$]							
	Pb	Cd	Hg	As	Cr	Cu	Zn	
Trinkwasser-Verordnung für Deutschland (TrinkwV 2001)	0,01	0,003	0,001	0,01	0,05	2	-	
WHO-Richtlinie (WHO 2011)	0,01	0,003	0,001 ¹⁾ 0,006 ²⁾	0,01	0,05	2	-	
EU-Directive 2013/39/EU (Euro- pean Commission 2013)	0,01	0,005	0,001	0,01	0,05	2		
USA (EPA 2014)	0,015	0,005	0,002	0,01	0,1	-		
Kanada (Health Canada 2012)	0,01	0,005	0,001	0,01	0,05	1	5	

1) für Quecksilber gesamt

²⁾ für anorganisches Quecksilber

Die Critical Limits für Schwermetalle im Trinkwasser, wie sie im Mapping Manual (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016) mit Verweis auf die WHO-Richtlinie (WHO 2004b) für Pb, Cd, Hg angegeben sind, entsprechen den Grenzwerten der aktuell gültigen Trinkwasser-Verordnung für Deutschland (TrinkwV 2001). Deshalb werden in diesem Projekt generell die Grenzkonzentrationen der Trinkwasser-Verordnung für Deutschland (TrinkwV 2001) für die CL(M)-Berechnung eingesetzt (Tabelle 42, 1. Zeile, Fettdruck).

Schutz von pflanzlichen Nahrungsmitteln (Weizenkorn)

Der EU-Grenzwert für Cadmium im Weizenkorn von 0,2 [mg kg⁻¹ FM⁻¹] (Kommission der Europäischen Gemeinschaft (2001), EG Nr. 466/2001) ist nicht wirkungsbasiert abgeleitet. Deshalb wird im vorliegenden Projekt der Cadmium-Grenzwert für Weizen entsprechend der Empfehlung des Manuals des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004-2016) anstelle der EU-Verordnung (EC No. 1881/2006) verwendet (Tabelle 43, 2. Zeile) (zur Begründung siehe Nagel et al. 2008).

Tabelle 43: Kritische Konzentrationen von Cadmium in Weizen

Richtlinie bzw. Verordnung	Schutzgut	Einheit	Cd
EU-Verordnung (EC No. 1881/2006)[2]	Nahrungsmittel	mg/kg	0,2
Manuals des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004-2016)	Weizenkorn	mg/kg	0,1

Da die Konzentration (Critical Limit) für die Pflanze ([Cd]_{ha(crit)}) gegeben ist, kann die kritische Konzentration in der Bodenlösung ([Cd]_{sdw(crit)}) mit Transferfunktionen nach Römpkens et al. (2004) iterativ bestimmt werden (Details siehe Nagel et al. 2008). [Cd]_{sdw(crit)} beträgt dann 0,8 [mg m⁻³].

3.3.5.4 Kritische Konzentrationen zum Schutz von Ökosystemen und Biodiversität

Die ökotoxikologische Wirkung von Schwermetallionen hängt von ihrer Konzentration im Bodenwasser ab, da nur freie aktive Ionen in die Biomasse aufgenommen werden und so in Interaktion mit den Organismen treten.

Im Rahmen einer Europa-weiten Untersuchung zu CL(M) wurden 2006/07 Critical Limits für eine Reihe von Schwermetallen aus der Literatur zusammengestellt (Hettelingh et al. 2007, Reinds et al. 2006).

Die Bestimmung der kritischen Gesamtkonzentration von Schwermetallen im Bodenwasser mit Wirkungsbezug zu Bodenmikroorganismen, Invertebraten und Pflanzen muss für jedes betrachtete Schwermetall entsprechend seiner chemischen Eigenschaften nach unterschiedlichen Ansätzen wie folgt durchgeführt werden.

Ermittlung der kritischen Konzentration der freien Schwermetall-Ionen Cd, Pb, Cu, Zn und Ni in der Bodenlösung

Für eine Reihe von Schwermetallen (Cd²⁺, Pb²⁺, Cu²⁺, Zn²⁺, Ni²⁺) hängt die Toxizität in hohem Maße von der gleichzeitigen Anwesenheit von nicht toxischen Kationen (Na⁺, Ca²⁺, H⁺) ab, die die Aufnahme der toxischen Schwermetalle in die Organismen einschränken und so die Organismen schützen. Die Konzentration der schützenden konkurrierenden Kationen ist eng korreliert mit dem pH-Wert. Die Konzentration freier Schwermetall-Ionen (Tabelle 44) ist also eine Funktion des pH-Wertes des Bodenwassers wie folgt:

 $\log[M]_{free,swd(crit)} = \alpha \cdot pH + \gamma$ (Lofts et al. 2004, de Vries et al. 2015).

Tabelle 44:Koeffizienten für die Berechnung der kritischen Konzentration freier Ionen in Abhängig-
keit von der Konzentration von freien Ionen mit Schutzwirkung (= Funktion des pH-
Wertes) nach deVries et al. (2007)

Koeffizienten	Cd	Pb	Cu	Ni	Zn
α	-0,32	-0,91	-1,23	-0,64	-0,31
V	-6,34	-3,8	-2,05	-2,59	-4,63

Berechnung der kritischen Gesamtkonzentrationen reaktiver Metalle im Boden für Cd, Pb, Cu, Zn, Ni

Metalle kommen im Bodenwasser nicht nur als freie Ionen, sondern auch in Form von löslichen Komplexen wie folgt vor:

- ► Anorganische Komplexe ([M]OH⁺, [M]HCO₃⁺, [M]Cl⁺ usw.)
- ► an die gelöste organische Masse (DOM) gebundene Metalle ([M]_{DOM})
- ► An suspendierte Partikel (SPM) gebundene Metalle ([M]_{SPM}

Nachdem die Critical Limits-Funktionen für die Konzentration freier Schwermetall-Ionen abgeleitet sind, besteht der nächste Arbeitsschritt zur Critical Load-Berechnung darin, darauf aufbauend die kritischen Gesamtkonzentrationen in der Bodenlösung [M]_{swd(crit) (eco)} abzuleiten, die für die Berechnung der tolerierbaren Auswaschung benötigt wird. Das Manual 5.5 empfiehlt, diese Transformation mit Hilfe eines Chemical Speciation Models, z. B. dem Windemere Humic Aqueous Model, WHAM (Tipping et al. 2010a, b) durchzuführen. Dieses Modell (Version 6) wurde speziell an die Anforderungen der Critical Limit-Ableitung für Böden angepasst (W6S-MTC2).

Auf Anfrage an den Modellentwickler Edward Tipping (UK) nach der neuesten Modellversion bot dieser an, für dieses vorliegende Projekt, d. h. für den Deutschen Datensatz 2016 der Critical Load für Cd, Pb, Cu, Zn und Ni die kritischen Gesamtkonzentrationen selbst zu berechnen. Dieses freundliche Angebot wurde dankend angenommen. Herrn Tipping wurden hierfür die notwendigen standortspezifischen Eingangsdaten wie folgt zur Verfügung gestellt:

pH-Werte

In der Datenbank der BÜK1000N (2014a) zu den Leitbodenprofilen sind für die Profile der Nutzungstypen Grünland und Ackerflächen pH-Stufen horizontweise angegeben. Entsprechend Bodenkundlicher Kartieranleitung KA5 (AG Boden 2005, S. 367) lassen sich diese Stufen in pH(CaCl₂)-Spannen einordnen, woraus der Mittelwert jedem Horizont zugeordnet werden kann¹² (Tabelle 45). Anschließend wurde der tiefenstufengewichtete Mittelwert über die Horizonte bis zur betrachteten Tiefe berechnet, d. h. über die O- und A-Horizonte.

pH-Stufe original aus BÜK 1000N	pH(CaCl₂) von	pH(CaCl ₂) bis	pH(CaCl ₂) Mitte
a0/s0	6,8	7,2	7
al	7,2	7,9	7,6
s1	6,1	6,8	6,4
s2	5,4	6,1	5,8
s3	4,7	5,4	5,0
s4	4	4,7	4,4
s5	3,3	4	3,6

Tabelle 45:Zuordnungs-Matrix von pH-Stufe aus der BÜK1000N zu einem mittleren pH-Wert pro
Horizont der Leitbodenprofile nach KA5 (AG Boden 2005, S. 367)

In der Datenbank zu den Leitbodenprofilen sind für die Profile des Nutzungstyps Wälder keine pH-Angaben enthalten, dafür aber die Konzentrationen der austauschbaren Kationen, woraus sich entsprechend KA5 (AG Boden 2005, S. 371) die Basensättigung berechnen lässt. Aus der Basensättigung konnte wiederum die pH(CaCl₂)-Spanne abgeleitet werden (Tabelle 46), so dass dann wie oben beschrieben verfahren werden konnte.

Tabelle 46:Zuordnungs-Matrix von Basensättigung zu einem mittleren pH-Wert pro Horizont der
Leitbodenprofile nach KA5 (AG Boden 2005, S. 371)

BS (%) von	BS (%) bis	pH(CaCl₂) von	pH(CaCl ₂) bis	pH(CaCl ₂) Mitte
0,1	5	2,8	3,3	3,1
6	20	3,3	3,8	3,6
21	50	3,8	4,8	4,3
51	80	4,8	6	5,4
81	100	6	8	7

Gehalt an organischer Substanz (OM):

In der Datenbank zu den Leitbodenprofilen ist horizontweise eine Humusklasse angegeben. Entsprechend KA5 (AG Boden 2005, S.112) wurde jeder Humusklasse, differenziert nach Nutzungstyp, eine Spanne für den Gehalt an organischer Substanz zugeordnet (Tabelle 47).

¹² Ginge man bei der Mittelwertbildung nach dem Verfahren Entlogarithmierung – Mittelwertbildung – Logarithmierung vor, ergäbe sich z.B. statt eines Mittelwertes von pH 4,2 ein pH-Wert von 4,18. Diese Abweichung hat angesichts der Klassifizierung in Spannen von 0,7 pH-Einheiten keinen signifikanten Einfluss auf die Ergebnisse.

Anschließend wurden die horizontweisen Minimum-Gehalte (konservativ) tiefenstufengewichtet gemittelt bis zur betrachteten Tiefe.

Landnutzung	Humus-Klasse aus BÜK1000N (BGR 2014a)	Gehalt an organi- scher Substanz OM Masse-% von	Gehalt an organi- scher Substanz OM Masse-% bis
Wälder	h0	0	0
Wälder	h1	0,1	1
Wälder	h2	1,1	1,9
Wälder	h3	2	4,9
Wälder	h4	5	9,9
Wälder	h5	10	14,9
Wälder	h6	15	29,9
Wälder	h7	30	55
Ackerflächen	hO	0	0
Ackerflächen	h1	0,1	1
Ackerflächen	h2	1,1	1,9
Ackerflächen	h3	2	3,9
Ackerflächen	h4	4	7,9
Ackerflächen	h5	8	14,9
Ackerflächen	h6	15	29,9
Ackerflächen	h7	30	55
Grünland	hO	0	0
Grünland	h1	0,1	1
Grünland	h2	1,1	1,9
Grünland	h3	2	3,9
Grünland	h4	4	7,9
Grünland	h5	8	14,9
Grünland	h6	15	29,9
Grünland	h7	30	55

Tabelle 47:	Zuordnung des Gehaltes an organischer Masse zu den Horizonten der Leitbodenprofile
	der BÜK1000N, basierend auf den Angaben der Humus-Klasse

Ermittlung des Gehaltes an gelöstem organischen Kohlenstoff (DOC) und gelöster organischer Substanz (DOM)

Zu diesen Parametern liegen derzeit keine Daten zu Böden in Verbindung mit dem Vegetationstyp vor, die repräsentativ und damit übertragbar auf die in Deutschland vorkommenden Bodenformen und Vegetationstypen wären. Daher wird auf die Empfehlung im Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel 5.5) für "Default"-Werte für Wald, Grasland und Ackerland zurückgegriffen. Für Waldböden liegt eine Differenzierung der DOC-Gehalte nach Nadel- und Laubwald sowie nach Tiefenstufen nach de Vries et al. 2005 (Anhang 11) vor.

	DOC [mg/l]	DOC [mg/l]			
Tiefenstufe:	-5 – 0		0-10	0-30	
Nadelwald ¹⁾		40	23	16	
Laubwald ¹⁾		32	21	12	
Mischwald		36	22	14	
Grasland ²⁾			15		
Acker ²⁾				10	

Tabelle 48: Zuordnung von Gehalten an gelöstem Kohlenstoff (DOC) in Abhängigkeit vom Vegetationstyp

Quellen: ¹⁾ deVries et al. 2005, ²⁾ Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel 5.5)

Im Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel 5.5) wird angegeben, dass der Gehalt an organischer Substanz (DOM) etwa dem Doppelten des DOC-Gehaltes entspricht.

Partialdruck von CO₂ in der Bodenlösung (pCO₂)

Der Partialdruck von CO₂ in der Bodenlösung ist generell höher als in der Atmosphäre darüber, weil CO₂ im Boden von den Pflanzen durch Respiration abgegeben wird und so der Druck im Boden erhöht wird. Im Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel 5.5) werden auf der Basis umfangreicher regionaler Studien vereinfachende Faustzahlen angegeben: 5-10facher atmosphärischer CO₂-Partialdruck für organische Horizonte, 5-15facher atmosphärischer CO₂-Partialdruck für A-Horizonte, 15-20facher atmosphärischer CO₂-Partialdruck für B-Horizonte, 15-30facher atmosphärischer CO₂-Partialdruck für C-Horizonte.

Unter Beachtung der in der BÜK1000N (BGR 2014a) überwiegend dargestellten Tiefenstufen dieser Horizonte wurde für dieses Projekt folgende Zuordnungsmatrix für den Faktor des Vielfachen des atmosphärischen CO₂-Partialdrucks aufgestellt, die durch Interpolation der im Manual genannten Faustzahlen entstand (Tabelle 49).

al des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016)				
Obere Tiefe [cm] Untere Tiefe [cm] Multiplikationsfaktor mit dem atmosphärischen CO2-Partialdruck				
0	5	5,0		

Tabelle 49:	Zuordnung des Faktors des Vielfachen des atmosphärischen CO ₂ -Partialdrucks zu den
	Tiefenstufen der Leitbodenprofile der BÜK1000N, basierend auf den Angaben im Manu-
	al des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016)

		CO ₂ -Partialdruck
0	5	5,0
5	10	5,0
10	15	6,7
15	20	7,5
20	25	8,0
25	30	8,3
30	35	10,0
35	40	11,3
40	45	12,2
45	50	13,0

Obere Tiefe [cm]	Untere Tiefe [cm]	Multiplikationsfaktor mit dem atmosphärischen CO2-Partialdruck
50	55	13,6
55	60	14,2

Anschließend wurde der tiefenstufengewichtete Mittelwert bis zur betrachteten Tiefe berechnet.

Konzentration von suspendierten Partikeln (SPM)

Für den CL(M)-Datensatz (2016) wurde vereinfachend angenommen, dass die Konzentration von suspendierten Partikeln (SPM) in der Bodenlösung vernachlässigbar gering ist. PSM wurde daher in allen Analysezellen Deutschlands auf *NULL* gesetzt.

Berechnung der kritischen Gesamtkonzentration von Hg in der Bodenlösung

Quecksilber kommt weitestgehend nur an Humuskomplexe gebunden vor, so dass man auf die Ermittlung der freien Ionenkonzentration in der Bodenlösung verzichten kann. Somit ist es sinnvoll, die kritische Konzentration von Hg unterhalb der Humusauflage insbesondere von Wäldern zu ermitteln, indem die kritische Konzentration auf den Gehalt an organischer Substanz bezogen wird. Ausgehend davon kann die kritische Konzentration (nur der humusgebundenen Ionen) in der Bodenlösung [Hg]_{swd(crit)eco} [mg m-³] nach folgender Gleichung bestimmt werden:

$$[Hg]_{swd(crit)eco} = [Hg]_{OM(crit)} \cdot f_f \cdot [DOM]_{swd}$$

mit:

[Hg] _{OM(crit)}	=	Critical Limit für Hg bezogen auf feste organische Substanz (OM) in Humusauflagen
f_f	=	Faktor zur Beschreibung des Verhältnisses von Hg in fester organischer Substanz (OM) zu Hg in gelöster organischer Substanz (DOM) [-]
[DOM] _{swd}	=	Konzentration gelöster organischer Substanz in der Bodenlösung der Humus- auflage [g m ⁻³]

Meili et al. (2003a) empfehlen das Critical Limit von 0,5 mg Hg kg⁻¹ OM⁻¹ (Manual des ICP Modeling and Mapping – CLRTAP 2004-2016). Daraus ergibt sich ein Verhältnis Hg/OM von 0,0000005 kg/kg.

Für die Berechnung von $[Hg]_{swd(criteco)}$ sind weiterhin Informationen über das Verhältnis von Hg-Konzentrationen in fester und in gelöster organischer Substanz (f_f) sowie zur Konzentration von DOM in der Bodenlösung [DOM]_{swd} erforderlich. Eine schwedische Studie (Meili et al. 2003a, b, Åkerblom et al. 2006) ergab, dass die Konzentration von Hg in fester und in gelöster organischer Substanz auch unter unterschiedlichen Umweltbedingungen (Boden, Klima) meist annähernd gleich ist, so dass nach dem heutigen Stand der Erkenntnis der Wert f_f = 1 als Standard definiert werden kann.

Die Zuordnung von [DOM] erfolgte in diesem Projekt anhand Tabelle 48, wobei die DOC-Gehalte für die Berechnung von [DOM] verdoppelt wurden.

Ermittlung der kritischen Gesamtkonzentration der Schwermetall-Ionen As und Cr in der Bodenlösung

Ökotoxikologische Effekte von Arsen auf Ökosystemkompartimente konnten von Doyle et al. (2003) bei einem Wert von 70 μ g l⁻¹ im Bodenwasser ausgeschlossen werden (no effect vallue – ENEV) (Tabelle 50). Eine Abhängigkeit dieses No effekt-Wertes von bodenchemischen Parametern konnte nicht festgestellt werden, so dass sich eine Critical Limit-Funktion erübrigt.

Für Cr konnten de Vries et al. (2007) sowie Lofts et al. (2004) keine hinreichenden Datengrundlagen zur Parametrisierung einer Funktion der kritischen Konzentration finden und empfehlen deshalb den

niedrigsten bisher festgestellten effektbasierten Schwellenwert (für eine Invertebratenart im Süßwasser) von 44 μ g l⁻¹ (Tabelle 50).

Tabelle 50:Kritische Gesamtkonzentration der Schwermetall-Ionen, die unabhängig vom pH-Wert
verwendet werden können

Schutzgut	Einheit	As	Cr
Ökosysteme	μg/I	70	44

Die Übernahme von Wirkungsschwellen aus Untersuchungen in Gewässern auf anhydromorphe Standorte ist jedoch umstritten (Beratergremium für Altstoffe "Risikoabschätzung von Stoffen in Böden" (in: GdCh 2000)) und kann nur hilfsweise verwendet werden unter der stark vereinfachenden Annahme, dass die Empfindlichkeit der Biotoa in Gewässern vergleichbar ist mit der Empfindlichkeit der Mikroorganismen im Bodenwasser (LUA Brandenburg 2008).

3.3.6 Ergebnisse und regionale Verteilung der Critical Loads in Deutschland

In Abbildung 47 bis Abbildung 61 sind die Ergebnisse der Critical Load-Berechnung für die Schwermetalle Blei, Cadmium, Quecksilber, Arsen, Kupfer, Nickel, Zink und Chrom karthographisch dargestellt.

Unterschiede der Critical Loads mit Stand 2016 zu den Critical Loads (Pb, Cd, Hg) mit Stand 2008 (Nagel et al. 2008) resultieren aus aktualisierten Datengrundlagen (Tabelle 51).

	Stand 2008	Stand 2016
Bodendaten	BÜK1000 (Utermann et al. 2008)	BÜK1000N (BGR 2014b)
Sickerwasserrate	Karte der Sickerwasserrate des Hydrologischen Atlas für Deutschland (BMU 2003)	Sickerwasserkarte (BGR 2014a)
Gehalte in der Erntemasse bei Ackerfrüchten und Grünlandvegetation	aus Nagel u. Schütze 1998	aus Jakobsen et al. 2002, Knappe et al. 2008
Anzahl der unterschiedlichen Rezeptortypen (Kombinationstypen aus Klima-/Boden- und Vegetationstyp)	505	1099

Tabelle 51:Gegenüberstellung von veränderten Datengrundlagen 2016 zu 2008 für die Ermittlung
von Critical Loads für Schwermetalle

Diese aktualisierten Datengrundlagen führten zu Veränderungen der Flächenanteile in den Klassen der Critical Loads. Da 2008 Critical Loads nur für Blei, Cadmium und Quecksilber ermittelt wurden, werden in Tabelle 52 nur diese miteinander verglichen. Dabei zeigt sich bei Quecksilber eine Verschiebung der Flächenanteile zu den unteren Klassen, was insbesondere aus der Senkung des Hg-Gehaltes in der Erntemasse resultiert. Bei Cd und Pb ergibt sich eine Verschiebung der Flächenanteile in den CL(M)-Klassen in beide Richtungen, d. h. sowohl in den unteren als auch in den oberen Klassen nehmen die Flächenanteile auf Kosten der mittleren Klassen zu. Dies ist überwiegend auf die stärkere Differenzierung der Bodeneigenschaften anhand der mit der BÜK1000N zur Verfügung stehenden nutzungsabhängigen 675 Referenzbodenprofilen anstelle der 71 Referenzbodenprofile der BÜK1000 zurück zu führen.

CL-Klasse	Flächenanteil 2008	Flächenanteil 2016
g ha ⁻¹ a ⁻¹	%	%
CL Hg für Ökosystemschutz		
<0,25	49,3	22,5
0,25-0,5	47,8	66,1
0, 5-1	2,8	11,4
>1	0	0
CL Cd für Ökosystemschutz		
<2,5	0	0,7
2,5-5	16,3	14
5-7,5	30	24,3
7,5-10	23,4	13,7
10-15	15,4	19
15-20	7	5,5
20-25	3,5	4,4
25-30	2	4,8
30-35	1,3	4,5
>35	1,1	9,1
CL Pb für Ökosystemschutz		
<5	0	1,7
5-10	0,1	31,2
10-20	30,4	19,4
20-30	40,8	16,4
30-40	4,5	2,6
40-50	3,3	1
50-75	8,2	3,3
75-100	3,5	2,1
100-150	3	1,6
>150	6,2	20,7

Tabelle 52:Veränderungen der Flächenanteile in den Klassen der Critical Loads von 2008 zu 2016
für Blei, Cadmium und Quecksilber


















Abbildung 51: Critical Load für Cadmium mit dem Schutzziel Nahrungsmittelqualität.









Abbildung 54: Critical Load für Arsen mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität.



Abbildung 55: Critical Load für Arsen mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion.



Abbildung 56: Critical Load für Kupfer mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität.







Abbildung 58: Critical Load für Nickel mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion.



Abbildung 59: Critical Load für Zink mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion.



Abbildung 60: Critical Load für Chrom mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität.



Abbildung 61: Critical Load für Chrom mit dem Schutzziel Ökosystemfunktion.



3.3.7 Statistische Verteilung der Critical Loads

Die Auswertung der Critical Load-Berechnungsergebnisse zeigt folgende statistische Verteilung (Tabelle 53).

	Nickel	Kupfer	Zink	Blei	Arsen	Chrom	Cadmium	Quecksilber		
					g ha ⁻¹ a ⁻¹					
				Trinkwa	sser					
Min		484	1234	3	2	12	0,8	0,3		
5er Perz.		1070	2848	9	6	28	2,5	0,6		
25er Perz.		4091	10428	24	21	104	7,1	2,1		
50er Perz.		6172	15628	35	31	156	10,2	3,2		
Mittel		6168	15609	35	31	156	10,2	3,2		
75er Perz.		7956	20093	44	40	200	12,9	4,1		
95er Perz.		11268	28316	61	56	282	18	5,7		
Max		27533	69133	142	138	688	42,6	13,8		
Ökosystem										
Min	37	7	81	2	115	78	1,5	0,1		
5er Perz.	109	13	189	6	181	115	4,1	0,2		
25er Perz.	197	27	313	9	311	198	6,4	0,3		
50er Perz.	518	74	565	21	414	263	10,5	0,4		
Mittel	981	158	543	122	421	267	15,6	0,4		
75er Perz.	1363	118	695	102	501	317	20,9	0,4		
95er Perz.	3338	710	1032	601	711	448	42,4	0,6		
Max	11232	3384	2457	2603	1669	1049	127,6	1,1		
			Nahru	ng (Weize	nprodukte)					
Min							1,9			
5er Perz.							3			
25er Perz.							4,9			
50er Perz.							6			
Mittel							6,1			
75er Perz.							7,1			
95er Perz.							9,3			
Max							19,2			

Tabelle 53:Übersicht über die 5er, 25er, 50er, 75er und 95-Perzentile, Minima und Maxima sowie
arithmetische Mittelwerte der Critical Loads in den Rezeptorflächen Deutschlands

Es wird ersichtlich, dass die Empfindlichkeit der verschiedenen Schutzgüter auf das gleiche Schwermetall in Größenordnungen voneinander abweichen kann. So ist z.B. bei Kupfer, Zink und Quecksilber die Empfindlichkeit der Ökosysteme höher als die Anforderungen an den Trinkwasserschutz, bei Arsen, Chrom und Cadmium ist es umgekehrt. Hinsichtlich Blei liegt die Spanne der CL für den Trinkwasserschutz innerhalb der CL-Spanne für den Ökosystemschutz. Die CL(Cd)_{food} für Weizenprodukte sind insgesamt deutlich niedriger als die CL(Cd)_{drink} für den Trinkwasser- oder Ökosystemschutz.

3.3.8 Unsicherheitenanalyse

3.3.8.1 Ertragspotenzial der Böden

Die am besten aufgelösten verfügbaren Ertragsstatistiken liegen summarisch für die Landkreise Deutschlands vor. Diese Statistik bietet insofern keine für dieses Projekt direkt verwendbare Grundlage, weil die Ackerfrüchte und ihre Erträge nicht auf Bodenformen(oder –gruppen) aufgeschlüsselt sind. Die Vorgehensweise von Knappe et al. (2008), entsprechend den Flächenanteilen der Ackerfrüchte in einem Kreis in Verbindung mit den Flächenanteilen von Bodenformen der BÜK1000 im Kreis zu bringen, mag einen Ansatz für eine Momentaufnahme, wie es in der Studie von Knappe et al. (2008) das Ziel war, zu bieten. Dieser Ansatz reicht jedoch nicht für eine langfristige Prognose von bodentypischen Erträgen der verschiedenen Ackerfrüchte. Deshalb wurde hier der Weg über die Abschätzung von (mehr oder weniger langfristig unveränderlichen) bodenspezifischen Ertragspotenzialen gegangen. Diese Vorgehensweise liegt auch der Karte des "Ackerbaulichen Ertragspotenzials der Böden in Deutschland" (BGR 2013) auf Basis des "Soil Quality Rating" (SQR) (Mueller et al. 2007) zugrunde.

Die Karte der BGR wurde mit den Ergebnissen aus diesem Projekt verglichen. Wo sich aus unserer Expertensicht plausibel zu erklärende Unterschiede in Bezug auf den Grund-/Stauwassereinfluss und in Bezug auf die Durchwurzelbarkeit in Tabelle 38 gegenüber dem Stand in Schütze et al. (2003) ergaben, wurde die Bewertung im vorliegenden Projekt (Tabelle 38) an die Karte des "Ackerbaulichen Ertragspotenzials der Böden in Deutschland" (BGR 2013) angepasst (Kapitel 3.3.5.1).

Die größten Unterschiede in der Bewertung ergeben sich im Münsterland, Ostfriesland und am Oderhaff. Das betrifft die Flächen mit der BÜK1000N-Bodenform "Überwiegend Gley-Podsole und Gleye, gering verbreitet Podsole aus sandigen Flussablagerungen; gering verbreitet Plaggenesche und Treposole" mit einem Referenzprofil PP (Norm-Podsol) bei Ackernutzung. Der relevante Horizont bis 30 cm Tiefe (Aep) besteht aus einem schwach lehmigen Sand. Das hier ermittelte Ertragspotenzial beträgt 2,94 (auf der Skala zwischen 1 und 5), das entspricht umgerechnet auf die Skala der BGR 49 Punkte (auf der Skala zwischen 0 und 102). Die BGR-Karte weist für dieselben Flächen 60-80 Punkte aus. Gründe für die weitaus positivere Bewertung durch die BGR konnten nicht ermittelt werden, deshalb wurde für dieses Profil keine Anpassung der Bewertung an die BGR vorgenommen. Gleichzeitig gibt die BGR beispielsweise auch im Oderbruch für die Braunerde-Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten unter Ackernutzung dasselbe Ertragspotenzial wie für den Podsol von 60-80% an. Nach der in diesem Projekt verwendeten Methode entsprechend Kapitel 3.3.5.1 ergibt sich für diese Bodenform im Oderbruch ein relatives Ertragspotential von 3,86 (auf der Skala zwischen 1 und 5), das entspricht umgerechnet auf die Skala der BGR 73 Punkte (auf der Skala zwischen 0 und 102). Im Fall der Braunerde-Vega treffen die Bewertungen beider Verfahren gut überein.

Einen weitereren signifikanten Unterschied zeigt die Bewertung der "Überwiegend Tschernoseme" mit einem Referenzprofil TTn (Norm-Tschernosem) bei Ackernutzung in der Magdeburger Börde. Mit der Methode für dieses Projekt wurde ein Ertragspotenzial von 3,6 (= 66 BGR-Punkte) ermittelt, während die BGR-Karte >80 Punkte darstellt. Das Referenzprofil weist für den Ap-Horizont einen stark tonigen Schluff aus. Mit der hier verwendeten Methode wird die Gefahr der Staunässebildung aufgrund des hohen Tongehaltes (Tabelle 38) negativ bewertet, während die BGR diesen Gefährdungsindikator bei diesem Bodenprofil nicht negativ bewertet. Auch in diesem Fall wurde keine Anpassung an die Bewertung der BGR vorgenommen.

Flächen, für die hier höhere Ertragspotenziale ermittelt wurden als in der BGR-Karte, sind nicht erkennbar. Insofern führt die mögliche Unterschätzung der Erträge immer zu niedrigeren Critical Loads und diese liegen damit "auf der sicheren Seite".

Würde man jedoch bei den Flächen mit den größten Abweichungen vom Ertragspotenzial der BRG ausgehen, d. h. das Ertragspotential für die schwach lehmig-sandigen Podsole im Münsterland 70 Pkt.

nach BGR (entspricht 3,75 auf der Skala von 1 bis 5) ansetzen, würden sich beispielsweise für Weizen, Gerste und Raps folgende Veränderungen der CL(M)_{eco} ergeben:

Tabelle 54:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für die CL(M)_{eco} mit unterschiedli-
chen Ertragspotenzial-Schätzwerten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Stand-
ort im Münsterland

	Boden- form	Ertrags- klasse	Ertrag	CL (Pb) eco	CL (Cd) eco	CL (Hg) eco	CL (Ni) eco	CL (Zn) eco	CL (As) eco	CL (Cu) eco	CL (Cr)
			t TS ha ⁻¹ a ⁻¹				g ha ⁻¹	^L a ⁻¹			
Weizen	Podsol	2,94 ¹⁾	7,5	10,6	6,3	0,09	356	277	233	40	150
Weizen	aus	3,75 ²⁾	8,0	10,6	6,3	0,09	356	287	233	43	150
Gerste	lehmigen	2,94 ¹⁾	6,4	11,0	6,2	0,11	356	288	233	29	148
Gerste	Sanden	3,75 ²⁾	6,9	11,0	6,2	0,12	356	300	233	31	148
Raps		2,94 ¹⁾	3,6	10,7	6,4	0,06	357	269	233	20	152
Raps		3,75 ²⁾	3,7	10,7	6,4	0,06	357	273	233	20	152
				Abweic	hungen	[%]					
Weizen		27,6	6,9	0,1	0,2	3,0	0,0	3,7	0,0	5,9	0,2
Gerste		27,6	7,2	0,4	0,1	4,0	0,0	4,0	0,0	5,7	0,1
Raps		27,6	2,5	0,1	0,1	0,5	0,0	1,3	0,0	1,8	0,1

¹⁾ nach eigener Abschätzung entsprechend Kapitel 3.3.5.1, wie in diesem Projekt verwendet ²⁾ nach BGR (2013)

Bei Anwendung der BGR-Bewertung des Ertragspotenzials für die Ermittlung des Ertrages, das im Extremfall um ca. 28 % höher liegt, würden sich die ökosystembezogenen Critical Loads für Blei, Cadmium, Quecksilber, Nickel, Zink, Arsen, Kupfer und Chrom nur um wenige Prozentpunkte erhöhen. Die höchste Abweichung ist mit 5,9 % beim Critical Load für Kupfer auf Weizenschlägen zu verzeichnen.

Die Erträge an Ackerfrüchten, wie sie im vorliegenden Projekt für die Berechnung von Critical Loads eingesetzt wurden, unterliegen gegenüber den Holzerträgen der Wälder und den Grünlanderträgen größeren Schwankungen, da hier aktuelle Acker-Erträge angewendet werden anstelle von potenziellen Holz- und Grünland-Erträgen (Kapitel 3.3.5.1). Während sich in den Wäldern und beim halbnatürlichen Grünland eine seit etlichen Jahren zu verfolgende Tendenz zur Extensivierung der Produktion abzeichnet, ist dies bei der Ackerbewirtschaftung nicht erkennbar. Während in Wäldern und natürlichem Offenland abnehmende Stickstoffeinträgen aus der Luft zu verzeichnen sind, wird auf Äckern dafür noch mehr Stickstoff gedüngt.

3.3.8.2 Schwermetall-Konzentration im Erntegut

Literaturstudien zu Schwermetallgehalten in den erntbaren Teilen landwirtschaftlicher Nutzpflanzen wurden bereits in früheren Projekten durchgeführt (Nagel und Schütze 1998, Nagel et al. 2000). Die dabei berechneten Median-Werte für die Cd-, Pb- und Hg-Gehalte in Getreidekorn, Rüben, Kartoffeln, Mais, Gras und anderen Futterpflanzen, Öl- und Leguminosensaat liegen deutlich höher als die für die Berechnungen in diesem Projekt verwendeten Werte. Die früheren Datengrundlagen (Nagel et al. 2008) zur Berechnung der mittleren Konzentrationen (Mediane) in Nutzpflanzen stammen aus den späten 1980er Jahren (Sauerbeck und Styperek 1988) und frühen 1990er Jahren (LUA NRW 1996). Seitdem sind die Depositionen von Schwermetallen, insbesondere von Pb, zurückgegangen. Das hat

dazu geführt, dass heutige Konzentrationen niedriger sind (Knappe et al. 2008). Die in diesem Projekt verwendeten Median-Werte für die Konzentrationen von Blei, Cadmium und Quecksilber sind aus Knappe et al. (2008, S. D 59) für Ackerfrüchte entnommen. Die Autoren geben jedoch für Blei auch höhere Konzentrationen in den marktüblichen Ackerfrüchten an (90er Perzentile).

Tabelle 55:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(Pb)_{eco} mit unterschiedlichen
Pb-Gehalten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Standort mit Braunerde-Vega
aus tonig-lehmigen Auensedimenten in der subkontinentalen Klimazone

			Silomais	Zuckerrüben	Weizen	Gerste
	Ertrag	t TS ha ⁻¹ a ⁻¹	46,0	67,8	8,0	6,9
verwendete Eingangs-	Pb-Gehalt ¹⁾	g t ⁻¹	0,2	0,2	0,03	0,1
daten und Ergebnisse in diesem Projekt	CL(Pb) _{eco}	g ha ⁻¹ a ⁻¹	10,9	15,3	2,0	2,4
alternative Eingangs-	Pb-Gehalt ²⁾	g t ⁻¹	0,6	0,44	0,14	0,21
daten und Ergebnisse	CL(Pb) _{eco}	g ha ⁻¹ a ⁻¹	25,2	71,6	2,4	3,3
Abweichungen	Pb-Gehalt	%	300	220	466	210
	CL(Pb) _{eco}	%	169	106	45	32

¹⁾ nach Knappe et al. (2008, S. D59ff), Mediane, wie in diesem Projekt verwendet

²⁾ nach Knappe et al. (2008, S. D 59ff), 90 Perz.

Die Critical Loads für Blei (ökosystembezogen) würden sich im Beispiel um bis zu 169 % gegenüber den hier im Projekt ermittelten CL(Pb)_{eco} erhöhen bei Anwendung der 90er Perzentile der Bleikonzentrationen nach Knappe et al. (2008), die in diesem Fall 300 % höher liegen als die hier verwendeten.

Insbesondere für die Cu-, Cr- und Ni-Gehalte im Derbholz der typischen Baumarten in Deutschland gilt eine signifikante Abhängigkeit von der Konzentration im Boden (Bergkvist et al. 1989). Deshalb wurden in diesem Projekt die niedrigen von Jacobsen et al. (2002) veröffentlichten Werte in die CL-Berechnung eingestellt, was dem worst case entspricht. Eine Ausnahme bildet der Cd-Gehalt in Derbholz mit Rinde der Kiefer. Die Angabe des Median-Wertes aus 10 Studien bei Jacobsen et al. (2002) weicht um mehr als das Vierfache von der Spanne ab, die im Manual ausgewiesen ist. Deshalb wird die Sensitivität des Critical Loads auch für den niedrigen Cd-Gehalt im Kiefern-Stamm nach ICP Manual an einem Beispiel dargestellt (Tabelle 56).

Tabelle 56:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für die CL(Cd)_{eco} mit unterschiedli-
chen Cadmium-Gehalten in Derbholz mit Rinde und sonst gleichen Eingangsdaten an ei-
nem Standort in der subkontinentalen Klimazone

Baumart	Bodenform	Ertrag	Cd-Gehalt	CLCd eco	
		t TS ha ⁻¹ a ⁻¹	g t ⁻¹ TS	g ha ⁻¹ a ⁻¹	
Kiefer	Braunerde aus Sanden	1,7	1,31 ¹⁾	7,36	
			0,3 ²⁾	5,62	
Abweichungen in %			-77,1	-23,6	

¹⁾ nach Jacobson et al. (2002), wie in diesem Projekt verwendet

²⁾ nach Manual des ICP Modelling and Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016)

Nimmt man für den Cd-Gehalt den niedrigsten in der Literatur (Manual des ICP Modelling & Mapping - CLRTAP 2004-2016) mitgeteilten Wert an, der um -77% vom hier verwendeten Wert nach Jacobsen et al. (2002) abweicht, würde der CL(Cd)_{eco} um rund 24 % sinken.

Die Gehalte der Schwermetalle variieren überwiegend in Abhängigkeit vom Metallgehalt im Boden. So streut der Arsengehalt in Weizen von 0,01 bis 0,34 mg kg⁻¹ TS, in Mais von 0,06 bis 0,47 mg kg⁻¹ TS und in Grasland von 0,07 bis 1,11 mg kg⁻¹ TS (Wiersma et al. 1986). Der Kupfergehalt variiert in Weizen von 3,8 bis 6,17 mg kg⁻¹ TS, in Mais von 1,9 bis 7 mg kg⁻¹ TS und in Grasland von 6,4 bis 21,5 mg kg⁻¹ TS (Van Driel et al. 1986). Der Zinkgehalt liegt in Weizen in der Spanne von 33 bis 94 mg kg⁻¹ TS, in Mais von 28 bis 174 mg kg⁻¹ TS und in Grasland von 38 bis 176 mg kg⁻¹ TS (Van Driel et al. 1986).

Die in diesem Projekt verwendeten Gehalte an Zink nach Knappe et al. (2008, S. D 59ff) (Kapitel 3.3.5.1) liegen z. T. bei ca. 60% der von Van Driel et al. 1986 angegebenen unteren Spannengrenze, jedoch für Grünland deutlich höher. Die hier angewandten Arsengehalte nach Knappe et al. (2008, S. D 59ff) (Kapitel 3.3.5.1) liegen für Weizen nur bei 30%, aber für Mais und Gras bei 200% der unteren Spannengrenzen nach Wiersma et al. (1986). Die für die CL-Berechnung in diesem Projekt eingesetzten Kupfergehalte nach Knappe et al. (2008, S. D 59ff) (Kapitel 3.3.5.1) sind für Weizen und Mais höher, aber für Grünland etwas niedriger als die unteren Spannengrenzen nach Van Driel et al. 1986) liegt.

Anhand einer Beispielfläche mit sehr hohem Ertragspotenzial, wo die höchsten Abweichungen hinsichtlich des Metall-Entzuges zu erwarten sind, wird die Auswirkung der Anwendung älterer Daten für die Metall-Konzentrationen auf den jeweiligen Critical Load für den Schutz des Ökosystems berechnet (Tabelle 57).

	Alternative, ältere Eingangs- daten und Ergebnisse			verwend und Erge Projekt	dete Einga ebnisse in	angsdaten diesem	Abweichungen [%]			
	Wei- zen	Silo- mais	Grün- land- pflanzen	Wei- zen	Silo- mais	Grünland- pflanzen	Wei- zen	Silo- mais	Grünland- pflanzen	
Zn-Gehalt [g t ⁻¹ TS]	33 ²⁾	28 ²⁾	38 ²⁾	20 ³⁾	19 ³⁾	49,5 ³⁾	65	47	-23	
As-Gehalt [g t ⁻¹ TS]	0,01 ¹⁾	0,06 ¹⁾	0,07 ¹⁾	0,035 ³⁾	0,035 ³⁾	0,1 ³⁾	-71	71	-30	
Cu-Gehalt [g t ⁻¹ TS]	3,8 ²⁾	1,9 ²⁾	6,4 ²⁾	4,6 ³⁾	3,5 ³⁾	6,2 ³⁾	-17	-46	3	
CL(Zn) _{eco} [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	286,7	1309,4	311,5	182,1	895,3	399,3	57	46	-22	
CL(As) _{eco} [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	38,6	41,3	39,0	38,8	40,1	39,3	-0,5	2,9	-0,6	
CL(Cu) _{eco} [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	31,5	88,4	49,9	38,0	162,0	48,3	-17	-45	3	

Tabelle 57:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M)_{eco} mit unterschiedlichen
Metall-Gehalten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Standort mit Braunerde-
Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten in der subkontinentalen Klimazone

¹⁾ nach Wiersma et al. (1986)

²⁾ nach Van Driel et al. 1986)

³⁾ nach Knappe et al. 2008 (Kapitel 3.3.5.1)

Die größten negativen Abweichungen zwischen den in diesem Projekt verwendeten Gehalten (Kapitel 3.3.5.1) und den älteren o.g. unteren Spannengrenzen bestehen bei den As-Gehalten in Weizen (-71%) und Mais (+71%). Diese führen aber nur zu einer relativ geringen Absenkung der $CL(As)_{eco}$ (-0,5 bis +2,9 %). Die Abweichung des Zinkgehaltes für Weizen (+65%) und Mais (+47%) würde zu einer Erhöhung des $CL(Zn)_{eco}$ um 57 bzw. 46% führen. Für Kupfer würde die Verwendung der älteren Gehaltsdaten zu einer Verringerung der $CL(Cu)_{eco}$ führen.

3.3.8.3 Fruchtfolgen

Die Annahme von idealtypischen Fruchtfolgen bei guter fachlicher Praxis in der Landwirtschaft entspricht gegenwärtig nicht überall in Deutschland dem Stand. Aktuell wird vielfach mehr Silomais und Weizen angebaut, als dies der nachhaltigen Sicherung der Bodenfruchtbarkeit dienlich ist. Als worst case kann man eine Monokultur mit Silomais oder eine Monokultur mit Weizen annehmen (Abbildung 62). Abbildung 62: Vergleich der Anteile der Ackerflächen Deutschlands in den Klassen des Critical Loads für Cadmium für die Schutzgüter Ökosystem (CL(Cd) eco) und Trinkwasser (CL(Cd)_{drink}), jeweils in den Varianten "Fruchtfolge nach guter fachlicher Praxis" (links), "Monokultur Mais" (Mitte), "Monokultur Weizen" (rechts)



Abbildung 63: Critical Load für Cadmium zum Schutz der menschlichen Gesundheit bei Verzehr von Weizenprodukten im Falle einer flächendeckenden Monokultur mit Weizen auf den Ackerflächen Deutschlands



Es zeigt sich eine leichte Erhöhung der Critical Loads bei der Variante "Monokultur Mais", jedoch eine deutliche Abnahme der Critical Loads für die Variante "Monokultur Weizen", jeweils sowohl für das Schutzgut Ökosysteme, als auch für den Trinkwasserschutz (Abbildung 62).

Der Vergleich der Flächenanteile in den Critical Load-Klassen CL(Cd)_{food} zeigt eine deutliche Verschiebung in die sensitiveren Klassen bei Monokultur Weizen (Abbildung 64).

Abbildung 64: Vergleich der Anteile der Ackerflächen Deutschlands in den Klassen des Critical Loads für Cadmium für das Schutzgut menschliche Gesundheit (CL(Cd)_{food}, in der Variante "Frucht-folge nach guter fachlicher Praxis" (links), "Monokultur Weizen" (rechts)



3.3.8.4 Sickerwasserrate

Der Vergleich der Sickerwasserraten nach BGR (2014a) mit entsprechenden größer maßstäbigen Erhebungen zur Grundwasserneubildung in der nordostdeutschen Tiefebene zeigt große Diskrepanzen. So steht z.B. einer Sickerrate von durchschnittlich 66 mm a⁻¹ laut BGR für Brandenburg eine Sickerrate von 111 mm a⁻¹ im Mittel aus einer Veröffentlichung des Brandenburgischen Ministeriums für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz (MUGV 2009) gegenüber. Auch für Sachsen-Anhalt differieren die Angaben von durchschnittlich 56 mm a⁻¹ (BGR 2014a) bis durchschnittlich 90 mm a⁻¹ (Landesbetrieb für Hochwasserschutz und Wasserwirtschaft – LHW Sachsen-Anhalt 2004). Auch wenn die regionalen Daten offensichtlich noch nicht auf dem 30-jährigen Mittel 1981-2010, wie bei der BGR-Karte, basieren, können sich aus dem zeitlichen Versatz nicht derart große Abweichungen ergeben.

Die Sickerrate hat einen bedeutenden Einfluss auf das Ergebnis der Critical Load-Berechnung, wie das folgende Beispiel zeigt.

Die prozentuale Abweichung der Sickerrate schlägt sich bei Annahme ansonsten gleicher Eingangswerte maximal in der gleichen prozentualen Abweichung des $CL(M)_{drink}$ bei Weizen und Kiefer sowie bei allen Rezeptoren in Bezug auf Kupfer durch. Am geringsten fällt die Abweichung beim $CL(Cr)_{drink}$ aus. Tabelle 58:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M)_{drink} mit unterschiedlichen
Sickerwasserraten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Acker-Standort mit
Braunerde-Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten und an einem Wald-Standort mit
Sand-Braunerde in der subkontinentalen Klimazone Brandenburgs

		Sicker-	CL(Pb)	CL(Cd)	CL(Hg)	CL(As)	CL(Cu)	CL(Cr)
		rate	drink	drink	drink	drink	drink	drink
		mm a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹
verwende-	Weizen	66,0 ¹⁾	6,8	2,2	0,05	6,9	1357,0	36,9
te Ein-	Silomais	66,0 ¹⁾	15,8	3,8	0,93	8,2	1481,0	66,6
und Ergeb- nisse in diesem Projekt	Grün- land- pflanzen	66,0 ¹⁾	14,2	3,0	0,24	7,4	1367,4	36,0
	Kiefer	66,0 ¹⁾	9,6	4,2	0,06	6,6	1322,5	33,6
alternative	Weizen	111,0 ²⁾	11,3	3,6	0,05	11,4	2257,0	59 <i>,</i> 4
Eingangs-	Silomais	111,0 ²⁾	20,3	5,2	0,93	12,7	2381,0	89,1
daten und Ergebnisse	Grün- land- pflanzen	111,0 ²⁾	18,7	4,3	0,25	11,9	2267,4	58,5
	Kiefer	111,0 ²⁾	14,1	5,6	0,08	11,1	2222,5	56,1
Abwei-								
chungen ∞1	Weizen	68,2	65,8	60,8	64	60,8	67,0	29,1
[/0]	Silomais	68,2	28,5	35,3	28	40,2	61,7	7,9
	Grün- land- pflanzen	68,2	33,2	47,2	51	61,1	67,0	30,0
	Kiefer	68,2	46,8	31,8	65	68 <i>,</i> 0	68,1	66,9

¹⁾ nach BGR (2014a)

²⁾ nach MUGV (2009)

3.3.8.5 Schwermetall-Konzentration im Sickerwasser

Die in diesem Projekt in die Berechnung der Critical Loads für den Ökosystemschutz eingestellten kritischen Konzentrationen der Metalle im Sickerwasser entsprechen den Vorgaben aus Reinds et al. (2006). Dementsprechend wurden die kritischen Gesamt-Konzentration für Kupfer, Nickel, Zink, Blei und Cadmium differenziert nach ihrer Bioverfügbarkeit in Abhängigkeit vom bodenspezifischen pH-Wert sowie dem Gehalt an organischer Masse und gelöstem organischen Kohlenstoff modellgestützt berechnet (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016). Die Modellierung basiert auf PNEC- Weten (für As und Cu) bzw. auf NOEC-Werten (für Cr, Ni, Zn, Pb, Cd und Hg). Aus der bodenspezifischen Modellierung auf der Grundlage der Referenzprofile des BÜK1000N ergeben für Cu, Ni, Zn, Pb, Cd und Hg Wertespannen der Gesamt-Konzentration (Tabelle 59).

Durch eine gemeinsame Arbeitsgruppe mit Vertretern von LAWA, LABO und LAGA wurde 2013 bis 2015 der Bericht "Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für das Grundwasser" (LAWA 2004) aktualisiert und die entsprechenden Änderungen und die Neuformulierung eines Kapitels

"Grundsätze für die Anwendung der Geringfügigkeitsschwellenwerte" erarbeitet (Zeddel 2016). Die Gegenüberstellung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für die Metall-Konzentration im Sickerwasser (Zeddel et al. 2016) zu den in diesem Projekt verwendeten kritischen Gesamt-Konzentrationen im Sickerwasser (Kapitel 3.5.3) zeigt Tabelle 59.

Tabelle 59:Gegenüberstellung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für die Metall-Konzentration
im Sickerwasser (Zeddel et al. 2016) zu den in diesem Projekt verwendeten kritischen
Gesamt-Konzentrationen im Sickerwasser (Kapitel 0)

	verwende	ete kritische Kon	zentration	Geringfügigkeitsschwellen 5)			
	Ökosyster	nschutz	Trinkwasserschutz ⁹⁾	Ökosystem- und Trinkwasserschutz			
1			μg l ⁻¹		µg l⁻¹		
As	PNEC 10)	70 ¹⁾	10	Basiswert ⁸⁾	3,2		
Cr(III)	NOEC ¹¹⁾	44 ²⁾	50	ökotoxikologische Wirkungsschwelle ⁶⁾	3,4		
Cu	PNEC	1-50 ³⁾	2000	Basiswert ⁸⁾	5,4		
Ni	NOEC	25-700 ³⁾	-	Basiswert ⁸⁾	7		
Zn	NOEC	20-90 ³⁾	-	Basiswert ⁸⁾	60		
Pb	NOEC	0,08-71,5 ³⁾	10	ökotoxikologische Wirkungsschwelle ⁶⁾	1,2		
Cd	NOEC	0,43-7,16 ³⁾	3	Basiswert ⁸⁾	0,3		
Hg	NOEC	0,058-17,4 ³⁾	1	Basiswert ⁸⁾	0,1		

¹⁾ Doyle et al. 2003 in Reinds et al. 2006

²⁾ Crommentuijn et al. 1997 in Reinds et al. 2006

³⁾ WHAM-Modellierungsergebnisse (Tipping 2014, per Email)

⁴⁾ Reinds et al. 2006

⁵⁾ Zeddel et al. 2016

⁶⁾ ökotoxikologische Wirkungsschwelle < humantoxikologische Wirkungsschwelle

⁸⁾ Der kleinere Wert auf Grundlage der ökotoxischen Wirkung lag unter dem Basiswert, so dass die GFS in Höhe des Basiswertes ausgewiesen ist (Definition siehe Kapitel 3.2.1)

⁹⁾ Trinkwasser-Verordnung für Deutschland (TrinkwV 2001)

¹⁰⁾ predicted no effect concentration = vorausgesagte Konzentration eines in der Regel umweltgefährlichen Stoffes, bis zu der sich keine Auswirkungen auf die Umwelt zeigen

¹¹) No Observed Effect Concentration = entspricht der höchsten Expositionskonzentration eines Stoffes in subchronischen oder chronischen Studien, bei der keine statistisch signifikante Wirkung beobachtet werden kann

Die Geringfügigkeitsschwellenwerte für Kupfer, Zink, Blei und Quecksilber liegen innerhalb der jeweiligen Spannen der bodenspezifisch modellierten Ergebnisse für den Ökosystemschutz.

Die Geringfügigkeitsschwellenwerte für Arsen, Chrom, Nickel und Cadmium liegen jedoch unterhalb der kritischen Konzentrationen, die zur Berechnung der Critical Loads in diesem Projekt heran gezogen wurden. Die größten Unterschiede bestehen bei Arsen, Chrom und Nickel, so dass die Critical Loads bei alternativer Verwendung der Geringfügigkeitsschwellenwerte als Eingangswerte in die Berechnung Abweichungen im Ergebnis von bis zu -95 % ergeben (Tabelle 60).

Tabelle 60:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M)_{eco} mit unterschiedlichen
kritischen Gesamt-Konzentrationen im Sickerwasser und sonst gleichen Eingangsdaten
an einem Acker-Standort mit Braunerde-Vega aus tonig-lehmigen Auensedimenten in
der subatlantischen Klimazone und an einem Wald-Standort mit Sand-Braunerde in der
subkontinentalen Klimazone

		Metall-k im Sicke	Konzentr rwasser	ation	Critical Loads Ökosystem- schutz		
		[As] _{crit}	[Cr] _{crit}	[Ni] _{crit}	CL(As) _{eco}	CL(Cr) _{eco}	CL(Ni) _{eco}
verwendete Eingangsda-	Weizen	70,0	44,0	106,8	205,6	132,9	315,0
ten und Ergebnisse in diesem Projekt	Silomais	70,0	44,0	106,8	206,9	162,6	339,8
diesem Projekt	Grünlandpflanzen	70,0	44,0	106,8	206,1	132,1	320,1
	Kiefer	70,0	44,0	197,9	46,2	29,7	133,9
alternative Eingangsdaten	Weizen	3,2	3,4	7,0	9,7	13,8	22,4
(hier: Geringfügigkeits-	Silomais	3,2	3,4	7,0	11,0	43,6	47,2
al. 2016) und Ergebnisse	Grünlandpflanzen	3,2	3,4	7,0	10,1	13,0	27,5
	Kiefer	3,2	3,4	7,0	2,1	2,9	7,9
Abweichungen [%]	Weizen	-95,4	-92,3	-93,4	-95,3	-89,6	-92,9
	Silomais	-95,4	-92,3	-93,4	-94,7	-73,2	-86,1
	Grünlandpflanzen	-95,4	-92,3	-93,4	-95,1	-90,2	-91,4
	Kiefer	-95,4	-92,3	-96,5	-95,4	-90,3	-94,1

Die prozentuale Abweichung der Critical Limits bei alternativer Verwendung der Geringfügigkeitsschwellen nach Zeddel et al. (2016) schlägt sich in eine fast gleich hohe prozentuale Abweichung der CL(M)_{eco} durch.

3.3.8.6 pH-Wert

In dem in Tabelle 61betrachteten pH-Wert-Bereich bewirken höhere pH-Werte niedrigere Critical Loads. Die pH-Werte, die in die Ermittlung der pH-abhängigen Critical Limits und damit in die Berechnung der CL(M)eco eingingen, sind, wie in Kapitel 3.3.5.4 ausgeführt, aus der Angabe der Säurestufe je Horizont der Leitbodenprofile der BÜK1000N abgeleitet. Dies sind Durchschnittswerte für die typischen Bodenformen in Deutschland unter der jeweiligen Nutzung. Da eine Vielzahl von Eingangsparametern neben dem pH-Wert in die WHAM-Modellierung der Critical Limits eingeht, mussten für die Sensitivitätsanalyse hinsichtlich des pH-Wertes zum Vergleich Bodenprofile gesucht werden, bei denen alle anderen Eingangsdaten (Sickerrate, OM-, DOM-, DOC-Gehalte, pCO2) gleich sind und nur der tiefenstufengewichtete Mittelwert des pH-Wertes abweicht. Allerdings sind die Erträge entsprechend der hier zu Grunde liegenden Ermittlung der Ertragspotenziale in einem basenarmen und in einem basenreichen Boden nicht identisch. Obwohl ein höherer Ertrag tendenziell zu höheren CL führt, überwiegt der gegenläufige Einfluss des pH-Wertes auf die Critical Load bei Weitem (Tabelle 61).

Tabelle 61:

Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M)eco mit unterschiedlichen pH-Werten und sonst gleichen Eingangsdaten an einem Wald-Standort mit Sand-Braunerde in der atlantischen Klimazone Nordwestdeutschlands

	niedriger pH-	Wert	hoher pH-Wo	ert	Abweichung [%]		
	Buche	Kiefer	Buche	Kiefer	Buche	Kiefer	
Boden	Braunerde au nährstoffarme	s en Sanden	Braunerde au nährstoffreic	us hen Sanden			
рН [-]	4,1	4,1	4,9	4,9	19,9	19,9	
Ertrag [t TS ha ⁻¹ a ⁻¹]	4,4	1,7	4,7	1,9	5,7	7,7	
CL(Pb) _{eco} [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	41,7	30,7	13,4	8,2	-67,9	-73,2	
CL(Cd) _{eco} [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	9,1	9,0	5,4	6,2	-40,9	-31,4	
CL(Ni) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	586,1	462,0	268,2	210,6	-54,2	-54,4	
CL(Zn) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	213,1	174,8	153,4	128,9	-28,0	-26,3	
CL(Cu) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	32,0	21,3	12,5	5,8	-60,9	-73,0	

Obwohl der pH-Wert nur um ca. 20% differiert und gleichzeitig die Ertragsschwankungen tendenziell eher ausgleichend wirken, ergeben sich Abweichungen des CL(M)_{eco} von 26% bis 73%.

Unplausible pH-Werte zeigen sich bei einigen Leitbodenprofilen unter Wald. Beispielsweise ergibt sich für Pseudogley-Tschernoseme aus Löss über Ton- und Mergelgesteinen unter Wald in den obersten 30cm des Mineralbodens aus den Gehalten austauschbarer Kationen eine Basensättigung von 7,1%, das entspricht etwa einem pH-Wert von 3,2. Dies erscheint viel zu niedrig für diese Bodenform.

Bei Hochmooren ergeben die hohen Gehalte an Ca und Mg eine Basensättigung von 100% und einen pH-Wert von 6,8. Dies ist für Hochmoore nicht erklärbar.

Unplausible Werte an 4 der o.g. Leitbodenprofile wurden deshalb nicht in die CL-Rechnung übernommen, sondern durch fachgutachterliche Schätzungen ersetzt. Dies bedingt jedoch eine gewisse Unsicherheit.

3.3.8.7 Gehalt an organischer Substanz

Der Gehalt an organischer Substanz wurde aus der Angabe der Humusklasse zu den Horizonten der Leitbodenprofile der BÜK1000N abgeleitet (Kapitel 3.3.5.4). Eine beispielhafte Gegenüberstellung der CL-Ergebnisse erfordert daher den Vergleich zweier Leitbodenprofile mit deutlich differierenden Humusklassen und sonst gleichen Parameter-Werten, wie er auf Böden der gleichen Bodenformengruppe unter Grünlandnutzung vorkommt (Tabelle 62). Tabelle 62:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(M)_{eco} mit unterschiedlichen
Gehalten an organischer Masse und sonst gleichen Eingangsdaten an Grünland-
Standorten mit Geschiebelehm in der subkontinentalen Klimazone Nordostdeutschlands

Vegetation	Gras	Gras	Abweichung		
Boden	Bänder- Parabraunerde aus Geschiebe- lehm	Anmoor-Gley aus Geschiebelehm	[%]		
OM [Masse-%]	1	15	-93,3		
$CL(Pb)_{eco} [g ha^{-1} a^{-1}]$	13,0	14,8	-12,2		
CL(Cd) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	5,3	5,5	-3,6		
CL(Hg) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,22	0,22	-2,2		
CL(Ni) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	273,3	280,8	-2,7		
CL(Zn) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	358,9	370,1	-3,0		
CL(Cu) $_{eco}$ [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	36,7	46,4	-20,9		

Die Auswirkungen einer hohen Abweichung des OM-Gehaltes von 93% schlagen sich nur gedämpft auf den jeweiligen Critical Load durch. Die maximale Abweichung beträgt 21% beim CL(Cu)_{eco}.

Bei der Ableitung der OM-Gehalte aus den Humusklassen sind keine Unplausibilitäten aufgefallen.

3.3.8.8 Gehalt an gelöster organischer Substanz und gelöstem organischen Kohlenstoff

Die hier in diesem Projekt verwendeten Werte für Laub- und Nadelwald sind aus de Vries et al. (2005) entnommen. Im Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel 5.5) ist nur ein Wert für Wald allgemein angegeben.

Kalbitz et al. (2004) veröffentlichten Ergebnisse einer Feldstudie an 23 Referenzstandorten mit Fichtenbeständen. Der DOC-Mittelwert über die O-Horizonte beträgt demnach 41,3 mg/l. Diese Daten aus deutschen Wäldern passen sehr gut mit den niederländischen Daten für Nadelwälder (de Vries et al. 2005) überein. Deren Spanne reicht von ca. 22-83 mg/l.

Im Manual wird darauf hingewiesen, dass die Anzahl an untersuchten Standorten noch nicht ausreiche, um Verallgemeinerungen für verlässliche Referenzwerte ableiten zu können. Dieser Parameter sei noch mit einer sehr hohen Unsicherheit behaftet. Deshalb werden in Tabelle 63 die Ergebnisse mit den Varianten nach de Vries et al. (2005) und nach Manual (CLRTAP 2016), sowie mit einem fiktiven extrem niedrigen Wert und einem extrem hohen Wert dargestellt. Da Quecksilber weitgehend nur in der organischen Auflage vorkommt, ist der CL(Hg)_{eco} gegenüber den anderen Metallen (Manual, Tabelle 5.21) besonders sensibel abhängig vom DOC/DOM-Gehalt. Tabelle 63:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(Hg)_{eco} mit unterschiedlichen
Gehalten an gelöster organischer Masse und sonst gleichen Eingangsdaten an einem
Nadelwald- und einem Laubwald-Standort mit Geschiebelehm in der subkontinentalen
Klimazone Nordostdeutschlands

		DOC	CL(Hg) _{eco}	Abweichung CL(Hg) _{eco}
		g m ⁻³	g ha ⁻¹ a ⁻¹	%
verwendete Eingangsdaten und	Buche	32	0,2288	
Ergebnisse in diesem Projekt ¹⁾	Kiefer	40	0,1736	
Eingangsdaten nach Manual ²⁾	Buche	35	0,2420	6
	Kiefer	35	0,1562	-10
alternative Eingangsdaten und	Buche	1	0,0924	-60
Ergebnisse aus fiktiven Annah-	Kiefer	1	0,0380	-78
	Buche	100	0,5279	131
	Kiefer	100	0,3822	120

Quellen: ¹⁾ deVries et al. 2005, ²⁾ Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel V.5)

Die Abweichungen der CL(Hg)_{eco} -Ergebnisse für extreme Varianten von den Ergebnissen dieses Projektes sind sehr hoch (Maximum 131%). Jedoch ist die Abweichung der Ergebnisse mit den Varianten nach de Vries et al. (2005) und nach Manual (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016) nur gering (Maximum: -10%).

Tabelle 64:Sensitivitätsanalyse anhand einer Beispielrechnung für CL(Cd)eco und CL(Pb)eco mit
unterschiedlichen pH und Gehalten an gelöster organischer Masse und sonst gleichen
Eingangsdaten an einem Nadelwald- und einem Laubwald-Standort mit Pararendzina
aus Mergel in der subkontinentalen Klimazone Nordostdeutschlands

		DOC	рН	CL(Cd) _{eco}	CL(Pb) _{eco}	Abwei- chung CL(Cd) _{eco}	Abwei- chung CL(Pb) _{eco}
		g m ⁻³	-	g ha ⁻¹ a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹	%	%
verwendete DOC-Daten und	Buche	32	4,0	8,97	42,7		
Ergebnisse in diesem Projekt ¹⁾	Kiefer	40	4,0	8,89	31,8		
DOC nach Manual ²⁾	Buche	35	4,0	8,97	42,7	0	0
	Kiefer	35	4,0	8,83	31,5	-1	-1
alternative Eingangsdaten und	Buche	1	4,0	8,84	40,1	-1	-6
Ergebnisse aus fiktiven An-	Kiefer	1	4,0	8,73	29,5	-2	-7
	Buche	100	4,0	9,28	48,5	3	14
	Kiefer	100	4,0	9,07	36,0	2	14
verwendete DOC-Daten und	Buche	32	7,0	9,03	26,0		
Ergebnisse in diesem Projekt ¹⁾	Kiefer	40	7,0	9,73	21,6		

			рН	CL(Cd) _{eco}	CL(Pb) _{eco}	Abwei- chung CL(Cd) _{eco}	Abwei- chung CL(Pb) _{eco}
		g m ⁻³	-	g ha ⁻¹ a ⁻¹	g ha ⁻¹ a ⁻¹	%	%
DOC nach Manual ²⁾	Buche	35	7,0	9,08	26,0	0	0
	Kiefer	35	7,0	8,91	18,3	-8	-15
alternative Eingangsdaten und	Buche	1	7,0	1,92	7,5	-79	-71
Ergebnisse aus fiktiven An-	Kiefer	1	7,0	3,26	3,7	-67	-83
	Buche	100	7,0	15,15	63,5	68	144
	Kiefer	100	7,0	13,71	47,9	41	121

1) nach de Vries et al. (2005), Tabelle 48

2) nach Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015 / 2016, Kapitel V.5)

3.3.8.9 Zusammenfassende Schlussfolgerungen

Die stichprobenartigen Sensitivitätsberechnungen sind so angelegt, dass jeweils die mögliche Spannbreite der Abweichungen der in diesem Projekt für die CL-Ermittlung verwendeten Eingangsdaten von alternativen Werten abgebildet wird (Tabelle 65).

Tabelle 65:Maximal mögliche Abweichungen der Eingangswerte in Deutschland und die daraus
resultierenden maximal möglichen Abweichungen der Critical Loads

	mögliche Ab- weichung des Eingangswertes vom CL- Eingangswert dieses Projek- tes [%]	maximal mög- liche Abwei- chung des variierenden CL vom CL dieses Projek- tes [%]	Quotient aus Spalte 2 und 3	CL mit der größtmöglichen Abwei- chung
Ertrag	28	5,9	0,2	CL(Cu) _{eco} für Podsole aus schwach Iehmigen Sanden
Metallgehalt im Erntegut	300	169	0,6	CL(Pb) _{eco} auf Silomais-Äckern
Sickerwasserrate	68	68	1,0	CL(As) _{drink} u. CL(Cu) _{drink} für Kiefern- wald in Brandenburg
Critical Limit	96,5	94,1	1,0	CL(Ni) _{eco} für Kiefer
pH-Wert	19,9	-73	-3,7	CL(Pb) _{eco} , CL(Cu) eco für Kiefernwäl- der
Gehalt an OM	-93	-21	0,2	CL(Cu) _{eco} für Grasland

Diese Übersicht zeigt, dass bereits geringfügige positive pH-Wert-Abweichungen die größten negativen Auswirkungen auf die Critical Loads haben. Der pH-Wert ist demzufolge der Eingangsparameter, auf den alle Critical Loads am sensitivsten reagieren. Allerdings sind die pH-Werte, wie sie in diesem Projekt für die CL-Berechnung eingesetzt wurden, aus der Datenbank der BÜK1000N (BGR 2014a) aus bundesweiten Messkampagnen abgeleitet, d. h. repräsentativ für die typischen Bodenformen Deutschlands und außerdem qualitätsgeprüft und eine der Quellen mit den geringsten Unsicherheiten. Einschränkend muss auf die 8 Referenzprofile von insgesamt 674 Profilen der BÜK-Datenbank verwiesen werden, für die die pH-Werte aus unserer fachgutachterlichen Sicht nicht plausibel erscheinen (Kapitel 3.3.8.6).

Die größten Abweichungen bei den Eingangsdaten wurden für die Metallgehalte in der zu erntenden Biomasse gefunden. Der Einfluss dieser Abweichung auf den jeweiligen CL(M) ist aber gedämpft.

Ebenfalls den CL verringernd wirken sich negativ abweichenden OM-Gehalte aus, allerdings weniger drastisch als der pH-Wert. Jedoch konnten in der Literatur keine Angaben zu OM-Gehalten neben der hier verwendete BÜK1000N-Datenbank gefunden werden, so dass ein Vergleich mit Werten aus anderen Quellen nicht möglich war. Auch für diesen Parameter kann eingeschätzt werden, dass die in diesem Projekt verwendeten BÜK-Werte auf einer verlässlichen Datenbasis beruhen.

Bei allen anderen Eingangswerten ergibt der Vergleich mit anderen Literaturangaben, dass die hier für die CL-Berechnung angesetzten Werte unterhalb der Spanne oder in der unteren Hälfte der Wertespannen anderer Datenquellen liegen. Somit ergeben sich in diesem Projekt konservative Critical Loads auf der Basis konservativ angesetzter Sickerwasserraten, Metallgehalte im Erntegut und DOC-Gehalten im Boden.

Dabei sind die aus der BÜK1000N verwendeten bzw. abgeleiteten Eingangswerte (Ertragspotential, pH-Werte, OM-Gehalte) als robust zu bewerten. Auch die Sickerwasserraten nach BGR (2014b) sind qualitätsgeprüft.

Größere Unsicherheiten bestehen bei der Bestimmung der DOC-Gehalte, die zwar von de Vries et al. 2005 (Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004, 2014, 2015/2016) empfohlen werden, aber für die noch Validierungsbedarf besteht.

Die verwendeten kritischen Gesamt-Konzentrationen für Blei, Cadmium und Quecksilber beruhen auf NOEC-Werten für Pflanzen, Invertebraten und Boden-Mikroorganismen und basieren somit auf Wirkungsschwellen für terrestrische Ökosysteme. Die Schwellenwerte der Konzentration von Kupfer, Nickel und Zink sind effektbasiert anhand von NOEC-bzw. PNEC-Werten von Bodenwasser-Lebewesen erhoben worden. Insofern steht der Nachweis noch aus, dass Pflanzen nicht empfindlicher als die Mikroorganismen im Bodenwasser sind. Die kritischen Schwellenwerte für Arsen und Chrom sind aus NOEC- bzw. PNEC-Werten von Gewässer-Lebewesen auf terrestrische Ökosysteme übertragen worden. Für diese beiden Metalle bestehen daher noch die größten Unsicherheiten. Aus neuesten ökotoxikologischen Studien an Organismen im Sickerwasser wurden Geringfügigkeitsschwellenwerte abgeleitet (Zeddel et al. 2016), die bei Chrom und Arsen weit unterhalb der in Reinds et al. (2006) dokumentierten PNEC- bzw. NOEC-Werte liegen.

Die Critical Loads-Karten bieten einen deutschlandweiten Überblick über die Empfindlichkeit der Rezeptorflächen im Maßstab 1:1 Mio. Sie ermöglichen insbesondere einen Vergleich mit den aktuellen Einträgen für eine deutschlandweite Abschätzung der Risiken für Mensch und Umwelt. Sie bieten aber auch den relativen Vergleich der Empfindlichkeit der Rezeptorflächen untereinander sowie die Identifizierung regionaler Unterschiede in nationalen oder internationalen Auswertungen. Für die großmaßstäbige oder standortspezifische Auswertung sind sie aufgrund des kleinen Maßstabs nicht geeignet.

Insbesondere die Datengrundlagen der CL für Blei, Cadmium, Quecksilber können als gut validiert angesehen werden, aber auch die CL für Kupfer, Nickel und Zink können für die o.g. kleinmaßstäbigen Anwendungen empfohlen werden. Die Unsicherheiten der Karten für CL(As)_{eco} und CL(Cr)_{eco} sind jedoch noch erheblich. Weiterer Forschungsbedarf besteht insbesondere hinsichtlich der Ermittlung von ökotoxikologischen Critical Limits für Arsen und Chrom.

3.3.9 Überschreitung der Critical Loads

3.3.9.1 Deposition von Schwermetallen aus atmosphärischen Einträgen

Der Depositionsdatensatz wurde wie in Berichtsteil 1 dieses Projektes dargestellt durch den Projektpartner TNO berechnet und an ÖKO-DATA übergeben. Der Datensatz beinhaltet Informationen über die Konzentrationen und Depositionsflüsse verschiedener Schwermetalle (Cd, Pb, Ni, As, Zn, Cu, V und Cr) für die Jahre 2009, 2010 und 2011. Die Datenlieferung beinhaltete Textdateien mit Informationen über Koordinaten des Zentroiden der Gradzellen mit den Depositionsdaten. Die modellierten Daten für Cadmium und Blei wurden im Gradnetz 0,125° x 0,0625° des Long/Lat-Systems geliefert ("Datenpunkt fein" in Abbildung 65) und die Daten der anderen Schwermetalle in der Auflösung 0,5° x 0,25° ("Datenpunkt grob" in Abbildung 65). Die Methodik der Depositionsberechnung ist im Berichtsteil 1 dieses Projektes erklärt, wo auch die unterschiedlichen Maßstäbe der Depositionsdaten begründet wurden.

Die vorliegenden Punktdaten (Zentroide der Gridzellen und Schnittpunkte der Gitterzellen) wurden dem flächenhaften Gradnetz zugeordnet, welches die entsprechende Maschenweite der jeweiligen Auflösung aufweist. Dieser Schritt war nötig, um die Depositionsdaten mit dem Critical-Load-Datensatz vergleichen zu können. Das Vorgehen wird in Abbildung 65 veranschaulicht.



Abbildung 65: Depositionsdaten (punkt- und flächenhafte Darstellung) und Critical-Load-Datensatz

Die ursprünglich geteilten Depositionsdatensätze (trocken und nass) wurden zur Gesamtdeposition zusammengeführt, in die Mengeneinheit des Critical Loads [g ha-1 a-1] umgewandelt und mit den Critical-Load-Rezeptorflächen verschnitten. Nach eingehender Prüfung aller Jahre (2009, 2010 und 2011) bei allen Schwermetallen haben sich die Daten für 2010 als die höchsten heraus gestellt. Daher beschränkt sich die flächenhafte Darstellung auf das Jahr 2010.

Die visuelle Auswertung der Depositionsdaten zeigte, dass die Großstadtregionen (Ruhrgebiet, Berlin, Hamburg und Frankfurt/Main) und das Alpenvorland Brennpunktregionen für die atmosphärischen Einträge der meisten Schwermetalle sind (Abbildung 66, links). Darüber hinaus sind die Grenzregionen zu Polen und der Tschechischen Republik stärker mit As, Cd, Ni und Zn aus der Luft belastet, während die Grenzregion zu Frankreich und den Benelux-Staaten ein Hotspot für atmogene Chromdeposition ist. Vanadium aus der Luft ist besonders stark in den Küstenregionen (Nord- und Ostsee) präsent (Abbildung 66, rechts). Dies ist konform mit einer Studie aus dem Jahr 2013 (Visschedijk et al. 2013), in der die Emissionen des Schiffsverkehrs als eine wesentliche Quelle von Vanadium in der Luftfracht identifiziert wird.

Abbildung 66: Atmosphärische Gesamtdeposition von Cadmium (links) und Vanadium (rechts) im Jahr 2010 auf den verwendeten Rezeptorflächen (Kapitel 3.3.3)



Depositionsdaten für Cadmium und Blei für das Jahr 2010 wurden nicht nur im Rahmen dieses Projektes modelliert, auch EMEP/MSC-E hat zu dieser Thematik Daten veröffentlicht. Es wird deutlich, dass sich die beiden Datensätze (aus diesem Projekt und von EMEP) in den Größenordnungen gleichen (siehe Abbildung 67 und Abbildung 68, wobei die in diesem Projekt mit LOTOS-EUROS modellierten Werte für Cd etwas, für Pb deutlich niedriger als im EMEP-Datensatz sind.

Abbildung 67:Atmosphärische Gesamtdeposition für Cadmium (links) und Blei (rechts) für das Jahr2010 aus dem Berichtsteil 1 dieses Projektes



Abbildung 68: Atmosphärische Gesamtdeposition für Cadmium (links) und Blei (rechts) für das Jahr 2010 aus Ilyin et al. 2012 a



Die Spannen der Depositionen für das Jahr 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) zeigt Tabelle 66. Im Vergleich dazu zeigt die Tabelle die EMEP-Werte 2013 (EMEP 2015).

Quelle		Pb	Cd	As	Ni	Hg	тι	Cu	Zn	Cr	V
						[g ha ⁻¹ a ⁻¹]					
ii 1	5er Perz.	4,96	0,21	0,282	1,98			3,07	11,89	0,84	0,33
n in itste	25er Perz.	5,90	0,26	0,333	2,35			4,81	16,07	1,03	0,39
oner erich	50er Perz.	6,71	0,29	0,380	2,69			5,89	19,08	1,22	0,44
ositio D (Be	75er Perz.	7,81	0,33	0,437	3,10		keine	7,17	22,24	1,45	0,52
Dep(201(tes	95er Perz.	11,00	0,45	0,603	3,92		An-	10,67	33,38	2,08	0,85
Spannen der [Deutschland dieses Projekt	min	3,59	0,17	0,208	1,42		gabe	1,98	8,24	0,66	0,30
	max	87,25	2,33	1,026	7,11			29,42	76,63	3,97	1,90
	arithm. Mittel	7,24	0,31	0,401	2,80			6,42	20,25	1,31	0,49
×	Laubwald					0-0,76					
3 im 50 EMEP erz.	Nadel- wald					0,16-0,87					
201. , (E er Pe	Acker					0,8-0,35	keine				
nen ister -956	Sümpfe					0-0,31	gabe				
sitio 1 ² -Rá 15e	Grasland					0,08-0,34	0				
Depo 50 kn 2015)	semina- türl. Veg.					0-0,34					

Tabelle 66:Hintergrunddepositionen (gesamt) von Schwermetallen (Berichtsteil 1 dieses Projektes; EMEP 2015)

3.3.9.2 Schwermetalleinträge aus weiteren Quellen

Neben den in Kapitel 3.3.9.1 dargestellten atmosphärischen Einträgen von Schwermetallen spielen folgende weitere Eintragspfade eine bedeutende Rolle bei der Belastung von Böden:

- ► Ausbringung schwermetallhaltiger mineralischer und organischer ("Wirtschafts"-) Dünger auf landwirtschaftliche Nutzflächen (Acker und Intensiv-Grünland)
- Ausbringung von schwermetallhaltigen Pflanzenschutzmitteln auf landwirtschaftliche Nutzflächen
- > Ausbringung von schwermetallhaltigen Kalkdüngern in Forsten

Hierzu liegt ein Forschungsbericht von Knappe et al. (2008) im Auftrag des Umweltbundesamtes vor, der bundesweite Erhebungen dieser Eintragspfade beinhaltet und im Folgenden ausgewertet wird (Tabelle 67):

Schwerme	tall	Acker				Grünland		Öko-	Wald
		Mineral- dünger	Kom- post	Klär- Wirt- schlamm schafts- dünger		Mineral- dünger	Wirt- schafts- dünger	land- bau	Kal- kung
					g ha⁻¹ a	1 ⁻¹			
Arsen	min	0,99	8,91	4,4	0,76	1,07	2,61	0,527	0,4
	max	1,69	31,28	7,97	3,9	1,28	4,98	0,72	
Blei	min	4,19	82,82	47,98	1,81	8,11	8,65	0,859	0,7
	max	8,76	315,89	87,28	10,39	9,31	10,94	1,245	
Cadmium	min	1,33	1,61	1,14	0,4	2,05	0,66	0,619	0,2
	max	3,3	4,57	2,61	1,43	2,61	0,86	0,82	
Chrom	min	46,61	73,42	55,45	40,65	24,42	21,51	8,82	8,2
	max	57,23	163,8	70,14	59,32	29,2	27,32	10,38	
Kupfer	min	11,27	98,61	282,21	8,8	20,27	81,43	0,78	0,8
	max	34,61	397,79	514,49	220,17	27,13	174,27	3,53	
Nickel	min	6,64	31,83	26,76	5,15	5,4	8,32	1,75	1,6
	max	9,16	109,76	45,77	16,75	5,8	14,82	2,03	
Quecksil- ber	min	0,01	0,27	0,64	0,01	0,03	0,06	0,037	0,06
	max	0,05	1,06	1,19	0,09	0,03	0,12	0,046	
Thallium	min	0,08	0,26	0,33	0,04	0,11	0,13	0,08	0,09
	max	0,18	0,85	0,64	0,23	0,14	0,24	0,09	
Zink	min	66,76	376,05	694,12	31,09	99,35	331,6	9,73	4,2
	max	250,2	1445,75	1272,09	911,77	129,54	706,5	27,48	

Tabelle 67:Eintragsfrachten in Deutschland aus Düngung in der Land- und Forstwirtschaft (in g ha⁻¹
a⁻¹) (aus Knappe et al. 2008)

Die Critical Loads bezeichnen laut Definition im Manual des ICP Modelling and Mapping (CLRTAP 2004-2016) tolerierbare Gesamteinträge in die Ökosysteme, wobei negative Werte eine Unterschreitung der Critical Loads durch die Einträge bedeuten. Wenn man dementsprechend die Düngereinträge bei der Ermittlung der Überschreitungen mit einbezieht, ergibt sich folgendes Bild der tatsächlichen Belastung der Böden in Deutschland.

Dabei werden die Überschreitungsraten wie folgt berechnet:

 $MinExcCL(M)_{eco} = (MinM_{dep} + MinM_{düng}) - CL(M)_{eco}$

und

 $MaxExcCL(M)_{eco} = (MaxM_{dep}+MaxM_{dung})-CL(M)_{eco}$

mit:

MinExcCL(M)_{eco} = minimale Ökosystem-Critical Loads-Überschreitung in den deutschen Rezeptorflächen durch Gesamtdepositionen aus der Luft und aus Düngereinträgen

159

MaxExcCL(M) _{ecc}	, =	maximale Ökosystem-Critical Loads-Überschreitung in den deutschen Rezeptorflä- chen durch Gesamtdepositionen aus der Luft und aus Düngereinträgen
$MinM_{dep}$	=	Minimum der Gesamtdepositionen aus der Luft in den deutschen Rezeptorflächen, entspricht dem höchsten Minimum der drei Jahre 2009-2011
$MaxM_{dep}$	=	Maximum der Gesamtdepositionen aus der Luft in den deutschen Rezeptorflächen entspricht dem höchsten Maximum der drei Jahre 2009-2011
$MinM_{d\ddot{u}ng}$	=	Minimum der Metalleinträge mit der Düngung in den deutschen Rezeptorflächen
$MaxM_{\text{düng}}$	=	Maximum der Metalleinträge mit der Düngung in den deutschen Rezeptorflächen
CL(M) _{eco}	=	Median der Ökosystem-Critical Loads für das Metall in den deutschen Rezeptorflächen

Die Critical Loads für Schwermetalle bezeichnen laut Definition im Manual des ICP Modeling & Mapping (CLRTAP 2004-2016, Kapitel V.5) tolerierbare Gesamteinträge in die Ökosysteme.

Tabelle 68:Überschreitung der CL(M)eco (Mediane) unter Berücksichtigung sowohl der atmogenen
Eintragsfrachten in Deutschland als auch der Frachten aus Düngung in der Land- und
Forstwirtschaft nach Knappe et al. (2008)

Schwermetall		atmogene Depositi- on MinM _{dep}			Eintrag MinM _{dür}	aus Düngung	:	Überschreitung der CL(M) _{eco} MinExcCL(M) _{eco} ;			
					MaxM _{dü}	ng		MaxExcCL(M) _{eco}			
		MaxM	dep								
		2009	2010	2011	Acker	Grünland	Wald	Acker	Grünland	Wald	
						g ha ⁻¹ a	a ⁻¹				
Arsen	min	0,22	0,21	0,17	15,1	3,68	0,4	-425	-436	-439	
	max	0,93	1,03	0,81	44,8	6,26		-394	-433		
Blei	min	3,81	3,59	3,36	137	16,8	0,7	120	-0,43	-16,5	
	max	71,1	87,3	59,8	422	20,3		472	70,3		
Cadmium	min	0,17	0,17	0,14	4,48	2,71	0,2	-5,85	-7,62	-10,1	
	max	1,91	2,33	1,6	11,9	3,47		3,74	-4,7		
Chrom	min	0,63	0,66	0,66	216	45,9	8,2	-84	-254	-292	
	max	3,59	3,97	3,05	350	56,5		53	-241		
Kupfer	min	2,47	1,98	2,41	401	102	0,8	359	60	-40,7	
	max	22,5	29,4	18,9	1167	201		1152	187		
Nickel	min	1,45	1,42	1,25	70,4	13,7	1,6	-496	-553	-565	
	max	6,6	7,11	5,83	181	20,6		-379	-540		
Quecksilber	min	k.A.	k.A.	k.A.	0,93	0,09	0,06	>0,53	>-0,31	>-0,34	
	max	k.A.	k.A.	k.A.	2,39	0,15		>1,99	>-0,25		
Zink	min	9,24	8,24	8,66	1168	431	4,2	831	94	-333	
	max	66,3	76,6	57,5	3880	836		3610	567		
Somit zeigt sich, dass die Belastung der landwirtschaftlich genutzten Böden mit Schwermetallen nur zu einem Bruchteil aus der Atmosphäre resultiert. Der Eintrag mit Düngemitteln überwiegt den atmogenen Eintrag bei allen betrachteten Schwermetallen meist um mehrere Hundert Prozent.

Dennoch besteht auch bei summarischer Bestimmung der Einträge hinsichtlich der Schwermetalle Arsen und Nickel kein Risiko für Äcker, Grünland oder Wald. Vergleicht man die Maximaleinträge aus Düngung und aus der Luft mit dem deutschlandweit niedrigsten Critical Loads für Arsen CL(As)_{eco} (128,5 g ha⁻¹ a⁻¹) ergibt sich dennoch keine Überschreitung. Bei Nickel (CL(Ni)_{eco}-Minimum = 42 g ha⁻¹ a⁻¹) ist im worst case mit einer Überschreitung auf Ackerflächen zu rechnen.

Ein Risiko besteht für Ackerböden, wenn Cadmium oder Chrom mit der maximalen Depositionsrate auf durchschnittlich empfindliche Böden treffen.

Ein hohes Risiko besteht für Acker- und Grünlandböden durch Blei, Kupfer und Zink bereits schon bei minimalen Einträgen aus der Luft zuzüglich minimaler Einträge aus Düngern.

Der Wald mittlerer Empfindlichkeit ist nicht durch Schwermetall-Einträge aus der Luft und durch Düngung gefährdet.

Der Vergleich der Einträge von Cadmium durch Düngung mit dem CL(M)_{food} (3-9 g ha⁻¹ a⁻¹) zeigt ein potenzielles Risiko für die menschliche Gesundheit beim Verzehr von Weizenprodukten aus deutscher Herkunft.

Wie die Aussagen, dass potenzielle Risiken bestehen, zu interpretieren sind, wird in Kapitel 3.5 diskutiert.

3.3.9.3 Critical-Load-Überschreitungen durch atmosphärische Einträge im deutschen Datensatz

Nach Vergleich der aus diesem Projekt vorliegenden Depositionsdaten für 2009-2011 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) mit den jeweiligen Critical Loads haben sich drei Überschreitungsfälle ergeben: Blei (Trinkwasser- und Ökosystemschutz) und Kupfer (Ökosystemschutz).

Die Critical-Load-Überschreitung für Blei-Depositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Trinkwasserqualität ist nur auf einer relativ kleinen Rezeptorfläche zu verzeichnen. Zwischen 1,32 % (2011) und 2,44 % (2010) der Rezeptorfläche weisen ein erhöhtes Risiko für die Trinkwasserqualität durch luftgetragene Schadstoffdeposition von Pb auf (siehe Abbildung 69). Die Critical-Load-Überschreitung mit Kupfer-Depositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität fällt ebenfalls relativ gering aus. Die Werte variieren zwischen 0,35% (2011) und 1,16% (2010) der Rezeptorflächen (Abbildung 71).

Ein deutlich höherer Flächenanteil ist durch eine Critical-Load-Überschreitung bei Blei-Depositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität betroffen. Hier werden Flächenanteile zwischen 5,18% (2011) und 14,36% (2010) erreicht (siehe Abbildung 70). In absoluter Flächengröße entspricht das 14.494 km² (2011) und 40.181 km² (2010). Die Schwerpunkte liegen unter anderem im Leipziger und Thüringer Becken, den Lössbörden (u.a. das nördliche Harzvorland und die Niedersächsischen Börden), dem Erzgebirgsvorland, dem Niedersächsischen Bergland, in Teilen des Rücklandes der Mecklenburgischen Seenplatte und in Teilen des Ruhrgebietes (niederrheinisches Tiefland und Kölner Bucht). Diese Gebiete sind bereits als besonders empfindlich gegenüber Bleideposition ausgewiesen (Abbildung 48). Die Karten der Überschreitungsraten der Critical Loads für Blei (Trinkwasser- und Ökosystemschutz) und Kupfer (Ökosystemschutz) enthält Anhang A3.3. Die kartographische Darstellung von Überschreitungen weiterer Critical Loads erübrigt sich, da 2010 keine Überschreitungen dieser CL zu verzeichnen sind.





Abbildung 70: Flächenanteile an der Rezeptorfläche mit Critical-Load-Überschreitung mit Blei-Depositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität







Diese Ergebnisse auf Basis der Depositionsberechnungen mit dem LOTOS-EUROS-Modell (Berichtsteil 1 dieses Projektes) weichen deutlich von den Depositionsberechnungen mit EMEP ab (Kapitel 2.3.2). Aus dem LOTOS-EUROS-Modell resultieren durchgängig geringere Mediane und Maxima als EMEP. Die EMEP/ LOTOS-EUROS -Quotienten korrelieren sehr stark mit der Depositionshöhe, d.h. dort, wo EMEP besonders hohe Depositionen berechnet (z.B. Pb im Ruhrgebiet oder Cd in Nordrhein-Westfalen), sind auch die Differenzen zwischen beiden Modellierungen am höchsten. Umgekehrt ist die mit LOTOS-EUROS berechnete niedrige Deposition, z. B. in Höhenlagen im Süden Bayerns, höher als bei EMEP (Cd: 45 % höher, Pb: 12 % höher).

Die integrative Analyse der LOTOS-EUROS -Modellierungen (2005, 2007-2011, Deutschland) mit den geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallgehalte im Moos (EMS, 2005, Deutschland) (siehe Kapitel 2.5.2) ergab stärkere statistische Zusammenhänge als die gemessenen Konzentrationen im Moos (siehe Kapitel 2.4.2). Bei Cu ist die Korrelation nur schwach. Bei Pb waren die mittleren Korrelationen zu LOTOS-EUROS stärker als zu EMEP, aber am stärksten zum arithmetischen Mittel von LOTOS-EUROS und EMEP.

Daraus folgt, dass bei Anwendung von EMEP-Hintergrunddepositionen der Anteil an Flächen mit Überschreitungen der Critical Loads höher wäre. Aber der Vergleich der geostatistischen Flächenschätzungen der Schwermetallgehalte im Moos mit den EMEP-Ergebnissen lässt auch den Schluss zu, dass die LOTOS-EUROS-Ergebnisse für die Pb-Depositionen näher an der Realität liegen, als die EMEP-Daten und somit zumindest für Pb die oben gezeigten Überschreitungsraten geringere Unsicherheiten aufweisen als bei Verwendung von EMEP-Depositionen. Die Unsicherheiten der LOTOS-EUROS-Ergebnisse sind nicht quantitativ erfassbar, weil es nicht genug Messdaten gibt, die gleichzeitig die nasse und die trockene Deposition enthalten.

3.3.9.4 Statistische Auswertung der Critical Loads-Überschreitungen

Im Folgenden werden die Gesamtdepositionen des Jahres 2010 (soweit aus Berichtsteil 1 dieses Projektes verfügbar), für Hg aus dem EMEP-Datensatz für Deutschland 2013) in den Spannen für die deutschen Rezeptorflächen mit den Critical Loads des deutschen Datensatzes 2016 (Minimum, 5er-, 95er Perzentil und Median) verglichen. Dieser Vergleich zeigt mögliche Risiken für Ökosysteme und die menschliche Gesundheit für die Flächen auf, die im deutschen Datensatz aufgrund seines kleinen Maßstabes nicht darstellbar sind. Da der Depositionsdatensatz 2010 höhere Depositionen im Durchschnitt über Deutschland aufweist als die Datensätze für 2009 und 2011, zeigt dieser Vergleich gleichzeitig tendenziell eher ungünstigere Verhältnisse auf, so dass die Risikoabschätzung konservativ ausfällt.

Die Berechnung der deutschen Datensätze der Critical Loads und der Depositionen erfolgte auf der Basis von Eingangsdaten, die im Maßstab von 1:1 Mio. erhoben wurden. Die Kartiereinheiten der BÜK1000N, CORINE 2006 (CLC 2006) und der nach Klimagebieten entsprechend Kapitel 3.3.3 klassifizierten Standorttypen sind in der Realität nicht homogen. Sie können Einsprengsel enthalten, die empfindlicher auf Schwermetalleinträge reagieren. Für größermaßstäbige flächenhafte Auswertungen oder gar für standortspezifische Aussagen ist der deutsche Datensatz der Critical Loads 2016 sowie der Überschreitungen von Critical Loads in Jahr 2010 deshalb nicht anwendbar. Eine grobe Orientierung für Einzelstandorte kann aus dem deutschen Datensatz nur dann abgeleitet werden, wenn flächen- oder standortspezifisch nachweislich gleiche Standortbedingungen herrschen, die in den deutschen CL(M)- und Depositions-Datensätzen zugrunde gelegt wurden. Um dennoch eine Aussage zu den Risiken auch für Flächen ableiten zu können, die im Maßatab 1: 1 Mio nicht darstellbar sind, werden die jeweiligen worst case-Werte miteinander verglichen, d. h. die untere Spannengrenze der Critical Loads mit den oberen Spannengrenzen der Depositionen. Dabei wird angenommen, dass auch die Parameterwerte der flächenmäßig im Maßstab 1:1 Mio. nicht repräsentativen Standorttypen, die in den deutschen Datensätzen nicht abgebildet sind, nicht außerhalb der Spannen der Critical Loads und der Depositionen in Deutschland liegen würden.

Die Gegenüberstellung der Spannen von Critical Loads und Deposition zeigt das Risiko auf, ob und in welchem Maße im worst case eine weitere Anreicherung von Schwermetallen in den Ökosystemen bzw. im Grundwasser oder im Boden der Weizenfelder über die kritischen Konzentrationen stattfinden könnte, wenn die jährlichen Depositionsraten auch in Zukunft auf dem Niveau von 2010 konstant verharren würden. Einschränkend ist hier jedoch darauf hinzuweisen, dass die zum Vergleich herangezogenen Depositionen, die deutschlandweit, wie in Berichtsteil 1 dieses Projektes beschrieben, modellgestützt ermittelt wurden, lokal deutlich höher sein könnten, z. B. auf Flächen mit Industrie-oder/und Verkehrskonzentrationen oder im Nahbereich einer besonders hoch emittierenden Anlage.

Quecksilber

Da keine deutschlandweiten Depositionsberechnungen einschließlich der trockenen Deposition im Berichtsteil 1 dieses Projektes vorliegen, kann die Einschätzung der gesamten atmogenen Belastungssituation nur anhand der EMEP-Depositionskartierung (Ilyin 2015) erfolgen (Tabelle 69).

Tabell	e 69:
--------	-------

Gegenüberstellung von Quecksilber-Depositionen aus EMEP im Jahr 2013 (Ilyin 2015) zu den Critical Loads der Rezeptorflächen in Deutschland

Quecksilber			
Deposition	EMEP2013 (5er Perz.)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,00
	EMEP 2013 (95er Perz.)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,87
Critical Loads			
CL(Hg) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0
CL(Hg) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,2 - 0,6 (0,4)
CL(Hg) _{drink}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,26
CL(Hg) _{drink}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,6-5,7 (3,2)

Aufgrund der Auswertung der EMEP-Gesamtdepositionswerte im Raster von 50 x 50km² ist zu vermuten, dass ein Anteil der Ökosystem-Rezeptorflächen Deutschlands, das sind diejenigen mit hoher bis mittlerer Empfindlichkeit, durch Quecksilbereinträge über dem Critical Load belastet werden. Zu den empfindlichen Ökosystemtypen zählen insbesondere die nicht genutzten Laubwälder trockener nährstoffarmer Standorte wie z. B. Eichentrockenwälder in den Trockengebieten Brandenburgs und Sachsen-Anhalts oder Hager-Buchenwälder der Küsten. Auch die Critical Loads für den Trinkwasserschutz werden in Deutschland im worst case deutlich überschritten. Das bedeutet, dass es im worst case zu einer schädlichen Anreicherung von Hg im Boden bzw. im Grundwasser kommen kann, sobald die Critical Limits im Boden und im Bodenwasser erreicht sind. Allerdings ist das Puffervermögen insbesondere der humusreichen Waldböden für Hg sehr hoch, so dass eine tatsächliche Schädigungen von Ökosystemkompartimenten auch bei Überschreitung der Critical Loads möglicherweise erst nach Jahrzehnten oder Jahrhunderten zu erwarten ist.

Cadmium

Die Gegenüberstellung der in diesem Projekt (Berichtsteil 1 dieses Projektes) ermittelten deutschlandweiten Rasterkarten der Gesamtdeposition von Cadmium im Jahr 2010 zu den in diesem Projekt ermittelten Critical Loads (Kapitel 3.3.7) zeigt Tabelle 70.

Tabelle 70:Gegenüberstellung von Cadmium-Depositionen zu den Beurteilungswerten sowie statis-
tische Auswertung des Flächenanteils vor Grenzwert-Überschreitungen geschützter Re-
zeptorflächen in Deutschland, 2010

Cadmium				
Deposition	5-95er Perz. (Median) aus Berichtsteil 1 dieses Projektes	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,21-0,45 (0,29)	
Deposition	Max	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	2,33	
Critical Loads:				
CL(Cd) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	1,53	
CL(Cd) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	4,1 – 42,4 (10,5)	
CL(Cd) _{drink}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,65	

CL(Cd) _{drink}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	2,5-18 (10,2)
CL(Cd) _{food}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	2,31
CL(Cd) _{food}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	3-9,3 (6)

Die maximale atmosphärische Deposition 2010 könnte auf einigen wenigen Flächen die Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme, des Trinkwassers und der Nahrungsmittel überschritten haben, wenn maximale Depositionsraten auf Flächen mit sehr niedrigem Critical Load (< 2,3 g ha⁻¹ a⁻¹) treffen. Das bedeutet, dass es im worst case zu einer nicht akzeptablen Anreicherung von Cd im Boden und im Trinkwasser kommen könnte, solange die Deposition über dem jeweiligen Critical Load liegt und die Critical Limits bereits erreicht sind.

Es besteht jedoch bei summarischer Bestimmung der Depositionen aus atmosphärischen und Düngereinträgen (Kapitel 3.3.9.2) ein Überschreitungsrisiko für Äcker, wenn maximale Gesamteinträge auf hoch bis durchschnittlich empfindliche Böden treffen.

Der Vergleich der maximalen Einträge von Cadmium durch Düngung mit dem CL(Cd)_{food} zeigt, dass Risiken für die menschliche Gesundheit beim Verzehr von Weizenprodukten aus deutscher Herkunft nicht auszuschließen sind, da eine nicht tolerierbare Erhöhung des Cd-Gehaltes im Boden gleichzeitig auch zu einer nicht tolerierbaren Erhöhung des Cd-Gehaltes im Weizenkorn führen kann (Knappe et al. 2008).

Blei

Die Gegenüberstellung der in Berichtsteil 1 dieses Projektes ermittelten deutschlandweiten Rasterkarten der Gesamtdeposition von Blei im Jahr 2010 zu den in diesem Projekt ermittelten Critical Loads (Kapitel 3.3.7) zeigt Tabelle 71.

Blei			
Deposition:	5-95er Perz. (Median) aus Berichtsteil 1 dieses Projektes	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	4,43-11 (6,71)
	Max	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	87,25
Critical Loads:			
CL(Pb) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	1,97
CL(Pb) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	6 - 601 (21)
CL(Pb) _{drink}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	2,8
CL(Pb) _{drink}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	9-61 (35)

Tabelle 71:Gegenüberstellung von Blei-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezep-
torflächen in Deutschland

Die maximale atmosphärische Deposition 2010 hat auf einem großen Teil der Flächen die Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme und des Trinkwassers überschritten. Das bedeutet, dass es hier zu einer nicht akzeptablen Anreicherung von Pb im Boden und insbesondere im Trinkwasser kommt, sobald die Critical Limits im Boden und im Bodenwasser erreicht sind. Es besteht bei summarischer Bestimmung der Depositionen aus atmosphärischen und Düngereinträgen (Kapitel 3.3.9.2) ein Überschreitungsrisiko für alle Äcker und Grünland, wenn maximale Gesamteinträge auf hoch bis durchschnittlich empfindliche Böden treffen.

Arsen

Die Gegenüberstellung der in Berichtsteil 1 dieses Projektes ermittelten deutschlandweiten Rasterkarten der Gesamtdeposition von Arsen im Jahr 2010 zu den in diesem Projekt ermittelten Critical Loads (Kapitel 3.3.7) zeigt Tabelle 72.

Arsen			
Deposition:	5-95er Perz. (Median) aus Berichtsteil 1 dieses Projektes	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,28-0,6 (0,38)
	Max	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	1,03
Critical Loads:			
CL(As) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	115
CL(As) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	181-711 (414)
CL(As) _{drink}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	2
CL(As) _{drink}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	6-56 (31)

Tabelle 72:Gegenüberstellung von Arsen-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Re-
zeptorflächen in Deutschland

Die Critical Loads zum Schutz der Ökosysteme und des Trinkwassers werden auch im worst case (Depositions-Maximum trifft auf Critical Loads-Minimum) deutlich unterschritten. Selbst bei Addition der Dünger-Einträge im Maximum zu den atmogenen Gesamteinträgen im Maximum ergibt sich keine Überschreitung der Critical Loads für den Ökosystem- oder für den Trinkwasserschutz.

Wenn man in die Critical Loads-Berechnung für den Ökosystemschutz anstelle der kritischen Konzentration im Sickerwasser nach Doyle et al. (2003, in Reinds et al. 2006, Kapitel 3.3.5.4) alternativ den Geringfügigkeitsschwellenwert (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) einsetzt, käme man auf einen Minimum-Critical Load von 2,9 g ha⁻¹ a⁻¹. Auch dieses Minimum würde im worst case nicht von der maximalen Deposition überschritten werden. Das gleiche gilt für den alternativ berechneten Minimum-Critical Load für den Trinkwasserschutz.

Kupfer

Die Gegenüberstellung der in Berichtsteil 1 dieses Projektes ermittelten deutschlandweiten Rasterkarten der Gesamtdeposition von Kupfer im Jahr 2010 zu den in diesem Projekt ermittelten Critical Loads (Kapitel 3.3.7) zeigt Tabelle 73.

Kupfer			
Deposition:	5-95er Perz. (Median) aus Berichtsteil 1 dieses Projektes	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	3,1-10,67 (5,89)
	Max	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	29,42
Critical Loads:			
CL(Cu) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	7
CL(Cu) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	13 - 710 (74)
CL(Cu) _{drink}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	484
CL(Cu) _{drink}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	1070-11268 (6172)

Tabelle 73:Gegenüberstellung von Kupfer-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Re-
zeptorflächen in Deutschland

Die maximale atmosphärische Deposition 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) hat auf einem Teil der Flächen die Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme überschritten. Das bedeutet, dass es hier zu einer nicht akzeptablen Anreicherung von Cu im Boden und/oder im Grundwasser kommt, sobald die Critical Limits im Boden überschritten sind.

Es besteht bei summarischer Bestimmung der Depositionen aus atmosphärischen und Düngereinträgen (Kapitel 3.3.9.2) ein Überschreitungsrisiko für alle Äcker und Grünland, wenn maximale Gesamteinträge auf hoch bis durchschnittlich empfindliche Böden treffen.

Zink

Die Gegenüberstellung der in Berichtsteil 1 dieses Projektes ermittelten deutschlandweiten Rasterkarten der Gesamtdeposition von Zink im Jahr 2010 zu den in diesem Projekt ermittelten Critical Loads (Kapitel 3.3.7) zeigt Tabelle 74.

	Zink			
Deposition:	5-95er Perz. (Median) aus Berichtsteil 1 dieses Projektes	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	11,89-33,38 (19,08)	
	Max	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	76,63	
Critical Loads:				
CL(Zn) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	81	
CL(Zn) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	189 - 1032 (565)	
CL(Zn) _{drink}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	1234	
CL(Zn) _{drink}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	2848 – 28316 (15628)	

Tabelle 74:Gegenüberstellung von Zink-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Rezep-
torflächen in Deutschland

Die Critical Loads zum Schutz der Ökosysteme und des Trinkwassers werden auch im worst case (Depositions-Maximum trifft auf Critical Loads-Minimum) gerade noch unterschritten. Einträge von Zn

mit Düngemitteln sind bereits im Minimum derart hoch, dass ein hohes Überschreitungsrisiko der Critical Loads für den Ökosystemschutz für alle Äcker und Grünland besteht. Da Grenzkonzentrationen für Zink im Trinkwasser nicht vorgegeben sind, kann ein Critical Load für den Trinkwasserschutz nicht ermittelt werden.

Chrom

Die Gegenüberstellung der in Berichtsteil 1 dieses Projektes ermittelten deutschlandweiten Rasterkarten der Gesamtdeposition von Chrom im Jahr 2010 zu den in diesem Projekt ermittelten Critical Loads (Kapitel 3.3.7) zeigt Tabelle 75.

Chrom			
Deposition:	5-95er Perz. (Median) aus Berichtsteil 1 dieses Projektes	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	0,84-2,08 (1,22)
	Max	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	3,97
Critical Loads:			
CL(Cr) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	78
CL(Cr) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	115 - 448 (263)
CL(Cr) _{drink}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	12
CL(Cr) _{drink}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	28-282 (156)

Tabelle 75:Gegenüberstellung von Chrom-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Re-
zeptorflächen in Deutschland

Die maximale atmosphärische Deposition 2010 kann auf keiner Fläche die Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme und des Trinkwassers überschritten haben. Das bedeutet, dass es im worst case zu keiner inakzeptablen Anreicherung von Cr im Boden und im Trinkwasser kommt.

Wenn man in die Critical Loads-Berechnung für den Ökosystemschutz anstelle der kritischen Konzentration im Sickerwasser nach Crommentuijn et al. (1997, in Reinds et al. 2006, Kapitel 3.3.5.4) alternativ den Geringfügigkeitsschwellenwert (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) einsetzt, käme man auf einen Minimum-Critical Load von 2,1 g ha⁻¹ a⁻¹. Dieses Minimum würde jedoch im worst case von der maximalen Deposition überschritten werden. Das gleiche gilt für den alternativ berechneten Minimum-Critical Load für den Trinkwasserschutz.

Es besteht ebenfalls bei summarischer Bestimmung der Depositionen aus atmosphärischen und Düngereinträgen (Kapitel 3.3.9.2) ein Überschreitungsrisiko für einen Teil der Ackerflächen Deutschlands, wenn maximale Gesamteinträge auf hoch bis durchschnittlich empfindliche Böden treffen.

Nickel

Die Gegenüberstellung der in Teil 1 dieses Projektes ermittelten deutschlandweiten Rasterkarten der Gesamtdeposition von Nickel im Jahr 2010 zu den in diesem Projekt ermittelten Critical Loads (Kapitel 3.3.7) zeigt Tabelle 76.

Nickel			
Deposition:	5-95er Perz. (Median) aus Berichtsteil 1 dieses Projektes	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	1,98-3,92 (2,69)
	Max	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	7,11
Critical Loads:			
CL(Ni) _{eco}	Min	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	37
CL(Ni) _{eco}	5-95er Perz. (Median)	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]	109 - 3338 (518)

Tabelle 76:Gegenüberstellung von Nickel-Depositionen im Jahr 2010 zu den Critical Loads der Re-
zeptorflächen in Deutschland

Die maximale atmosphärische Deposition 2010 kann auf keiner Fläche die Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme überschritten haben. Das bedeutet, dass es im worst case zu keiner inakzeptablen Anreicherung von Ni im Boden kommt. Da Grenzkonzentrationen für Nickel im Trinkwasser nicht vorgegeben sind, kann ein Critical Load für den Trinkwasserschutz nicht ermittelt werden.

Es besteht bei summarischer Bestimmung der Depositionen aus atmosphärischen und Düngereinträgen (Kapitel 3.3.9.2) kein Überschreitungsrisiko der Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme für Wald, Äcker und Grünland, selbst wenn maximale Gesamteinträge auf hoch bis durchschnittlich empfindliche Böden träfen.

Wenn man in die Critical Loads-Berechnung für den Ökosystemschutz anstelle der WHAM-Modellierungsergebnisse (Tipping et al. 2014) für die kritische Konzentration im Sickerwasser (Kapitel 3.3.5.4) alternativ den Geringfügigkeitsschwellenwert (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) einsetzt, käme man auf einen Minimum-Critical Load von 7,9 g ha⁻¹ a⁻¹. Auch dieses Minimum würde im worst case nicht von der maximalen Deposition überschritten werden. Das gleiche gilt für den alternativ berechneten Minimum-Critical Load für den Trinkwasserschutz.

Thallium

Critical Loads für Thallium zum Schutz von Ökosystemen können derzeit noch nicht bestimmt werden, weil keine valide Datenbasis für die Ableitung von wirkungsbasierten ökosystembezogenen Critical Limits existiert.

Anhaltspunkte für eine vorläufige grobe Abschätzung des Risikos von Thallium-Einträgen in die Rezeptor-Ökosysteme Deutschlands bietet eine berechnete Bilanz von Ein- und Austrägen in den für Deutschland typischen Spannen (Tabelle 77).

Der mittlere Tl-Gehalt in pflanzlicher Biomasse auf unbelasteten Böden beträgt 0,05 g t⁻¹ Trockensubstanz (Markert 1992). Somit ergibt sich die Spanne der Tl-Austräge mit der Biomasseernte durch Multiplikation dieser typischen Konzentration in Pflanzenbeständen unbelasteter Böden mit dem Minimum und dem Maximum der Erträge in Deutschland.

Im Sickerwasser kann der Geringfügigkeitsschwellenwert von 0,0002 g m⁻³ (Zeddel et al. 2016) als Critical Limit angesetzt werden. Dieser Schwellenwert ist ein ökotoxikologisch ermittelter Schwellenwert für eine Tl-Grenzkonzentration (ebenda).

	Acker	Grünland	Wald
Ertrag Minimum [t TS ha -1 a-1]	2,199	0,1	0,65
Ertrag Maximum [t TS ha -1 a-1]	14,088	6,5	7,4
Tl-Entzug durch Biomasseernte Minimum [g ha -1 a-1]	0,11	0,005	0,033
Tl-Entzug durch Biomasseernte Maximum [g ha -1 a-1]	0,704	0,325	0,37
Sickerwasserrate Minimum [m ³ ha ⁻¹ a ⁻¹]	175	125	70
Sickerwasserrate Maximum [m ³ ha ⁻¹ a ⁻¹]	949	678	380
Akzeptable Tl- Auswaschungsrate Minimum [g ha -1 a-1]	0,035	0,025	0,014
Akzeptable Tl- Auswaschungsrate Maximum [g ha -1 a-1]	0,19	0,136	0,076
Akzeptabler Tl-Gesamt-Austrag Minimum [g ha -1 a-1]	0,145	0,03	0,046
Akzeptabler Tl-Gesamt-Austrag Maximum [g ha -1 a-1]	0,894	0,46	0,446

Tabelle 77:Berechnung der akzeptablen Austräge von Thallium in der deutschlandtypischen Spanne
(Minimum, Maximum)

Da keine deutschlandweiten Depositionserhebungen vorliegen, kann keine Einschätzung der Belastungssituation erfolgen. Aber eine Messstation in Dortmund hat beispielsweise im Jahr 2013 eine jahresdurchschnittliche Konzentration erfasst, die umgerechnet eine Depositionsrate von 0,15 g ha⁻¹ a⁻¹ ergibt (LANUV 2015). Dieser Wert liegt in der Spanne für die akzeptable Austragsrate. Somit ist ein Risiko nicht sicher auszuschließen, dass empfindliche Ökosysteme langfristig überbelastet werden könnten.

Vanadium

Critical Loads für Vanadium zum Schutz von Ökosystemen können derzeit noch nicht bestimmt werden, weil keine valide Datenbasis für die Ableitung von wirkungsbasierten ökosystembezogenen Critical Limits existiert.

Anhaltspunkte für eine vorläufige grobe Abschätzung des Risikos von Vanadium-Einträgen in die Rezeptor-Ökosysteme Deutschlands bietet eine rechnerisch ermittelte Bilanz von Ein- und Austrägen in den für Deutschland typischen Spannen (Tabelle 78).

Zu akzeptablen Austrägen gehört die Biomasseernte. Man kann als mittleren V-Gehalt in pflanzlicher Biomasse 0,7 g t⁻¹ Trockensubstanz (TS) annehmen (Schroeder et al. 1963). Die Spannen der V-Austräge mit der Biomasseernte ergeben sich dann durch Multiplikation dieser typischen Konzentration in Pflanzenbeständen unbelasteter Böden mit dem Minimum und dem Maximum der Erträge in Deutschland.

Desweiteren kann als akzeptabler Austrag die Auswaschung mit dem Sickerwasser angerechnet werden, wobei als kritische Konzentration des Metalls im Sickerwasser der Geringfügigkeitsschwellenwert von 0,004 g m⁻³ angesetzt werden kann (Zeddel et al. 2016). Dieser humantoxische Schwellenwert ist geringer als der ökotoxikologische Schwellenwert für eine V-Grenzkonzentration (ebenda).

	Acker	Grünland	Wald
Ertrag Minimum [t TS ha ⁻¹ a ⁻¹]	2,199	0,1	0,65
Ertrag Maximum [t TS ha ⁻¹ a ⁻¹]	14,088	6,5	7,4
V-Entzug durch Biomasseernte Minimum [g ha -1 a-1]	1,54	0,07	0,455
V-Entzug durch Biomasseernte Maximum [g ha -1 a-1]	9,86	4,55	5,18
Sickerwasserrate Minimum [m ³ ha ⁻¹ a ⁻¹]	175	125	70
Sickerwasserrate Maximum [m ³ ha ⁻¹ a ⁻¹]	949	678	380
Akzeptable V-Auswaschungsrate Minimum [g ha -1 a-1]	0,7	0,5	0,28
Akzeptable V- Auswaschungsrate Minimum [g ha ⁻¹ a ⁻¹]	3,8	2,71	1,52
Akzeptabler V-Gesamt-Austrag Minimum [g ha -1 a-1]	2,24	0,57	0,735
Akzeptabler V-Gesamt-Austrag Minimum [g ha -1 a-1]	13,66	7,62	6,697

Tabelle 78:Berechnung der akzeptablen Austräge von Vanadium in der deutschlandtypischen Span-
ne (Minimum, Maximum)

Die maximale Deposition 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes und Tabelle 66) liegt für Wald und Grünland etwas oberhalb der minimalen akzeptablen Austräge. Im worst case (maximale Deposition trifft auf Flächen mit minimalen Austrägen) ist demnach ein Risiko der Beeinträchtigung von Ökosystemfunktionen nicht auszuschließen.

3.4 Vergleich und Diskussion der Beurteilungswerte, Risikobewertung der Schwermetalleinträge

Im Kapitel 3.2.3 sind die in dieser Erheblichkeitsbeurteilung berücksichtigten Beurteilungswerte hinsichtlich ihrer Ausrichtung auf Schutzziele, ein bestimmtes Schutzniveau, Anlagenbezug oder generelle Geltung beschrieben und miteinander verglichen worden. Beim Vergleich der in diesem Projekt berechneten Deposition als flächendeckender Datensatz für Deutschland mit den Beurteilungswerten, sind die Unterschiede zwischen den Beurteilungswerten von großer Bedeutung. Der für Deutschland berechnete Datensatz der Schwermetalldeposition entspricht methodisch in etwa dem deutschen Datensatz für die Gesamtdeposition von Stickstoff, der für die Bewertung von Umweltwirkungen von Projekten und Anlagen als Datengrundlage für die Ermittlung der Vorbelastung (Hintergrunddeposition) verwendet wird. Eine solche Anwendung ist aber für die Datensätze der Schwermetall-Gesamtdepositionen aufgrund der hohen Unsicherheiten (z. B. der Emissionsermittlung, vergleiche Berichtsteil I des Berichtes) nicht zu empfehlen. Es entspricht aber den Erwartungen, dass Beurteilungswerte für die Bewertung der Umweltwirkungen von Anlagen oder Projekten durch diese Hintergrunddeposition nicht überschritten werden (siehe Abbildung 73 und Anhang A3.3).

3.4.1 Schutz der menschlichen Gesundheit

Vergleicht man die Beurteilungswerte, die auf humantoxikologischen Schwellenwerten basieren und sich auf die allgemeine Gesamtbelastung beziehen, mit den entsprechenden Eintragsraten aus der Luft

(für Hg: EMEP-Depositionsrasterdaten des Jahres 2013; für alle anderen Metalle Depositionsrasterdaten für das Jahr 2010 aus Berichtsteil 1 dieses Projektes), dann ergibt sich folgendes Bild der Unterbzw. Überschreitungen in der Übersicht (Abbildung 72).

Ein Vergleich der anlagenbezogenen Beurteilungswerte für die Deposition nach TA Luft mit den Hintergrundbelastungen ergibt keine Aussage über die aktuell bestehenden Risiken und erfolgt daher im folgenden Abschnitt nicht. Alternativ wird angegeben, wie weit bereits die Hintergrunddeposition die Werte nach Tabelle 6 bzw. 8 der TA Luft oder vergleichbare Beurteilungswerte ausschöpft.

Abbildung 72: Beurteilungswerte für Schwermetallflüsse zum Schutz der menschlichen Gesundheit und Darstellung ihrer Unter- oder Überschreitung durch Einträge aus der Luft (für Hg: EMEP im Jahr 2013; für alle anderen: Deutscher Datensatz im Jahr 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes)

	TA Luft Tab. 6	TA Luft Tab. 8	39. BlmSchV Nadelwald/ Laubwald/ Offenland ¹⁾	EU-Position Paper Nadelwald/ Laubwald/ Offenland ¹⁾	CL(M) _{food}	CL(M) _{drink}			
	anlagent	bezogen	allgemeine Belastung						
	[g ha ⁻¹ a ⁻¹]								
Hg	4	110				0,3-13,8			
Cd	7	9	7/4/2,5	9-18	1,9-19,2	0,8-42,6			
Pb	365	675	716/420/250			3-142			
As	15	4271	6/4/2,2	3-9/4-13/1,5-5		2-138			
Ni	55		28/17/10	8-42/14-72/5-25					
Cu						484-27533			
Zn						1234-69133			
Cr						12-688			

¹⁾aus Beurteilungswerten für Konzentrationen umgerechnet anhand Teil 1 dieses Projektes, Tabellen 5 und 6



Die Immissionsgrenzwerte und -zielwerte der 39. Bundes-Immissionsschutzverordnung (39. BIm-SchV) sind zwar prinzipiell als Beurteilungswerte für die Gefährdung der menschlichen Gesundheit geeignet, jedoch sind die angegebenen Konzentrationen nicht unmittelbar vergleichbar mit den Depositionen des deutschen Datensatzes. Rechnet man die Konzentrationen mit Hilfe der mittleren Depositionsgeschwindigkeiten in den verschiedenen Vegetationskomplexen unter Berücksichtigung der Anteile der Grob- und Feinfraktion im Staub in Eintragsraten um, so ergeben sich für Nadel- und Laubwald sowie für Acker/Grünland unterschiedliche zulässige Eintragsraten.

Im EU Position Paper werden Immissions-Zielwerte (Konzentrationen in der Feinstaub-Fraktion PM10) für Arsen, Cadmium und Nickel benannt. Für Cadmium wird weiterhin ein Depositionsschwellenwert vorgeschlagen, der aus Konzentrationswerten abgeleitet wurde. Dabei handelt es sich um Vorschläge, die aus humantoxikologischen Daten abgeleitet wurden. Diese Beurteilungswerte sind daher für die Risikoabschätzung von Gesamteinträgen für die Gesundheit des Menschen geeignet. Die Beurteilungskonzentrationen für Arsen und Nickel wurden in zulässige Eintragsraten – wie oben angegeben - umgerechnet.

Zum Schutz des Trinkwassers wurden als Beurteilungswerte die Critical Loads (CL(M)_{drink}) für die atmogenen Gesamteinträge von Schwermetallen für die deutschen Rezeptorflächen im Maßstab 1:1 Mio. ermittelt, in die als kritische Schwellenwerte die Grenzkonzentrationen aus der bundesdeutschen Trinkwasser-Verordnung (BTrinkwV 2001) eingeflossen sind. Diese sind identisch mit den entsprechenden Grenzkonzentrationen der WHO-Richtlinie (WHO 2011). Die Critical Loads für den Trinkwasserschutz sind unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Sickerwasserraten und Vegetationstypen bestimmt worden. Insofern weisen sie gegenüber den absoluten Beurteilungswerten der 39. BImSchV und der TA Luft den höheren Differenzierungsgrad auf. Einträge in Höhe der Critical Loads führen zu einem Gleichgewicht von Gesamtein- und schadlosen Austrägen und garantieren somit die vorsorgliche Vermeidung einer Anreicherung von Schwermetallen im Trinkwasser über die Grenzwerte hinaus.

Somit ergibt sich hinsichtlich des Risikos für die menschliche Gesundheit durch Einträge der einzelnen betrachteten Schwermetalle folgendes differenziertes Bild:

Quecksilber

Die 39. BImSchV und das EU Position Paper enthalten keine Beurteilungswerte für Quecksilber.

Anhand der EMEP-Depositionsrasterkarte Deutschlands für das Jahr 2013 ergeben sich Überschreitungen der Critical Loads für den Trinkwasserschutz CL(Hg)_{drink} im deutschen Datensatz 2016 mit Schwerpunkt in Südostbrandenburg, in Nordost-Sachsen und im Südwesten Sachsen-Anhalts.

Die maximale Deposition schöpft den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 6 zu 22% und den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 8 zu 0,8% aus.

Cadmium

Zum Schutz von pflanzlichen Nahrungsmitteln (Weizenkorn) wurde als Beurteilungswert ein Critical Load für Cadmiumeinträge auf Weizenfeldern (CL(Cd)_{food} ermittelt, in den die Cadmium-Grenzkonzentration für Weizen entsprechend der Empfehlung des Manuals (CLRTAP 2004, 2016) eingeflossen ist. Dieser beträgt die Hälfte des in der EU-Verordnung (EC No. 1881/2006) gesetzten Grenzwertes. Der CL(Cd)_{food} wurde 2010 durch die atmosphärischen Cd-Depositionen in den Rezeptorflächen des deutschen CL-Datensatzes 2016 nicht überschritten. Es ist jedoch darauf hinzuweisen, dass die Belastung der landwirtschaftlich genutzten Böden mit Schwermetallen nur zu einem Bruchteil aus der Atmosphäre resultiert. Insbesondere der Vergleich der Einträge von Cadmium durch Düngung mit dem CL(M)_{food} zeigt die Gefährdung der schädlichen Anreicherung in Weizenäckern. Da der aktuelle Gehalt an Cadmium in Weizen mit dem Gehalt im Boden korreliert (Knappe et al. 2008), besteht aktuell ein Gefährdungspotenzial für die menschliche Gesundheit beim Verzehr von Weizenprodukten aus deutscher Herkunft.

Die Critical Loads für den Trinkwasserschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 (Tabelle 66) nicht überschritten. Im deutschen Datensatz 2016 könnten möglicherweise maßstabsbedingt Flächen nicht abgebildet sein, bei denen maximale Depositionsraten auf einen sehr niedrigem Critical Load (< 2,3 g ha⁻¹ a⁻¹) treffen (worst case). In diesen Fällen könnte die maximale atmosphärische Deposition 2010 (Tabelle 66) die Critical Loads für den Schutz des Trinkwassers und der Nahrungsmittel überschritten haben. Das bedeutet, dass es im worst case zu einer schädlichen Anreicherung von Cd im Trinkwasser und in Weizenprodukten kommen kann, solange die Deposition über dem jeweiligen Critical Load liegt und die Critical Limits überschritten sind.

Die CL(Cd)_{drink} und CL(Cd)_{food} liegen überwiegend im Bereich der Spanne aus dem EU-Positionspapier, gehen aber auch tiefer als diese. Der Zielwert für den Cadmium-Eintrag aus dem EU-Positionspapier (Tabelle 66) wird von den atmosphärischen Depositionen 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) weit unterschritten.

Die maximale Deposition schöpft den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 6 zu 27% und den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 8 zu 21% aus.

Wenn man den Beurteilungswert für die Konzentration aus der 39. BImSchV hilfsweise in eine Deposition umrechnet, ergäben sich Beurteilungswerte von 2,5-7 g ha⁻¹ a⁻¹, die von den Depositionen des deutschen Datensatzes sowie auch im worst case nicht überschritten würden. Allerdings ist dies nur eine Hilfsrechnung für einen groben Vergleich der Überschreitungsraten der CL(M)_{drink} und CL(M)_{food}.

Blei

Die Critical Loads zum Schutz des Trinkwassers werden durch atmosphärische Blei-Depositionen 2010 auf 2,41 % der Rezeptorflächen Deutschlands, überwiegend im Land Brandenburg, in Leipzig und im Ruhrgebiet, überschritten. Dieser Flächenanteil ist gegebenenfalls höher, da im deutschen Datensatz 2016 möglicherweise maßstabsbedingt Flächen nicht abgebildet sein könnten, bei denen maximale Depositionsraten auf einen sehr niedrigen Critical Load treffen (worst case) (Tabelle 71).

Die maximale Deposition schöpft den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 6 zu 19% und den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 8 zu 11% aus.

Wenn man den Beurteilungswert für die Konzentration aus der 39. BImSchV hilfsweise in eine Depositionsrate umrechnet, ergäben sich Beurteilungswerte von 250 -716 g ha-1 a-1, die von den Depositionen des deutschen Datensatzes sowie auch im worst case nicht überschritten werden.

Arsen

Die Critical Loads für den Trinkwasserschutz werden in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 von den atmogenen Depositionen 2010 nicht überschritten. Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Trinkwasserschutz ausgeschlossen.

Selbst wenn man eine Critical Loads-Berechnung für den Trinkwasserschutz alternativ auf Basis des Geringfügigkeitsschwellenwertes (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) durchführt, würde der resultierende minimale Critical Load im worst case von der maximalen Deposition nicht überschritten werden. Dabei entspricht der Geringfügigkeitsschwellenwert (Zeddel et al. 2016) dem Basiswert (Kapitel 3.2.1).

Die maximale Deposition schöpft den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 6 zu 6% und den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 8 zu 0,02% aus.

Wenn man den Beurteilungswert für die Konzentration aus der 39. BImSchV hilfsweise in eine Deposition umrechnet, ergäben sich Beurteilungswerte von 2,5-6 g ha⁻¹ a⁻¹, die von den Depositionen des deutschen Datensatzes sowie auch im worst case nicht überschritten werden.

Kupfer

Die Critical Loads für den Trinkwasserschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 nicht überschritten. Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Trinkwasserschutz ausgeschlossen.

Zink

Die Critical Loads für den Trinkwasserschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 nicht überschritten.

Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Trinkwasserschutz ausgeschlossen.

Chrom

Die Critical Loads für den Trinkwasserschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 nicht überschritten. Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Trinkwasserschutz ausgeschlossen.

Wenn man allerdings eine Critical Loads-Berechnung für den Trinkwasserschutz alternativ auf Basis des Geringfügigkeitsschwellenwertes (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) durchführte, würde der resultierende minimale Critical Load im worst case von der maximalen Deposition überschritten werden.

Nickel

In der BTrinkwV ist keine Grenzkonzentration für Nickel vorgegeben, demzufolge wird in diesem Projekt kein Critical Load für den Trinkwasserschutz berechnet.

Wenn man eine Critical Loads-Berechnung für den Trinkwasserschutz alternativ auf Basis des Geringfügigkeitsschwellenwertes (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) durchführt, würde der resultierende minimale Critical Load im worst case von der maximalen Deposition nicht überschritten werden.

Die maximale Deposition schöpft den Beurteilungswert der TA Luft Tab. 6 zu 12% aus.

Würde man den Beurteilungswert für die Konzentration aus der 39. BImSchV hilfsweise in eine Deposition umrechnen, ergäben sich Beurteilungswerte von 10-28 g ha⁻¹ a⁻¹, die von den Depositionen des deutschen Datensatzes sowie auch im worst case nicht überschritten würden.

Rechnet man die Zielwerte des EU-Positionspapiers in Depositionsraten um (5-72 g ha⁻¹ a⁻¹), ergibt sich im worst case (maximale Deposition trifft auf minimalen zulässigen Eintrag) ein Überschreitungsrisiko auf Äckern und Grünland.

Thallium

In der BTrinkwV ist keine Grenzkonzentration für Thallium vorgegeben, demzufolge wird in diesem Projekt kein Critical Load für den Trinkwasserschutz CL(Ni)_{drink} berechnet. Auch eine humantoxikologische Geringfügigkeitsschwelle ist nicht verfügbar (Zeddel et al. 2016).

Eine Überschreitung der Immissionswerte für Schwermetalldepositionen nach TA Luft, Tabellen 6 und 8 durch die diffuse Gesamtbelastung aus dem Ferntransport des Metalls in der Atmosphäre kann nicht deutschlandweit ermittelt werden. Die Beurteilungswerte liegen jedoch weit oberhalb beispielsweise der in Depositionsraten umgerechneten jahresdurchschnittlichen Konzentrationsmesswerte 2013 des LANUV NRW (2015) in Dortmund.

Vanadium

In der BTrinkwV ist keine Grenzkonzentration für Vanadium vorgegeben, demzufolge wird in diesem Projekt kein Critical Load für den Trinkwasserschutz CL(Ni)_{drink} berechnet.

Eine Risikoabschätzung mittels Eintrags-/Austragsbilanz auf der Grundlage einer humantoxikologischen Geringfügigkeitsschwelle (Zeddel et al. 2016) ergibt, dass ein gesundheitliches Risiko durch die Einträge im Jahr 2010 nicht sicher auszuschließen ist.

3.4.2 Schutz der terrestrischen Ökosysteme, insbesondere des Bodens, vor schädlichen Veränderungen

Vergleicht man die Beurteilungswerte mit den entsprechenden Eintragsraten aus der Luft (für Hg: EMEP-Depositionsrasterdaten des Jahres 2013; für alle anderen Metalle Depositionsrasterdaten für das Jahr 2010 entsprechend Berichtsteil 1 dieses Projektes), dann ergibt sich folgendes Bild der Unterbzw. Überschreitungen in der Übersicht (Abbildung 73).

Die Abschätzung von Risiken durch Einträge aus der Luft anhand der Beurteilungswerte aus den verschiedenen gesetzlichen, untergesetztlichen Regelungen und Empfehlungen muss jedoch unter Berücksicksichtigung unterschiedlicher Schutzniveaus, Schutzziele und Wirkungsschwellen, wie in Kapitel 3.2.1 ausführlich dargelegt, betrachtet werden:

Die Beurteilungswerte der TA Luft 2002, der 39. BImSchV und des EU-Positionspapiers 2000 basieren auf humantoxikologischen Schwellenwerten, sind aber auch zum Schutz von Pflanzen bzw. der Umwelt allgemein vorgesehen, wobei angenommen wird, dass die Ökosystemkompartimente nicht empfindlicher als Menschen sind (Kapitel 3.2.1). Nach Umrechnung der zulässigen Konzentrationen aus der 39. BImSchV in zulässige jährliche Eintragsraten ergeben sich keine Überschreitungen im Jahr 2010 durch die atmogene Hintergrunddeposition. Die Beurteilungswerte aus dem EU-Positionspapier 2000 für Cadmium werden 2010 nicht überschritten, ebenso die Beurteilungswerte für Arsen nach entsprechender Umrechnung. Die umgerechneten untersten Beurteilungswerte für Nickel werden im worst case auf Äckern und Grünland überschritten. Abbildung 73:Beurteilungswerte für Schwermetallflüsse zum Schutz der Ökosysteme und Darstellung
ihrer Unter- oder Überschreitung durch Einträge aus der Luft (für Hg: EMEP im Jahr
2013; für alle anderen: Deutscher Datensatz im Jahr 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projek-
tes)

	Beurteilungsv nach LUA Bbg 2008	wert g	TA Luft Tab. 6	TA Luft Tab. 8	BBodSchV Zulässige Zusatz- belastung	39. BImSchV Nadelwald/ Laubwald/ Offenland ¹	EU-Position Paper Nadelwald/ Laubwald/ Offenland ¹	CL(M) _{eco}			
	anlagenbezogene Belastung [g ha ⁻¹ 100a ⁻¹]					allgemeine Belastung					
Hg		2	4	110	1,5	[gild d]		0,1-1,1			
Cd		5	7	9	6	7/4/2,5	9-18	1,5-127,6			
Pb		768	365	675	400	716/420/250		2-2603			
As			15	4271		6/4/2,2	3-9/4-13/1,5-5	115-1669			
Ni		154	55		100	28/17/10	8-42/14-72/5-25	37-11232			
Cu					360			7-3384			
Zn					1200			81-2457			
Cr					300			78-1049			
¹⁾ aus Beurteilungswerten für Konzentrationen umgerechnet anhand Teil 1 dieses Projektes, Tabellen 5 und 6											
nicl Beurteilungswert kein I		nicht in Ris	überschritte iko	en R	.im worst case überschritten isiko lokal nicht auszuschließen		regional überschritten Risiko regional vorhanden				

Gleichzeitig ergibt ein Vergleich der anlagenbezogenen Beurteilungswerte für Stoffeinträge (Beurteilungswert nach LUA Brandenburg 2008, TA Luft 2002, zulässige Zusatzbelastung nach BBodSchV 1999/2015) mit den Hintergrundbelastungen keine Aussage über die aktuell bestehenden räumlich verbreiteten Risiken für Ökosysteme. Der Vergleich kann nur dazu dienen grob abzuschätzen, wie stark die zulässige Gesamtbelastung bereits durch die Hintergrundgbelastung ausgeschöpft ist. Die Unsicherheiten der Depositionskartierung und ihre Kleinmaßstäbigkeit lassen konkrete räumliche Aussagen für Einzelstandorte nicht zu. Somit war zu erwarten, dass die atmogenen Einträge des Jahres 2010 die anlagenbezogenen Beurteilungswerte nicht überschreiten.

Im Folgenden werden nur die Risiken der terrestrischen Ökosysteme, einschließlich des Bodens, anhand der Beurteilungswerte, die auf ökotoxikologischen Schwellenwerten basieren, mithin aus der BBodSchV 2015, der Brandenburgischen Vollzugshilfe für die FFH-Verträglichkeitsprüfung (LUA Bbg 2008) und der in diesem Projekt ermittelten Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme, diskutiert. Da Wirkungspfade von Schwermetallen zu allen Kompartimenten eines terrestrischen Ökosystems in der Regel über den Boden verlaufen, können die Beurteilungswerte zum Schutz der Bodenfunktionen gleichzeitig als maßgebliche Beurteilungswerte für den Schutz der Ökosysteme betrachtet werden.

Die Critical Loads für den Ökosystemschutz, die in diesem Projekt für die Schwermetalleinträge von Quecksilber, Cadmium, Blei, Arsen, Kupfer, Zink, Chrom und Nickel ermittelt wurden $(CL(M)_{eco})$, sind nach Ökosystemtypen differenziert. Die Eingangswerte werden boden- und vegetationsspezifisch ermittelt. Die kritischen Schwellenwerte (kritische Konzentration im Boden für die Aufrechterhaltung der mikrobiellen Funktionen, zum Schutz von Pflanzen, Invertebraten und Boden-Mikroorganismen) sind vergleichbar mit den Kriterien zur Ermittlung der Vorsorgewerte in der Bundesbodenschutzver-

ordnung (BBodSchV). Die Vorsorgewerte der BBodSchV sind jedoch als Konzentrationen angegeben und somit nicht direkt vergleichbar mit den Flussraten der Critical Loads.

Die Einhaltung der $CL(M)_{eco}$ bei Einbeziehung aller Eintragspfade schließt nach Stand des Wissens dauerhaft ("für alle Zeit") aus, dass Risiken entstehen können, vorausgesetzt die Critical Limits (kritischen Konzentrationen in den betrachteten Indikatoren) sind noch nicht überschritten. Wenn sie bereits überschritten waren, führt die Einhaltung des Critical Load zu eine langfristigen, allmählichen Abreicherung bis zur Höhe der Critical Limits.

Die Beurteilungswerte der Brandenburgischen FFH-Vollzugshilfe (LUA Bbg 2008) sind als maximal zulässige Konzentrationen im Boden angegeben. Darüber hinaus können anlagenbezogene Irrelevanzschwellen nach einem vorgegebenen Verfahren berechnet werden, die dann gleichzeitig als Erheblichkeitsschwellen gelten, wenn der Beurteilungswert entweder bereits durch die bestehende Vorbelastung allein oder nach Realisierung des Vorhabens durch die Gesamtbelastung überschritten wird. Schöpft nur eine zusätzliche Anlagen(gruppe) in einem von ihr betroffenen Wirkraum die Irrelevanzbzw. Erheblichkeitsschwelle aus und wird sie langfristig betrieben oder ersetzt, kommt es zu einer allmählichen Anreicherung des Metalls im Boden und/oder im Grundwasser. Ein Vergleich der zulässigen Anreicherungsrate in 100 Jahren mit Hintergrunddepositionen führt daher ebenfalls zu keiner realen Risikoabschätzung. Im Folgenden wird deshalb nur angegeben, wie stark die so berechneten zulässigen Gesamtepositionen bereits durch die Einträge auf Hintergrundniveau ausgeschöpft werden.

Im Folgenden soll unter Berücksichtigung der eingeschränkten Vergleichbarkeit der Beurteilungswerte dennoch eine Beurteilung des Risikos schädlicher Veränderungen terrestrischer Ökosysteme auf Basis der aktuellen Depositionen 2010 bzw. 2013 der betrachteten Schwermetalle durchgeführt werden.

Quecksilber

Anhand der EMEP-Depositionsrasterkarte Deutschlands für das Jahr 2013 ergeben sich Überschreitungen der Critical Loads für den Ökosystemschutz im deutschen Datensatz 2016 mit Schwerpunkt in Nordrhein-Westfalen, Südostbrandenburg, in Nordost-Sachsen und im Südwesten Sachsen-Anhalts.

Darüber hinaus können weitere diffuse Hg-Einträge zu beachten sein, was die Situation verschärft. Es ist allerdings aufgrund des hohen Pufferungsvermögens der Böden für Hg aus einer CL(Hg)- Überschreitung nicht zu schließen, dass ein unmittelbares Risiko besteht.

Die zulässige jährliche Zusatzbelastung von Hg nach BBodSchV in Höhe von 1,5 g ha⁻¹ a⁻¹, wenn der Vorsorgewert der Hg-Konzentration im Boden nach BBodSchV bereits erreicht bzw. überschritten ist, liegt weit über dem Maximum der EMEP-Deposition 2013. Die maximale atmogene Hintergrunddeposition schöpft diesen Wert zu 58 % aus, doch die zulässige Zusatzbelastung gilt auch für alle anderen Eintragspfade in der Summe.

Die aus der Irrelevanzschwelle nach LUA Brandenburg (2008) am Beispiel einer Braunerde auf 100 Jahre hochgerechnete irrelevante anlagenbezogene Zusatzbelastung wird von der maximalen atmogenen Hintergrunddeposition 2013 bereits zu 44% ausgeschöpft.

Cadmium

Die Critical Loads für den Ökosystemschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) nicht überschritten.

Im deutschen Datensatz 2016 könnten möglicherweise maßstabsbedingt Flächen nicht abgebildet sein, bei denen maximale Depositionsraten auf einen sehr niedrigen Critical Load (<2,3 g ha⁻¹ a⁻¹) treffen (worst case). In diesen Fällen könnte die maximale atmosphärische Deposition 2010 die Critical Loads für den Schutz der Ökosysteme überschritten haben.

Die zulässige jährliche Eintragsrate von Cd nach BBodSchV in Höhe von 6 g ha⁻¹ a⁻¹), wenn der Vorsorgewert (Cd-Konzentration im Boden) nach BBodSchV bereits erreicht bzw. überschritten ist, liegt weit über dem Maximum der EMEP-Deposition 2013. Die maximale atmogene Hintergrunddeposition schöpft diesen Wert zu 39 % aus, doch die zulässige Zusatzbelastung gilt für alle Eintragspfade.

Die aus der Irrelevanzschwelle nach LUA Brandenburg (2008) am Beispiel einer Braunerde auf 100 Jahre hochgerechnete irrelevante anlagenbezogene Zusatzbelastung wird von der maximalen atmogenen Hintergrunddeposition 2010 bereits zu 47% ausgeschöpft.

Blei

Die Critical Loads für Bleieinträge zum Schutz der Ökosysteme werden auf 14,11% der Rezeptorflächen Deutschlands, überwiegend in der Leipziger und Thüringer Bucht, im Harzvorland und im Ruhrgebiet, von den atmogenen Depositionen 2010 überschritten. Dieser Flächenanteil ist gegebenenfalls höher, da im deutschen Datensatz 2016 möglicherweise maßstabsbedingt Flächen nicht abgebildet sein könnten, bei denen maximale Depositionsraten auf einen sehr niedrigen Critical Load treffen (worst case) (Kapitel 3.3.9.4).

Die zulässige jährliche Eintragsrate von Pb nach BBodSchV in Höhe von 400 g ha⁻¹ a⁻¹, wenn er Vorsorgewert bereits erreicht bzw. überschritten ist, liegt weit über dem Maximum der Deposition 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes). Die maximale atmogene Hintergrunddeposition schöpft diesen Wert zu 22 % aus, doch die zulässige Zusatzbelastung gilt für alle Eintragspfade.

Die aus der Irrelevanzschwelle nach LUA Brandenburg (2008) am Beispiel einer Braunerde auf 100 Jahre hochgerechnete irrelevante anlagenbezogene Zusatzbelastung wird von der maximalen atmogenen Hintergrunddeposition 2010 zu 11% ausgeschöpft.

Arsen

Die Critical Loads für den Ökosystemschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) nicht überschritten. Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Ökosystemschutz ausgeschlossen.

Selbst wenn man eine Critical Loads-Berechnung für den Ökosystemschutz alternativ auf Basis des Geringfügigkeitsschwellenwertes (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) durchführte, würde der resultierende minimale Critical Load im worst case von der maximalen Deposition nicht überschritten werden.

Eine zulässige zusätzliche jährliche Eintragsrate von As nach BBodSchV ist nicht vorgegeben.

Kupfer

Die Kupfer-Depositionen überschritten 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) die CL(Cu)_{eco} auf 1,16 % der Rezeptorflächen Deutschlands, überwiegend im Berliner Umland und im Ruhrgebiet. Dieser Flächenanteil ist gegebenenfalls höher, da im deutschen CL-Datensatz 2016 möglicherweise maßstabsbedingt Flächen nicht abgebildet sein könnten, bei denen maximale Depositionsraten auf einen sehr niedrigen Critical Load treffen (worst case).

Die zulässige jährliche Eintragsrate von Cu nach BBodSchV in Höhe von 360 g ha⁻¹ a⁻¹, wenn die zulässige Cu-Konzentration im Boden nach BBodSchV bereits erreicht bzw. überschritten ist, liegt weit über dem Maximum der Deposition 2010. Die maximale Hintergrunddeposition schöpft diesen Wert zu 8 % aus, doch die zulässige Zusatzbelastung gilt für alle Eintragspfade.

Zink

Die Critical Loads für den Ökosystemschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) nicht überschritten. Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Ökosystemschutz ausgeschlossen.

Die zulässige jährliche Eintragsrate von Zn nach BBodSchV in Höhe von 1200 g ha⁻¹ a⁻¹, wenn die zulässige Zn-Konzentration im Boden nach BBodSchV bereits erreicht bzw. überschritten ist, liegt weit über dem Maximum der Deposition 2010. Die maximale Hintergrunddeposition schöpft diesen Wert zu 6 % aus, doch die zulässige Zusatzbelastung gilt für alle Eintragspfade.

Chrom

Die Critical Loads für den Ökosystemschutz in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) nicht überschritten. Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen CL-Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Ökosystemschutz ausgeschlossen.

Wenn man allerdings eine Critical Loads-Berechnung für den Ökosystemschutz alternativ auf Basis des Geringfügigkeitsschwellenwertes (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) durchführte, würde der resultierende minimale Critical Load im worst case von der maximalen Deposition überschritten werden.

Die zulässige jährliche Eintragsrate von Cr nach BBodSchV in Höhe von 300 g ha-1 a-1, wenn die zulässige Cr-Konzentration im Boden nach BBodSchV bereits erreicht bzw. überschritten ist, liegt weit über dem Maximum der Deposition 2010. Die maximale Hintergrunddeposition schöpft diesen Wert zu 1,3 % aus, doch die zulässige Zusatzbelastung gilt für alle Eintragspfade.

Nickel

Die Critical Loads für den Ökosystemschutz in den Rezeptorflächen des deutschen CL-Datensatzes 2016 werden von den atmogenen Depositionen 2010 (Berichtsteil 1 dieses Projektes) nicht überschritten. Selbst im worst case (maximale Depositionsraten treffen auf den niedrigsten Critical Load), wie er zwar im deutschen CL-Datensatz 2016 nicht vorkommt, aber auf einer größeren Maßstabsebene vorkommen könnte, ist eine Überschreitung der Critical Loads für den Ökosystemschutz ausgeschlossen.

Selbst wenn man eine Critical Loads-Berechnung für den Ökosystemschutz alternativ auf Basis des Geringfügigkeitsschwellenwertes (Zeddel et al. 2016 und Kapitel 3.3.8.5) durchführte, würde der resultierende minimale Critical Load im worst case von der maximalen Deposition nicht ü

berschritten werden.

Die zulässige jährliche Eintragsrate von Ni nach BBodSchV in Höhe von 100 g ha⁻¹ a⁻¹, wenn die zulässige Ni-Konzentration im Boden nach BBodSchV bereits erreicht bzw. überschritten ist, liegt weit über dem Maximum der Deposition 2010. Die maximale Hintergrunddeposition schöpft diesen Wert zu 7 % aus, doch die zulässige Zusatzbelastung gilt für alle Eintragspfade.

Die aus der Irrelevanzschwelle nach LUA Brandenburg (2008) am Beispiel einer Braunerde auf 100 Jahre hochgerechnete irrelevante anlagenbezogene Zusatzbelastung wird von der maximalen atmogenen Hintergrunddeposition 2010 zu 4,6% ausgeschöpft.

Thallium

Da keine deutschlandweiten Depositionserhebungen vorliegen, kann keine Einschätzung der Belastungssituation erfolgen. Aber eine Messstation in Dortmund hat beispielsweise im Jahr 2013 eine jahresdurchschnittliche Konzentration erfasst, die umgerechnet eine Depositionsrate von 0,15 g ha-1 a-1 ergibt (LANUV NRW 2015). Eine Risikoabschätzung mittels Eintrags- Austragsbilanz auf der Grundlage einer ökotoxikologischen Geringfügigkeitsschwelle (Zeddel et al. 2016) ergibt, dass ein Risiko zumindest in der Region des Ruhrgebietes nicht sicher auszuschließen ist.

Thallium ist ein hochtoxisches Element für lebende Organismen, vergleichbar mit der Wirkung von Quecksilber (Madejón in Alloway 2013). Im Boden wird Tl kaum verlagert und dadurch bei langandauernder Immission im durchwurzelten Oberboden stark angereichert (Scholl und Metzger 1981). Madejón (in Alloway 2013) gibt an, dass anthropogen eingetragenes Thallium zu 80% im humusreichen Oberboden gespeichert wird.

Es ergibt sich hieraus ein offensichtlich bisher vernachlässigter Forschungsbedarf. Die wirkungsbasierte Herleitung von Beurteilungswerten und gleichzeitig die Inventur der aktuellen Deposition in Deutschland sind dringend geboten.

Vanadium

Eine Risikoabschätzung mittels Eintrags-/Austragsbilanz auf der Grundlage einer humantoxikologischen Geringfügigkeitsschwelle (Zeddel et al. 2016), die niedriger als die ermittelte ökotoxikologische Schwelle liegt, ergibt ein gesundheitliches Risiko durch die Einträge im Jahr 2010 im worst case. So liegt die maximale Deposition 2010 (Tabelle 66) für Wald und Grünland etwas oberhalb der minimalen akzeptablen Austräge. Im worst case (maximale Deposition trifft auf Flächen mit minimalen Austrägen) ist demnach ein langfristiges Risiko der Beeinträchtigung von Ökosystemfunktionen nicht auszuschließen.

Beurteilungswerte für Vanadium sind in der BBodSchV nicht gegeben.

3.5 Zusammenfassende Schlussfolgerungen

Aus dem **Vergleich der humantoxikologisch hergeleiteten Beurteilungswerte** mit den atmogenen Einträgen im Jahr 2013 (Quecksilber) bzw. 2010 (alle anderen Metalle) geht hervor, dass die Critical Loads für den Trinkwasserschutz für Blei und Quecksilber in einigen Regionen Deutschlands nicht eingehalten werden und somit langfristig ein Gefährdungsrisiko der menschlichen Gesundheit bei Genuss von Trinkwasser bestehen könnte, sofern das Quecksilber tatsächlich im Grundwasser ankommt. Während die gesetzlichen und untergesetzlichen Beurteilungswerte eingehalten werden, sind die Critical Loads für den Trinkwasserschutz (CL(M)_{drink}) nicht immer unterschritten. Besonders die regenarmen Regionen Deutschlands (insbesondere Brandenburg, Tiefland von Sachsen-Anhalt, Leipziger Bucht, Ruhrgebiet) mit Waldvegetation sind wegen niedriger Austräge mit dem Sickerwasser von Überschreitungen durch die Hg- und Pb-Einträge betroffen. Dieser Flächenanteil ist gegebenenfalls höher, da im deutschen CL-Datensatz 2016 möglicherweise maßstabsbedingt Flächen nicht abgebildet sein könnten, bei denen maximale Depositionsraten auf einen sehr niedrigen Critical Load treffen (worst case).

Die Critical Loads für Cadmium für den Trinkwasserschutz CL(Cd)_{drink} und für den Schutz der menschlichen Nahrung aus Weizenprodukten CL(Cd)_{food} werden zwar in den Rezeptorflächen des deutschen Datensatzes 2016 von den atmogenen Depositionen 2010 nicht überschritten, aber im deutschen Datensatz 2016 könnten möglicherweise maßstabsbedingt kleinere Flächen nicht abgebildet sein, bei denen maximale Depositionsraten auf einen sehr niedrigen Critical Load treffen (worst case). In diesen Fällen hätte die maximale atmosphärische Deposition 2010 die CL(Cd)_{drink} und CL(Cd)_{food} überschritten.

Für Nickel konnten zwar keine Critical Loads für den Trinkwasserschutz berechnet werden, da die BTrinkwV keine Grenzkonzentration für Nickel vorgibt, aber der Vergleich der Einträge 2010 mit den in jährliche Eintragsraten umgerechneten im EU-Positionspapier empfohlenen Beurteilungskonzentrationen für Nickel zeigt eine Überschreitung auf Äckern und Grünland im worst case (maximale Deposition trifft auf niedrigsten zulässigen Eintragswert).

Vergleicht man den Schwermetalleintrag 2013 (Quecksilber) bzw. 2010 (alle anderen Metalle) mit den **ökotoxikologisch begründeten Beurteilungswerten**, ergibt sich das gleiche Bild wie für die humantoxikologisch hergeleiteten Beurteilungswerte: Die Critical Loads für den Ökosystemschutz CL(M)_{eco} sind durch die Quecksilber- und Bleieinträge in einigen Regionen Deutschlands überschritten (insbesondere Brandenburg, Leipziger Bucht, Sachsen-Anhalt, Ruhrgebiet) mit Waldvegetation; hinzu kommt eine Überschreitung des CL(Cu)_{eco} durch Kupfereinträge 2010 im Berliner Umland und im Ruhrgebiet (rund 1 % der Rezeptorfläche). Im worst case könnten CL(Cd)_{eco} durch die maximalen Cadmium-Einträge 2010 überschritten sein.

So sind durch atmogene Schwermetalleinträge besonders die Wälder der subkontinentalen Klimabereiche potenziellen Risiken ausgesetzt (geringe Niederschläge, hohe Verdunstungsrate), aber auch die Lebensraumtypen nach Anhang 1 der FFH-Richtlinie mit eingeschränkter oder untersagter Nutzung (Feucht- und Hangwälder, trockene und feuchte Heiden, Moore, Feuchthochstaudenfluren an Gewässerufern u.ä.). Somit müssen die LRT 91D0, 91E0, 9180, 91T0, 91U0 als besonders empfindlich betrachtet werden.

Diese überschlägige Risikoabschätzung muss jedoch im **Kontext der Unsicherheiten und Annahmen** diskutiert werden:

Da der Depositionsdatensatz 2010 für Deutschland höhere Depositionen im Durch-schnitt aufweist als die Datensätze für 2009 und 2011, zeigt der Vergleich der 2010er Depositionen mit den Beurteilungswerten tendenziell ungünstige Verhältnisse auf und ist daher eine eher konservative Betrachtung.

Die Unsicherheiten der Emissionsraten, die der atmosphärischen Transportmodellierung zu Grunde liegen, sind bei einigen Metallen sehr hoch. Diese Unsicherheit überträgt sich natürlich auf die berechneten Depositionswerte.

Die Depositionsberechnungen im Berichtsteil 1 dieses Projektes bilden maßstabsbedingt keine kleinflächig begrenzten direkten Belastungen im Umkreis von einzelnen Emittenten ab. Dies zeigen auch empirisch ermittelte Depositionswerte, die tlw. deutlich über den Depositions-Modellwerten liegen. Das verdeutlicht den Charakter der modellierten Werte als Hintergrunddeposition und erklärt, warum die anlagenbezogenen Beurteilungswerte der TA Luft und der BBodSchV durch diese Depositionsraten nicht überschritten werden. Die Depositionen aus der Luft stellen nur einen Bruchteil der Einträge dar im Vergleich zu den Einträgen mit Düngemitteln. Unter Einbeziehung aller Eintragspfade könnten Überschreitungen der Critical Loads sowie der zulässigen Zusatzfrachten der BBodSchV insbesondere auf Äckern weiter verbreitet auftreten bzw. deutlich höher sein.

Wie bei den Critical Loads für den Schutz der menschlichen Gesundheit kann es auch bei Überschreitung der Critical Loads für den Ökosystemschutz zu einer schadlosen Anreicherung im Ökosystem kommen, solange die Critical Limits noch nicht erreicht sind. Sind die Critical Limits erreicht, muss mit einer Beeinträchtigung des Schutzgutes gerechnet werden, wenn auch erst nach einer entsprechenden Reaktionszeit des Ökosystems. Gerade bei Schwermetalleinträgen kann es Jahrhunderte dauern, bis es bei permanenter Überschreitung der Critical Loads zu einer sichtbaren negativen Veränderung an den Schutzgütern kommt. So weisen beispielsweise Böden gegenüber Quecksilbereeinträgen ein sehr hohes Puffervermögen auf. Andere Metalle wie Cadmium und Nickel sind mobiler und reichern sich proportional zum Gehalt im Boden in der Biomasse an, so dass die Annahmen zu den Austragsraten mit der Biomasse für die Critical Loads-Berechnung sehr konservativ angesetzt sind, weil diese Berechnung generell mit sehr niedrigen Konzentrationen in der Biomasse (Literaturwerte) durchgeführt wurde.

Die Ziele der EU-Luftreinhaltestrategie, bis 2020 keine inakzeptablen Auswirkungen für Menschen und die Umwelt zuzulassen, sind mit den Depositionsraten 2010 noch nicht erfüllt.

Für das **Ziel der Nationalen Biodiversitätsstrategie** bis 2015, ökosystembezogene Wirkungsschwellenwerte für Schadstoffe festzulegen, die die Auswirkungen auf die biologische Vielfalt beschreiben, bieten die Critical Loads für den Schutz von Ökosystemen eine sehr vorsorgeorientierte wissenschaftliche Diskussionsgrundlage.

Weitere Maßnahmen der Emissionsminderung sind erforderlich:

Da Cadmium, Blei und Quecksilber in der Atmosphäre weit transportiert werden, sind bei diesen, neben den anlagen- und projektbezogenen Emissionsbegrenzungen, sowohl weitere nationale als auch internationale Maßnahmen zu ihrer Reduktion notwendig.

Bei den anderen Metallen ist der Focus auf die anlagenbezogene Reduzierung innerhalb Deutschlands zu legen. Ein erster Schritt hierzu könnte die verbindliche Mess- und Meldepflicht über die tatsächlichen Emissionsmengen (insbesondere für Quecksilber-Emissionen) im Betrieb der Großemittenten sein.

Besonderer Focus ist aber auch auf bewirtschaftungsbedingte Einträge zu legen, vor allem um landwirtschaftliche Nutzflächen vor schädlichen Stoffanreicherungen zu schützen.

4 Quellenverzeichnis

39. BlmSchV (2010): Neununddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen vom 2. August 2010 (BGBI. I S. 1065)

Aas, W., Breivik, K., (2009): Heavy Metals and POP Measurements 2007. EMEP/CCC-Report 3/2009. Norwegian Institute for Air Research, Kjeller, Norway.

AG Boden (Arbeitsgruppe Boden) (2005): Bodenkundliche Kartieranleitung, 5. Auflage, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe und den Geologischen Landesämtern der Bundesrepublik Deutschland (Hrsg.), Hannover.

Åkerblom S, Meili M., Bringmark L., Johansson K., Berggren Kleja D., Bergvist B. (2006): Partitioning of Hg between solid and dissolved organic matter in mor layers, In: Akerblom S (2006): Anthropogenic heavy metals in organic forest layers. Distribution, microbial risk assessment and Hg mobility, Doctoral Thesis No. 2006:67, IV Faculty of Natural Resources and Agricultural Sciences, Swedish University of Agricultural Sciences, Uppsala, Sweden, Acta Universitatis Agriculturae Sueciae, pp 122.

Alloway, B. J. (2013): Heavy Metals and Metalloids as Micronutrients for Plants and Animals. in: Alloway, B. J. (Ed.): Heavy Metals in Soils. Trace Metals and Metalloids in Soils and their Bioavailability. Springer Dordrecht, Heidelberg, New York, London. 613 S.

Alloway, B. J. (2013): Heavy Metals and Metalloids as Micronutrients for Plants and Animals. In: Alloway, B. J. (Ed.): Heavy Metals in Soils. Trace Metals and Metalloids in Soils and their Bioavailability. Springer Dordrecht, Heidelberg, New York, London. S. 195-210.

Alloway, B. J. (Ed.) (2013): Heavy Metals in Soils. Trace Metals and Metalloids in Soils and their Bioavailability. Springer Dordrecht, Heidelberg, New York, London. 613 S.

Alloway, B.J. (2013): Tin. In: Alloway, B. J. (Ed.): Heavy Metals in Soils. Trace Metals and Metalloids in Soils and their Bioavailability. Springer Dordrecht, Heidelberg, New York, London. S. 551-558.

Anonym (1997): Richtwerte für Schadstoffe in Lebensmitteln. (Bekanntmachungen des Bundesgesundheitsamtes). Bundesgesundheitsbl., 40 (5), S. 182-183.

Anonym (1999): Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) vom 12. Juli 1999. Bundesgesetzblatt Teil I Nr. 36, S. 1554-1582.

Anonym (2000): Richtwerte für Schadstoffe in Lebensmitteln werden vom BgVV zurückgezogen. Bundesgesundheitsbl., 43 (12), S. 1020-1020.

Bachmann, G., Bannick, C.G., Giese, E., Glante, F., Kiene, A., Konietzka, R., Rück, F., Schmidt, S., Terytze, K., von Borries, D. (1997): Fachliche Eckpunkte zur Ableitung von Bodenwerten im Rahmen des Bundes-Bodenschutzgesetzes. Nr. 3500 In: Handbuch Bodenschutz. Rosenkranz (Hrsg). 121 S., Erich Schmidt Verlag, Berlin.

Bailer-Jones, D. M. (2000): Modelling Extended Extragalactic Radio Sources, Studies in History and Philosophy of Modern Physics 31B, S. 49-74.

Bauer, F. (1953): Die Roteiche. D. Sauerländer'scher Verlag. Frankfurt a. M.

BBodSchG (1998): Gesetz zum Schutz vor schädlichen Bodenveränderungen und zur Sanierung von Altlasten - Bundes-Bodenschutzgesetz vom 17. März 1998 (BGBl. I S. 502), das zuletzt durch Artikel 101 der Verordnung vom 31. August 2015 (BGBl. I S. 1474) geändert worden ist.

BbodSchV (1999): Bundes-Bodenschutz- und Altlastenverordnung (BBodSchV) (GBBI. I S. 1554 vom 12. Juli 1999, zuletzt geändert durch Art. 102 der Verordnung vom 31. August 2015 (GBI. I S. 1474).

Bergkvist, B., Folkeson, L., Berggren, D. (1989): Fluxes of Cu, Zn, Pb, Cd, Cr and Ni in temperate forest ecosystems. Water, Air, and Soil Pollution 47: S. 217:286.

BGR (Bundesanstalt für Geologie und Rohstoffe) (Hrsg.) (2013): Karte des ackerbaulichen Ertragspotentials der Böden in Deutschland auf der Basis der BÜK1000N. URL: http://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Boden/Ressourcenbewertung-management/Ertragspotential/Ertragspotential_node.html).

BGR (Bundesanstalt für Geologie und Rohstoffe) (Hrsg.) (2014a): Nutzungsdifferenzierte Bodenübersichtskarte 1 : 1 000 000 (BÜK1000N) für Deutschland (Wald, Grünland, Acker).

BGR (Bundesanstalt für Geologie und Rohstoffe) (Hrsg.) (2014b): Landnutzungsdifferenzierte mittlere jährliche Sickerwasserrate aus dem Boden. Bereitstellung digitaler Daten.

Bill R. (1999): Grundlagen der Geoinformationssysteme. Band 2: Analysen, Anwendungen und neue Entwicklungen. Heidelberg, Wichman.

BMU (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) (Hrsg.) (2003) Hydrologischer Atlas von Deutlschland, Duinisveld,W., Hennings, V., Stolz, W., Martin, N., Richter,A., Behrens, J., Karte 4.5 Sickerwasserrate aus dem Boden, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover, Berlin, digital.

BMU (2015): Referentenentwurf der Mantelverordnung "Verordnung zur Festlegung von Anforderungen für das Einbringen oder das Einleiten von Stoffen in das Grundwasser, an den Einbau von Ersatzbaustoffen und zur Neufassung der Bundes-Bodenschutzund Altlastenverordnung. URL:

http://www.bmub.bund.de/fileadmin/Daten_BMU/Download_PDF/Bodenschutz/mantelv_entwurf_3_bf.pdf. Web-Adresse aufgerufen am 23.7.2015.

BMVBS – Bundesministerium für Verkehr, Bauwesen und Städtebau (2013): Untersuchung und Bewertung von straßenverkehrsbedingten Nährstoffeinträgen in empfindliche Biotope. Endbericht zum FE-Vorhaben 84.0102/2009 im Auftrag der Bundesanstalt für Straßenwesen, verfasst von Balla, S., Uhl, R., Schlutow, A., Lorentz, H., Förster, M., Becker, C., Scheuschner, Th., Kiebel, A., Herzog, W., Düring, I., Lüttmann, J., Müller-Pfannenstiel, K. Forschung Straßenbau und Straßenverkehrstechnik, Heft 1099, BMVBS Abteilung Straßenbau, Bonn. 362 S.

BMVEL (2006): Arbeitsanleitung für die zweite Bodenzustandserhebung im Wald (BZE II), 2. Auflage. Bundesministerium für Verbraucherschutz, Ernährung und Landwirtschaft (BMVEL), Berlin.

Bobbink, R., Hettelingh, J.-P. (Eds.) (2011): Review and revision of empirical critical loads and dose-response relationships. Proceedings of an expert workshop, Noordwijkerhout, 23-25 June 2010. Coordination Centre for Effects, RIVM, NL. Online im Internet: URL: http://www.b-ware.eu/sites/default/files/publicaties/Review-revision-empirical-critical-loads-2011.pdf. Web-Adresse aufgerufen am 20.07.2015.

Böckmann, T. (1990): Wachstum und Ertrag der Winterlinde (Tilia cordata Mill) in Nordwestdeutschland. Dissertation Univ. Göttingen.

Bohner, A., Eder, G., Schink, M. (2007): Nährstoffkreislauf und Stoffflüsse in einem Grünland-Ökosystem. Bericht HBLFA Raumberg-Gumpenstein, 12. Gumpensteiner Lysimetertagung, S. 91-99.

Bolte, A. (2006): Biomasse- und Elementvorräte der Bodenvegetation auf Flächen des forstlichen Umweltmonitorings in Rheinland-Pfalz. Berichte des Forschungszentrums Waldökosysteme, Reihe B, Bd. 72, Göttingen, 29 S. + Anhänge.

Breiman, L. (2001): Random Forests. Machine Learning, 45, S. 5–32.

Breiman, L., Friedman, J., Olshen, R., Stone, C. (1984): Classification and Regression Trees. Wadsworth, Belmont, CA.

Brenner, S., Pfeffer, E., Schumacher, W. (2004): Extensive Schafbeweidung von Magerrasen im Hinblick auf Nährstoffentzug und Futterselektion. In: Natur und Landschaft 4: S. 167-174.

Briemle, G., Eickhoff, D., Wolf, R. (1991): Mindestpflege und Mindestnutzung unterschiedlicher Grünlandtypen aus landschaftsökologischer und landeskultureller Sicht. Landesanstalt für Umweltschutz Baden-Württemberg und Staatliche Lehr- und Versuchsanstalt für Viehhaltung und Grünlandwirtschaft (LVVG) (Hrsg.). Beiheft 60 zu den Veröffentlichungen für Naturschutz und Landschaftspflege in Baden-Württemberg. Karlsruhe, 160 S.

Brosius, F. (2013): SPSS 21. Mitp/bhv, Heidelberg.

Brünner, F., Schöllhorn, J. (1972): Bewirtschaftung von Wiesen und Weiden. 2., umgearb. u. erw. Aufl.. Verlag Eugen Ulmer, Stuttgart. 166 S.

BVerwG, Urteil vom 14.04.2010 - 9 A 5.08 [ECLI:DE:BVerwG:2010:140410U9A5.08.0]

Ceburnis, D., Steinnes, E. (2000): Conifer needles as biomonitors of atmospheric heavy metal deposition: comparison with mosses and precipitation, role of canopy. Atmospheric Environment 34: S. 4265-4271.

CLC (2006): Karte der Bodenbedeckung, CORINE Land Cover 2006 (), URL: http://sia.eionet.europa.eu/CLC2006

CLRTAP (2004): Manual on Methodologies and Criteria for Modelling and Mapping Critical Loads and Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends. Druckversion in UBA-Texte 52/2004.

CLRTAP (2014): Guidance on mapping concentrations levels and deposition levels, Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping critical loads and levels and air pollution effects, risks and trends. UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution. Online-Version unter www.icpmapping.org.

CLRTAP (2015 / 2016): Draft revision of Guidance on mapping concentrations levels and deposition levels, Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping critical loads and levels and air pollution effects, risks and trends. UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution. Online-Version unter www.icpmapping.org.

Crommentuijn, T., Polder, M.D., van de Plassche, E.J. (1997): Maximum Permissible Concentrations and Neglectible Concentrations for metals, taking Background concentrations into account. National Institut of Public Health and Environment, Bilthoven, Netherlands, Report Nr. 601501 001

Crößmann, G. (1984): TI - eine neue Umweltkontaminante?. Z. Angew. Bot., 58: S. 3-10.

Demetriades, A.; Birke, M. Reimann, C. Mann, A. Kaminari, M. (2014): GEMAS: Geochemical Distribution of Thallium in European Soil. Geophysical Research Abstracts Vol. 16, EGU2014-7158-4, 2014, EGU General Assembly 2014.

de Vries, W, Schütze, G., Lofts, S., Tipping, E., Meili, M., Groenenberg, J. Römpkens, P. F. (2004): Calculation of critical loads for cadmium, lead and mercury. Background document to a Mapping Manual on Critical Loads of cadmium, lead and mercury. Alterra Report 1104. Alterra Wageningen. 143 S. Wageningen, The Netherlands.

de Vries, W., Bakker, D. J. (1996): Manual for calculating critical loads of heavy metals for soils and surface waters. Preliminary guidelines for enviromental quality criteria, calculation methods and input data. Wageningen (The Netherland), DLO Winand Staring Centre. Report 114. 173 S.

de Vries, W., Lofts, S., Tipping, E., Meili, M., Groenenberg, J. und Schütze, G. (2007): Impact of Soil Properties on Critical Concentrations of Cadmium, Lead, Copper, Zinc, and Mercury in Soil and Soil Solution in View of Ecotoxicological Effects. In: Reviews of Environmental Contamination and Toxicology. Springer New York, S. 47-89.

de Vries, W., Posch, M., Sverdrup, H.U., Larssen, T., de Wit, H.A., Bobbink, R., Hettelingh, J.-P. (2015): Geochemical Indicators for Use in the Computation of Critical Loads and Dynamic Risk Assessments (Kapitel 2). In: deVries, W., Posch, M., Hettelingh, J.-P. (Ed.) (2015): Critical Loads and Dynamic Risk Assessments - Nitrogen, Acidity and Metals in Terrestrial and Aquatic Ecosystems. Springer Science+Business Media Dordrecht 2015, S. 27-36.

de Vries, W., Schütze, G., Lofts, S., Tipping, E., Meili, M., Groenenberg, J. und Römkens, PFAM (2005): Calculation of critical loads for cadmium, lead and mercury. Background document to Mapping Manual Chapter 5.5, 143 S.

Dierschke, H., Briemle, G. (2008): Kulturgrasland. Ulmer-Verlag, Stuttgart.

Doyle, P.J., Gutzman, D.W., Sheppard, M.I., Sheppard, S.C., Bird, G.A., Hrebenyk, D. (2003): An ecolocical risk assessment of air emissions of trace metals from copper and zinc production facilities. Hum. Ecol. Risk Assess. 9: S. 607-636.

DWD - Deutscher Wetterdienst (DWD) (2012a): Mittlere Tagesmitteltemperatur der Referenzperiode 1981-2010 für Sommer und Winter. Rasterdatei.

DWD - Deutscher Wetterdienst (DWD) (2012b): Mittlere Jahressumme des Niederschlages in der Referenzperiode 1981-2010 für Sommer und Winter. Rasterdatei.

Elsäßer, M. (2007): Düngung von Wiesen und Weiden. In: Bildungs- und Wissenszentrum für Viehhaltung, Grünlandwirtschaft, Wild und Fischerei, Aulendorf (Hrsg.) (2008): Merkblätter für die umweltgerechte Landbewirtschaftung Nr. 13, 4. Auflage.

EMEP - Centres MSC-E (2015): EMEP Status Reports: Heavy Metals: Analysis of long-term trends, country-specific research and progress in mercury regional and global modelling (No 2/2015). Online im Internet: URL:

http://www.msceast.org/index.php/reports Web-Adresse aufgerufen am: 20.07.2015]. Country specific information,

complementary to the EMEP Status Reports: online im Internet: URL: http://www.msceast.org/index.php/emep-countries. Web-Adresse aufgerufen am: 20.07.2015.

EP CL(HM) Expert Panel on Critical Loads of Heavy Metals: 23 – 25 Januar 2005, in Dietrich-Bonhoeffer-Haus in Berlin. Minutes in Nagel et al. 2008.

EPA (2014): Drinking Water Contaminants - Inorganic. Online im Internet. URL: http://water.epa.gov/drink/contaminants/index.cfm#Inorganic.

Erteld, W. (1952): Ertragstafel der Robinie, mäßige Durchforstung. In: Erteld, W. (1963): Ertragstafelauszüge. Für den Gebrauch in der Praxis. 2. neu bearb. u. ergänzte Aufl., Neumann-Verlag Radebeul.

Erteld, W. (1962): Ertragstafelauszüge für den Gebrauch in der Praxis. Neumann-Verlag.

EU (1999): Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft. ABI. L 163 vom 29.6.1999, S. 41. Geändert durch die Entscheidung 2001/744/EG der Kommission (ABI. L 278 vom 23.10.2001, S. 35)

EU (2004): Richtlinie 2004/107/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 15. Dezember 2004 über Arsen, Cadmium, Quecksilber, Nickel und polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe in der Luft (ABI. L 23 vom 26.1.2005, S. 3)EU (2006): Verordnung (EG) Nr. 1881/2006 der Kommission vom 19. Dezember 2006 zur Festsetzung der Höchstgehalte für bestimmte Kontaminanten in Lebensmitteln, Amtsblatt der Europäischen Union L 364/5 vom 20.12.2006.

EU (2008): Richtlinie 2008/50/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 21. Mai 2008 über Luftqualität und saubere Luft für Europa, Amtsblatt der Europäischen Union L 152/1 vom 11.06.2008.

EU (1992): Richtlinie 92/43/EWG des Rates vom 21. Mai 1992 zur Erhaltung der natürlichen Lebensräume sowie der wildlebenden Tiere und Pflanzen. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften, L 206

Europäische Kommission 2000: Position Paper: AMBIENT AIR POLLUTION BY AS, CD AND NI COMPOUNDS, Working Group On Arsenic, Cadmium And Nickel Compounds. URL: http://ec.europa.eu/environment/air/pdf/pp_as_cd_ni.pdf

European Commission (2006): Commission Regulation (EC) No 1881/2006 of 19 December 2006 setting maximum levels for certain contaminants in foodstuffs. Off. J. Eur. Union L 364.

European Commission (2013): EU-Directive 2013/39/EU (Richtlinie 2013/39/EU des Europäischen Parlaments und des Rates vom 12. August 2013 zur Änderung der Richtlinien 2000/60/EG und 2008/105/EG in Bezug auf prioritäre Stoffe im Bereich der Wasserpolitik.

Frahm, J.-P. (1998): Moose als Bioindikatoren. Biologische Arbeitsbücher 57. Quelle & Meyer, Wiesbaden.

Gauger, T., Haenel, H.-D., Rösemann, C., Nagel, H.-D., Becker, R., Kraft, P., Schlutow, A., Schütze, G., Weigelt-Kirchner, R., Anselm, F. (2008): Nationale Umsetzung der EU-NEC-Richtlinie/CAFE-Strategie und UNECE Luftreinhaltekonvention, Teil 2: Wirkungen und Risikoabschätzungen: Critical Loads, Biodiversität, Dynamische Modellierung, Critical Levels Überschreitungen, Materialkorrosion. Abschlussbericht zum UBA-Projekt FKZ 204 63 252, UBA-Texte 39/08. Umweltbundesamt (UBA). Dessau-Roßlau. 275 S.

GdCh (2000): Anforderungen an physikalisch-chemische und biologische Testmethoden zur Einschätzung von Böden und Bodensubstraten. Monographie Band 20 (2000). Ein Leitfaden des AK "Bodenchemie und Bodenökologie" der Fachgruppe Umweltchemie und Ökotoxikologie" unter Mitwirkung des GDCh-Beratergremiums für Altstoffe (BUA).

Gilbert, R.O. (1987): Statistical Methods for Environmental Pollution Monitoring, Wiley, NY.

Gonnelli, C., Renella, G. (2013): Chromium and Nickel. in: Alloway, B. J. (Ed.) (2013): Heavy Metals in Soils. Trace Metals and Metalloids in Soils and their Bioavailability. Springer Dordrecht, Heidelberg, New York, London. 613 S.

Goovaerts, P. (1999): Geostatistics in soil science: state-of-the-art and perspectives. - Geoderma 89 (1-2): S. 1-45.

Harmens, H., Mills, G., Hayes, F., Jones, L., Williams, P. (2006): Air pollution and vegetation. ICP Vegetation annual report 2005/2006. ICP Vegetation Coordination Centre, Centre for Ecology and Hydrology, Bangor, UK.

Harmens, H., Norris, D. A., Steinnes, E., Kubin, E., Piispanen, J., Alber, R., Aleksiayenak, Y., Blum, O., Coskun, M., Dam, M., De
Temmerman, L., Fernandez, J.A., Frolova, M., Frontasyeva, M., Gonzalez-Miqueo, L., Grodzinska, K., Jeran, Z., Korzekwa, S., Krmar,
M., Kvietkus, K., Le-blond, S., Liiv, S., Magnusson, S. H., Mankovska, B., Pesch, R., Ruhling, A., Santamaria, J. M., Schröder, W., Spiric,
Z., Suchara, I., Thöni, L., Urumov, V., Yurukova, L., Zechmeister, H. G. (2010): Mosses as biomonitors of atmospheric heavy metal
deposition: spatial and temporal trends in Europe. Environmental Pollution 158, S. 3144-3156.

Health Canada (2012): Guidelines for Canadian Drinking Water Quality - Summary Table. Water, Air and Climate Change Bureau, Healthy Environments and Consumer Safety Branch, Health Canada, F.-P.-T.C.o.D.W.o.t.F.-P.-T.C.o.H.a.t. Environment, Ottawa, Ontario, 22 S.

Hengl T., Heuvelink G.B.M., Stein A. 2004. A generic framework for spatial prediction of soil variables based on regression-kriging. Geoderma n° 120 (1-2), p. 75-93.

Hettelingh, J.P., Sliggers, J., Bolcher, M.v.h., Gon, H.D.v.d., B.J.Groenenberg, Ilyin, I. et al. (2007): Heavy Metal Emissions, Depositions, Critical Loads and Exceedances in Europe. 99 S.

Hidalgo, A., Navas, P., Garcia-Herdugo, G. (1988): Growth inhibition induced by vanadate in onion roots. Z. Environmental and Experimental Botany 28: S. 131-136

ICP-Forests (2010): Manual on methods and criteria for harmonized sampling, assessment, monitoring and analysis of the effects of air pollution on forests. International Co-operative Programme on Assessment and Monitoring of Air Pollution Effects on Forests (ICP-Forests). Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution (CLRTAP). UNECE., Hamburg, Prague.

ICP Modeling and Mapping (ed.) (2004-2013): Manual on methodologies and criteria for modeling and mapping critical loads & levels. Print version German Federal Environmental Agency UBA-Texte 52/2004. Updated version 04/2013. URL: www.icpmapping.org. Web-Adresse aufgerufen am: 20.07.2015.

ICP Modeling and Mapping, Expert Panel on Critical Loads of Heavy Metals (EP CLHM) (2005): How to calculate time scales of accumulation of metals in soils and surface waters? Some methodological principles, Online im Internet. URL: www.rivm.nl/thema/images/time_scale_tcm61-48406.pdf.

ICP Vegetation (2015): Heavy Metals in European Mosses: 2015 Survey. Monitoring Manual, International Cooperative Programme on Effects of Air Pollution on Natural Vegetation and Crops, ICP Coordination Centre, CEH Bangor, 15 pages.

Ilyin I., Gusev A., Rozovskaya O., Strijkina I. (2012 a): Transboundary Pollution of Germany by Heavy Metals and Persistent Organic Pollutants in 2010. EMEP/MSC-E Technical Report 5/2012

Ilyin, I., Rozovskaya, O., Travnikov, O., Varygina, M., Aas, W., Uggerud, H.T. (2011): Heavy Metals: Transboundary Pollution of the Environment. EMEP Status Report 2/2011. Meteorological Synthesizing Centre - East, Moscow, Russian Federation. URL: http://www.msceast.org.

Ilyin, I., Rozovskaya, O., Travnikov, O., Varygina, M., Aas, W., Uggerud, H.T. (2013): Heavy Metals: Transboundary Pollution of the Environment. EMEP Status Report 2/2013. Meteorological Synthesizing Centre - East, Moscow, Russian Federation. URL: http://www.msceast.org.

Ilyin, I., Travnikov, O., Varygina, M., Vana, M., Machalek, P., Hnilikova, H. (2012 b): Assessment of Heavy Metal Pollution Levels in the Czech Republic (EMEP case study). Joint MSC - E/CHMIReport, 1/2012. Meteorological Synthesizing Centre - East, Moscow, Russian Federation. URL: http://www.msceast.org.

Ilyin, I., Varygina, van der Swaluw, E., Jimmink, B., Leekstra, B. (2014): Assessment of Lead Pollution Levels in the Netherlands (EMEP case study). Joint MSC-E/RIVM Report 1/2014. Meteorological Synthesizing Centre - East, Moscow, Russian Federation, URL: http://www.msceast.org.

Jacobsen C., Rademacher P., Meesenburg H., Meiwes K. J. (2002): Element-Gehalte in Baum-Kompartimenten: Literatur-Studie und Datensammlung. Göttingen: Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Report, 80 S.

Jenssen, M., Hofmann, G., Nickel, S., Pesch, R., Riediger, J., Schröder, W. (2013): Bewertungskonzept für die Gefährdung der Ökosystemintegrität durch die Wirkungen des Klimawandels in Kombination mit Stoffeinträgen unter Beachtung von Ökosystemfunktionen und -dienstleistungen. Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. Forschungsvorhaben 3710 83 214, UBA-FB 001834. UBA-Texte 87/2013. Dessau, Textband + 9 Anhänge: 381 S.

Jenssen, M., Schröder, W., Nickel, S. (2015): Typisierung von Wald- und Forstökosystemen als Grundlage zur Einstufung ihrer Integrität. Integrität von Wald- und Forstökosystemen unter dem Einfluss von Klimawandel und atmosphärischen Stickstoffeinträgen – Teil I. Naturschutz und Landschaftsplanung 47(12):391-399.

Johnston, K.; Ver Hoef, J. M.; Krivouchko K.; Lucas, N. (2001): Using ArcGIS Geostatistical Analyst. - Redlands.

Kabata-Pendias, A. (2001): Trace elements in soils and plants. (3. Aufl.) Boca Raton, CRC Press.

Kabata-Pendias, A., Mukherjee, A.B. (2007): Trace elements from soil to humus. Springer Berlin.

Kalbitz K., Zuber T., Park H.J., Matzner E. (2004): Environmental controls on concentrations and fluxes of dissolved organic matter in the forest floor and in soil solution, in: Matzner (Ed.): Biochemistry of forested catchments in a changing Environment, Ecological Studies 172, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, pp. 315 - 337.

Keienburg, T., Prüter, J. (Hrsg.) (2004): Feuer und Beweidung als Instrumente zur Erhaltung magerer Offenlandschaften in Nordwestdeutschland – Ökologische und sozioökonomische Grundlagen des Heidemanagements auf Sand- und Hochmoorstandorten. NNA-Berichte (17) Heft 2 Schneverdingen 221 S.

Kendall, M.G. (1975): Rank Correlation Methods, 4th edition, Charles Griffin, London.

Kick, H.,. Bürger ,H und Sommer, K. (1981): Vegetationsversuche zur Aufnahme von Beryllium und Tl durch Sommergerste und Raps. Landwirtsch. Forsch., 34, S. 186-190.

Klapp, E. (1954): Wiesen und Weiden. 2., völlig neu gestaltete Aufl., Verlag Paul Parey, Berlin und Hamburg. 519 S.

Kleihauer, S., Für, M., Hommen, U., Hund-Rinke, K., Heiß, C. (2012): Bestimmung von stoffbezogenen Umweltqualitätskriterien - Ein Methodenvergleich von nationalen und internationalen Bewertungsgrundlagen. Forschungskennzahl 363 01 260, UBA-FB 001631, UBA-Texte 38/2012.

Kleppin, L., Schröder, W., Pesch, R., Schmidt, G. (2008) Entwicklung und Erprobung einer Metadaten- und WebGIS-Applikation für das Expositionsmonitoring mit Moosen in Deutschland. Ein Beitrag zum LTER-Netzwerk. Zeitschrift für Umweltwissenschaften und Schadstoffforschung, 20, S. 38-48.

Knapp, E. (1973): Ertragstafeln für Schwarzpappelsorten. Forschungsbericht d. Instituts f. Rohholzerzeugung Abt. Waldbau/Ertragskunde. Eberswalde.

Knappe, F., Möhler, S., Ostermayer, A., Lazar, S., Kaufmann, C. (2008): Vergleichende Auswertung von Stoffeinträgen in Böden über verschiedene Eintragspfade. Forschungsbericht 203 74 275, UBA-FB 001168, UBA-Texte 36/08. Umweltbundesamt (UBA). September 2008. 410 S. Dessau-Roßlau.

Köhler, J., Peichl, L. (2009): 30 Jahre Immissionsökologie am Bayerischen Landesamt für Umwelt. LfU Bayern, Augsburg.

Kommission der Europäischen Gemeinschaft (2001): Verordnung (EG) Nr. 466/2001 der Kommission vom 8. März 2001 zur Festsetzung der Höchstgehalte für bestimmte Kontaminanten in Lebensmitteln. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaft, L 77/1 vom 16.03.2001.

Köstler, J. N., Brückner, E. Bibelriether, H. (1968): Die Wurzeln der Waldbäume. Verlag Paul Parey, Hamburg und Berlin . 284 S.

Kratz, W., Schröder, W. (2010): Wider die Vernunft-zum Ende eines Programms effektiver Umweltdatenerhebung in Bund-Länder-Kooperation. Umweltwissenschaften und Schadstoff-Forschung 22, S. 80-83.

Kurz, H., Schulz, R., Römheld, V. (2002): Anbauempfehlungen für mit Thallium belastete Böden. Online im Internet: URL: http://www.fachdokumente.lubw.baden-

wuerttemberg.de/servlet/is/20086/so_bsb04.pdf?command=downloadContent&filename= so_bsb04.pdf. Web-Adresse aufgerufen am: 20.07.2015.

LABO (Bund-Länder-Arbeitsgemeinschaft Bodenschutz) (2003): Hintergrundwerte für anorganische und organische Stoffe in Böden. In: Rosenkranz et al. (Hrsg.): Bodenschutz Ergänzbares Handbuch der Maßnahmen und Empfehlungen für Schutz, Pflege und Sanierung von Böden, Landschaft und Grundwasser. 9006. Erich Schmidt Verlag, Berlin. 3. überarbeitete und ergänzte Auflage, 2003. Text: 59 S., Tabellen-Anhang: 111 S.

LABO (Bund-Länder-Arbeitsgemeinschaft Bodenschutz) (1998): Hintergrundwerte für anorganische und organische Stoffe in Böden (2. überarbeitete und ergänzte Auflage), 1998. In: Rosenkranz, D.; Bachmann G.; König, W.; Einsele, G. (Hrsg.) Bodenschutz, Nr. 9006. Erich Schmidt Verlag, Berlin

LAI (Bund-/Länder-Arbeitsgemeinschaft für Immissionsschutz), Unterausschuss "Wirkungsfragen" (1996): Immissionswerte für Quecksilber/Quecksilberverbindungen. LAI-Schriftenreihe, Band 10.

LAI (Bund-/Länder-Arbeitsgemeinschaft für Immissionsschutz), Unterausschuss "Wirkungsfragen" (2000): Bewertung von Chrom-, Nickel- Immissionen. LAI-Schriftenreihe, Band 21.

Landesbetrieb für Hochwasserschutz und Wasserwirtschaft – LHW Sachsen-Anhalt (2004) (Hrsg.): Steininger, M., Altermann, M. und. Rosche,O. (2004): "Ermittlung der potentiellen diffusen Nährstoffeinträge (Emission N u. P) in Oberflächengewässer des Landes Sachsen-Anhalt auf Basis der Wasserkörper gemäß Anhang II EU – WRRL "Projektteil 2: Abschätzung der dränierten Fläche im Land Sachsen - Anhalt als Grundlage zur Berechnung des Dränwasserabflusses. In: Abschlussbericht Landesbetrieb für Hochwasserschutz und Wasserwirtschaft Sachsen-Anhalt, unveröffentlicht.

Landesumweltamt Brandenburg (2008): Vollzugshilfe zur Ermittlung erheblicher und irrelevanter Stoffeinträge in Natura 2000-Gebiete - Stand November 2008. 54 S.

LANUV (Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz NRW) (2016): Jahreskenngrößen der LUQS-Messstetionen des LANUV NRW für die Jahre 2003-2013. URL: http://www.lanuv.nrw.de.

LAWA (2004): Ableitung von Geringfügigkeitsschwellenwerten für das Grundwasser. Länderarbeitsgemeinschaft Wasser (Hrsg.), Düsseldorf, 2004, S. 33. URL: http://www.lawa.de/documents/GFSBericht-DE_a8c.pdf

Lazar, S., Knappe, F. (2006): Vergleichende Auswertung von Stoffeinträgen in Böden über verschiedene Eintragspfade. Forschungsund Entwicklungsvorhaben des Umweltbundesamtes FKZ 203 74 275. zitiert in: Gauger, T., Haenel, H.-D., Rösemann, C., Nagel, H.-D., Becker, R., Kraft, P., Schlutow, A., Schütze, G., Weigelt-Kirchner, R., Anselm, F. (2008): Nationale Umsetzung UNECE-Luftreinhaltekonvention (Wirkungen). Teil 2: Wirkungen und Risikoabschätzungen. Umweltbundesamt Dessau, UBA-Texte 39/08.

LfULG 2009. Geochemische Übersichtskarte des Freistaates Sachsen. Arsen im Oberboden.

https://www.umwelt.sachsen.de/umwelt/download/boden/as_400_OB.pdf. Web-Adresse aufgerufen am 05.04.2017.

LHW Sachsen-Anhalt — Landesbetrieb für Hochwasserschutz und Wasserwirtschaft (2004): Grundwassergütebericht Sachsen-Anhalt 1997-2001.

Lofts S, Spurgeon DJ, Svendsen C, Tipping E (2004): Deriving soil critical limits for Cu, Zn, Cd, and Pb: A method based on free ion concentrations, Environ. Sci. Technol.; 38(13), 3623 – 3631.

Lorenz, M. (ed.) 2013. FutMon Scientific Report. Thünen Institute fpr World Forestry, Hamburg, 191 pages.

LUA – Landesumweltamt Brandenburg (2008): Vollzugshilfe zur Ermittlung erheblicher und irrelevanter Stoffeinträge in Natura 2000-Gebiete. Studien und Tagungsberichte des Landesumweltamtes, Band 58, - Stand November 2008.

LUA NRW (1996): Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen: Daten zum Schwermetallgehalt landwirtschaftlicher Kulturpflanzen aus Erhebungsuntersuchungen in Nordrhein-Westfalen (Kontrollflächen) [digital]. Düsseldorf.

Luthardt, V., Brauner, O., Hoffmann, C., Haggenmüller, K. (2008): Lebensräume im Wandel. Jahresbericht der ökosystemaren Umweltbeobachtung (ÖUB) zum Offenland des Biosphärenreservates Flusslandschaft Elbe und des Biosphärenreservates Schorfheide-Chorin: Zeitreihenuntersuchungen des Mineralischen Graslandes und des entwässerten, landwirtschaftlich genutzten und aufgelassenen Moorgraslandes (zzgl. 3-jährige Parameter der naturnahen Moore im BR SC). Fachhochschule Eberswalde – Fachbereich Landschaftsnutzung und Naturschutz. URL: http://lanuweb.fh-eberswalde.de/oeub/pdf/OeUB_Bericht_2008.pdf. Web-Adresse aufgerufen am 26.01.2012.

Madejón, P. (2013): Tallium. In: Alloway, B. J. (Ed.) (2013): Heavy Metals in Soils. Trace Metals and Metalloids in Soils and their Bioavailability. Springer Dordrecht, Heidelberg, New York, London. S. 543-547.

Mann, H.B. (1945): Non-parametric tests against trend, Econometrica 13: S. 163-171.

Markert, B. (1992): Multi-element analysis in plant material-analytical tools and biological questions. In: Adriano, D.C. (Ed.): Biochemistry of trace elements. Boca Raton: Lewis publishers. S. 401-428.

Meili, M., Åkerblom, S., Bringmark, L.,, Johansson ,K,,, Munthe, J.,(2003a) Critical loads and limits of heavy metals in ecosystems: Some Swedish contributions to European modelling efforts. Background document contributed to the Editorial Meeting of the Expert Panel on Critical Loads of Heavy Metals under UNECE-CLRTAP-ICP Modelling and Mapping, Paris, 9-10 April 2003.

Meili, M., Bishop, K., Bringmark, L., Johansson, K., Munthe, J., Sverdrup H, de Vries W (2003b) Critical levels of atmospheric pollution: criteria and concepts for operational modelling of mercury in forest and lake ecosystems. Sci. Tot. Environ 304 (1-3): S. 83-106.

Mertens, J., Smolders, E. (2013): Zinc. in: Alloway, B. J. (Ed.): Heavy Metals in Soils. Trace Metals and Metalloids in Soils and their Bioavailability. Springer Dordrecht, Heidelberg, New York, London. S. 465-496.

Meyer, M.; Pesch, R.; Schröder, W.; Steinnes, E.; Uggerud, H. T. (2014a): Spatial patterns and temporal trends of heavy metal concentrations in moss and surface soil specimens collected in Norway between 1990 and 2010. Environmental Sciences Europe 26(27): p. 1-18.

Meyer, M., Schröder, W.; Pesch, R.; Steinnes, E.; Uggerud, H. T. (2014b): Multivariate association of regional factors with heavy metal concentrations in moss and natural surface soil sampled across Norway between 1990 and 2010. Jornal of Soils and Sediments 14(11): p. 1-15.

Meyer, M., Schröder, W., Hoffmann, A. (2015): Effect of Canopy Drip on Accumulation of Nitrogen and Heavy Metals in Moss, Pollution atmosphérique, N°226. URL: http://lodel.irevues.inist.fr/pollution-atmospherique/index.php?id=5159

Mitscherlich, G. (1950): Die Bedeutung der Wuchsgebiete für das Bestandeswachstum von Buche, Eiche, Erle und Birke. Forstwirtsch. Zentralblatt 69, S. 148-211.

Modelling and Mapping Manual (2004): Manual on Methodologies and Criteria for Modelling and Mapping Critical Loads & Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends, Federal Environmental Agency (Umweltbundesamt) Berlin, UBA-Texte 52/04 (download via internet: www.icpmapping.org)

Mohr, K., Schröder, W. (2014): Erfassung atmosphärischer Stoffeinträge mit komplementären Methoden. Plädoyer anlässlich des Fachgesprächs atmosphärische Deposition am 10. und 11. Februar 2014, Umweltbundesamt, Dessau.

Mueller, L., Schindler, U., Behrendt, A., Eulenstein, F., Dannowski, R. (2007): The Muencheberg Soil Quality Rating (SQR). URL: http://www.zalf.de/de/forschung/institute/lwh/mitarbeiter/Imueller/Documents/field_mueller.pdf

MUGV Brandenburg — Ministerium für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz (2009): Mittlere Abflussspende für die Zeitreihe 1976-2005 (Abimo 2.1). URL: http://www.mugv.brandenburg.de/lua/gis/wh_abimo.zip. Web-Adresse aufgerufen am: 08.04.2014.

Nagel, H.-D., Becker, R., Eitner, H., Kunze, F., Schlutow, A., Schütze, G. (2000): Kartierung von Critical Loads für den Eintrag von Säure und eutrophierenden Stickstoff in Waldökosysteme und naturnahe waldfreie Ökosysteme zur Unterstützung von UNECE-Protokollen. Berlin : Umweltbundesamt, UBA-FE-Bericht 297 73 011.

Nagel, H.-D., Schütze, G. (1998) Kriterien für die Erarbeitung von Immissionsminderungszielen zum Schutz der Böden und Abschätzung der langfristigen räumlichen Auswirkungen anthropogener Stoffeinträge auf die Bodenfunktionen. Berlin: Umweltbundesamt Berlin, UBA-FKZ 104 02 825, UBA-Texte 19/1998.

Nagel, H.-D., Becker, R., Kraft, P. Schlutow, A., Schütze, G. und Weigelt-Kirchner, R. (2008): NFC Deutschland, Critical Loads, Biodiversität, Dynamische Modellierung. In: UBA-TEXTE 39-2008. Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, Germany. URL: https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/publikation/long/3647.pdf

NaSE (2017): Nationale Trendtabellen für die deutsche Berichterstattung atmosphärischer Emissionen (Schwermetalle) 1990 – 2015, Stand Januar 2017, Umweltbundesamt, Dessau Roßlau

Nickel, S., Hertel, A., Pesch, R., Schröder, W.; Steinnes, E.; Uggerud, H.T. (2014): Modelling and mapping spatio-temporal trends of heavy metal accumulation in moss and natural surface soil monitored 1990-2010 throughout Norway by multivariate generalized linear models and geostatistics. Atmospheric Environment 99: S. 85-93.

Nickel, S., Pesch, R., Schröder, W., Jenssen, M., Hofmann, G. (2017 a): Prädiktive Kartierung klimawandelbedingter Veränderungen von Waldökosystemen in Deutschland. In: Schröder, W., Fränzle, O., Müller, F. (Hg.): Handbuch der Umweltwissenschaften. Grundlagen und Anwendungen der Ökosystemforschung. Kap. V-1.7. 24. Erg.Lfg., Wiley-VCH, Weinheim: 1-18.

Nickel, S., Schröder, W., Jenssen, M. (2015): Veränderungen deutscher Wälder durch Klimawandel und Stickstoffdeposition. Schweizerische Zeitschrift für Forstwesen 166(5): 325–334.

Nickel, S., Schröder, W., Jenssen, M. (2016): Prädiktive Kartierung und Analyse klimawandelbedingter Veränderungen von Waldund Forstökosystemen. Integrität von Ökosystemen unter dem Einfluss von Klimawandel und atmosphärischen Stickstoffeinträgen – Teil III. Naturschutz und Landschaftsplanung 48(2):46-52.

Nickel, S., Schröder, W., Jenssen, M., Riediger, J. (2017 b): Integrität von Waldökosystemen unter dem Einfluss von Klimawandel und atmosphärischen Stoffeinträgen. In: Schröder, W., Fränzle, O., Müller, F. (Hg.): Handbuch der Umweltwissenschaften. Grundlagen und Anwendungen der Ökosystemforschung. Kap. V-1.6. 24. Erg.Lfg., Wiley-VCH, Weinheim: 1-26.

Odeh, I.O.A., McBratney, A.B., Chittleborough, D.J. 1995. Further results on prediction of soil properties from terrain attributes: heterotopic cokriging and regression-kriging. Geoderma n° 67 (3-4), p. 215-226.

Pesch, R., Schmidt, G., Schröder, W., Aden, C., Kleppin, L., Holy, M. (2007a): Development, implementation and application of the WebGIS MossMet. The Geospatial Web. How geo-browsers, social soft-ware and the Web 2.0 are shaping the network society. Edited by Tochtermann K, Scharl A. London: Springer, p. 191-200.

Pesch, R., Schröder, W., Genssler, L., Goeritz, A., Holy, M., Kleppin, L., Matter, Y. (2007b): Moos-Monitoring 2005 / 2006: Schwermetalle IV und Gesamtstickstoff. - Berlin (Umweltforschungsplan des Bundesministers für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. FuE-Vorhaben 205 64 200, Abschlussbericht, im Auftrag des Umweltbundesamtes); 90 S., 11 Tab., 2 Abb. (Texteil); 51 S. + 41 Karten, 34 Tabellen, 46 Diagramme (Anhangsteil) (ID: 189).

Petersen, A. (1981): Die Gräser als Kulturpflanzen und Unkräuter auf Wiese, Weide und Acker. 5., bearb. Aufl., Akademie-Verlag, Berlin, 280 S.

Prinz, B., Bachmann, G. (1999): Ableitung niederschlagsbezogener Werte zum Schutz des Bodens; In: Bodenschutz IX/1999 Nr. 35680 Handbuch Bodenschutz. Rosenkranz (Hrsg). 24 S., Erich Schmidt Verlag, Berlin.

Quade, J. (1993): Faustzahlen für Landwirtschaft und Gartenbau. Hydro Agri Dülmen GmbH (Hrsg.), 12. überarb., erg. und erw. Aufl. Münster-Hiltrup: Landwirtschaftsverlag. 618 S.

R Core Team (2013): R: A language and environment for statistical computing. R Foundation for Statistical Computing. Vienna.

Rautio, P; Fürst, A.; Stefan, K.; Raitio, H. & Bartels, U. (2010): Sampling and Analysis of Needles and Leaves. 19 pp. Manual Part XII. In: Manual on methods and criteria for harmonized sampling, assessment, monitoring and analysis of the effects of air pollution on forests, UNECE, ICP Forests Programme Co-ordinating Centre, Hamburg. ISBN: 978-3-926301-03-1. URL: http://www.icpforests.org/Manual.htm

Reimann, C., de Caritat, P. (1998): Chemical elements in the environment. Factsheets fr the geochemist and environmental scientist. Springer Berlin Heidelberg, 398 S.

Reinds, G.J., Groenenberg, J.E. und de Vries, W.D. (2006): Critical Loads of copper, nickel, zinc, arsenic, chromium and selenium for terrestrial ecosystems at a European scale. A preliminary assessment. Alterra-rapport, Alterra, Wageningen, 46 S.

Renger, M., Bohne, K., Facklam, M., Harrach, T., Riek, W., Schäfer, W., Wessolek, G., Zacharias, S. (2008): Ergebnisse und Vorschläge der DBG-Arbeitsgruppe "Kennwerte des Bodengefüges" zur Schätzung bodenphysikalischer Kennwerte. URL: https://www.boden.tu-berlin.de/fileadmin/fg77/_pdf/publikationen/bodenphysikalischeKennwerte.pdf

Römbke, J., Jänsch, S. (2007): Überprüfung der Vorsorgewerte im Hinblick auf den Schutz der Bodenorganismen sowie von Validierung von Bodenuntersuchungsverfahren. Bericht für das Umweltbundesamt, F+E-Vorhaben Nr. 206 33 206.

Römbke, J., Jänsch, S., Schallnaß, H.-J. & Terytze, K. (2005): Zusammenstellung und statistische Bearbeitung vorhandener Daten zur Wirkung von ausgewählten Verbindungen auf Bodenorganismen und Ableitung von Prüfwerten für den Pfad "Boden-Bodenorganismen". Bericht für das Umweltbundesamt, F+E-Vorhaben Nr. 202 73 266.

Römpkens, P.F.A.M., Groenenberg, J.E., Bonten, L.T.C., De Vries, W., Bril, J. (2004): Derivation of partition relationships to calculate Cd, Cu, Ni, Pb and Zn solubility and activity in soil solutions. Alterra, Wageningen. Alterra report 305

Rühling, A. (1994): Atmospheric Heavy Metal Deposition in Europe – Estimation Based on Moss Analysis. NORD Report 1994:9, Nordic Council of Ministers, Copenhagen, 53 pages.

Ruhr-Stickstoff-Aktiengesellschaft (Hrsg.) (1988): Faustzahlen für Landwirtschaft und Gartenbau. 11., überarb., erg. u. erw. Aufl.. Bochum, 587 S.

Sachs, L., Hedderich, J. (2009): Angewandte Statistik. Methodensammlung mit R. Springer, Berlin.

Sauerbeck, D., Styperek, P. (1988): Schadstoffe im Boden, insbesondere Schwermetalle und organische Schadstoffe aus langjähriger Anwendung von Siedlungsabfällen. Texte / Umweltbundesamt 16/1988.

Schaap, M., Roemer, M., Sauter, F., Boersen, G., Timmermans, R., Builjes, P.J.H., Vermeulen, A.T. (2005): LOTOS-EUROS: Documentation, TNO report B&O-A R 2005/297.

Schaap, M., Timmermans, R.M.A., Roemer, M., Boersen, G.A.C., Builtjes, P.J.H. Sauter, F.J., Velders, G.J.M. and Beck, J.P., (2008): 'The LOTOS–EUROS model: description, validation and latest developments', Int. J. Environment and Pollution, Vol. 32, No. 2, pp.270–290.

Schachtschabel, P., Blume, H.-P.,- Brümmer, G., Hartge, K.-H., Schwertmann U. (1989): Lehrbuch der Bodenkunde. Scheffer/Schachtschabel. Ferdinant Enke Verlag. Stuttgart.

Schober, R. (1967): Weißtanne, Europäische Lärche und Rotbuche. In: Schober, R. (1975): Ertragstafeln wichtiger Baumarten bei verschiedenen Durchforstungen. J. D. Sauerländer's Verlag, Frankfurt a. M.

Schober, R. (1975): Ertragstafeln wichtiger Baumarten bei verschiedenen Durchforstungen. J. D. Sauerländer's Verlag, Frankfurt a. M.

Schober, R. (1987): Ertragstafeln wichtiger Baumarten. J. D. Sauerländer's Verlag, Frankfurt a. M.

Scholl, G. und Metzger, F. (1981): Erhebungen über die Tlbelastung von Nutzpflanzen auf kontaminierten Böden im Raum Lengerich. Landwirtsch. Forsch., Sonderheft 38, Kongreßband, Trier, S. 216-223.

Schröder, W.,; Holy, M.; Pesch, R,; Zechmeister, G.H.; Harmens, H.; Ilyin, I., (2011): Mapping atmospheric depositions of cadmium and lead in Germany based on EMEP deposition data and the European Moss Survey 2005. Environmental Sciences Europe 2011, 23:19 (9 pp.).

Schröder, W., Pesch, R., Harmens, H., Fagerli, H., Ilyin, I. (2012.): Does spatial auto-correlation call for a revision of latest heavy metal and nitrogen deposition maps? Environmental Sciences Europe, 24:20 (15 pp.).

Schröder, W., Nickel, S., Jenssen, M., Riediger, J. (2015): Methodology to assess and map the potential development of forest ecosystems exposed to climate change and atmospheric nitrogen deposition: a pilot study in Germany. Science of the Total Environment 521-522: 108-122.

Schröder, W., Nickel, S., Jenssen, M., Hofmann, G., Schlutow, A., Nagel, H.-D., Burkhard, B., Dworczyk, C. (2017): Anwendung des Bewertungskonzepts für die Ökosystemintegrität unter Berücksichtigung des Klimawandels in Kombination mit Stoffeinträg. Abschlussbericht Forschungskennzahl (UFOPLAN) 3713 83 254. Dessau, Vechta, Entwurf 30.04.2017.

Schröder, W., Riediger, J., Nickel, S., Jenssen, M. (2016): Projektion zukünftiger Ökosystemzustände unter dem Einfluss von Klimawandel und atmosphärischen Stickstoffeinträgen. Integrität von Wald- und Forstökosystemen unter dem Einfluss von Klimawandel und atmosphärischen Stickstoffeinträgen – Teil II. Naturschutz und Landschaftsplanung 48(1):22-28.

Schroeder, H.A., Balassa, J.J., Tipton, H.J. (1963): Vanadium in plants. Z. Chron Dis 16:1047.

Schütze, G., Becker, R., Dämmgen, U., Nagel, H. D., Schlutow, A., Weigel, H.-J. (2003): Risikoabschätzung der Cadmium-Belastung für Mensch und Umwelt infolge der Anwendung von cadmiumhaltigen Düngemitteln. Landbauforschung Völkenrode 53: 63-170.

Schütze, G., Hettelingh, J.-P. (2006): Results of modelling and mapping of critical Loads of lead, cadmium ans mercury and critical concentrations of mercury in precipitation and their exidences in Europe. Sufficiency and Effectiveness Review of the heavy metals Protocol. UNECE Reports.

Schwappach, H. (1912): Ertrags-Schätztafeln für Forstbestände. Archiv der Forstwissenschaft Eberswalde, unveröffentlicht.

Sklenar, I., Fox, G.G., Loughman, B.C., Pannifer, A.D.B., Ratcliffe, R.G. (1994): Effect of vanadate on the ATPase, activity and phosphate absorption capacity of maize roots. Z. Plant and Soil 167: S. 57-62.

Spranger, T. (2014): Die novellierten Protokolle zur UNECE-Luftreinhaltekonvention: Trends und Herausforderungen internationaler Luftreinhaltepolitik, in: Immissionsschutz, Zeitschrift für Luftreinhaltung, Lärmschutz, Anlagensicherheit, Abfallverwertung und Energienutzung, Heft 2/2014. URL: http://www.IMMISSIONSSCHUTZdigital.de/Immissionsschutz.02.2014.052.

Statistisches Bundesamt (2014): Fachserie 3 Reihe 3.2.1. Land- und Forstwirtschaft, Fischerei. Wachstum und Ernte - Feldfrüchte

Stein-Bachinger, K., Bachinger, J., Schmitt, L. (2004): Nährstoffmanagement im Ökologischen Landbau. Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e.V. (KTBL) (Hrsg.). Darmstadt, 136 S.

TA Luft (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) (2002): Erste Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes–Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft – TA Luft) vom 24. Juli 2002.

Tipping, E. (2014): Ergebnisse der mit dem WHAM-Modell berechneten Critical Limits für die in Deutschland vorkommenden Rezeptortypen, unveröffentlichte Excel-Tabelle per Email.

Tipping, E., Lofts, S., Hooper, H., Fey, B., Spugeon, D., Svendsen, C. (2010a): Critical Limits for Hg(II) in soils, derived from chronic toxicity data. Environmental Pollution 158: S. 2465-2471.

Tipping, E., Rothwell, J.J., Shotbolt, L. und Lawlor, A.J. (2010b): Dynamic modelling of atmospherically-deposited Ni, Cu, Zn, Cd and Pb in Pennine catchments (northern England). Environmental Pollution, 158, S. 1521-1529.

Tischew, S. (2011): Management von Offenland-Lebensräumen an pflegeproblematischen Steilhängen durch ZiegenWeb-Adresse aufgerufen amweiden. Beschreibung des laufenden Forschungsprojekts. online im Internet: URL: http://www.loel.hsanhalt.de/forschung/forschungsprojekte.html? tx_bwhsaresearchdb_pi1. cmd]=projekt_lesen&tx_bwhsaresearchdb_pi1. person]=24017&tx_bwhsaresearchdb_pi1. projekt_id]=14139&cHash=3bf21fec3c4ffa27448d713a3efaa151. Web-Adresse aufgerufen am Juli 2015.

Tørseth, K., Aas, W., Breivik, K., Fjaeraa, A. M., Fiebig, M., Hjellbrekke, A. G., Myhre, C. L., Solberg, S. & Yttri, K. E. (2012): Introduction to the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) and observed atmospheric composition change during 1972-2009. Atmospheric Chemistry and Physics 12, S. 5447-5481.

Travnikov, O., Ilyin, I., (2005): Regional Model MSCE-HM of Heavy Metal Transboundary Air Pollution in Europe. EMEP/MSC-E Technical report 6/2005. Meteorological Synthesizing Centre - East, Moscow, Russian Federation. URL: http://www.msceast.org.

Travnikov, O., Ilyin, I., Rozovskaya, O., Varygina, M., Aas, W., Uggerud, H. T., Mareckova, K., Wank-mueller, R. (2012): Long-term Changes of Heavy Metal Transboundary Pollution of the Envi-ronment (1990-2010). EMEP contribution to the revision of the Heavy Metal Protocol. EMEP Status Report 2/2012. Meteorological Synthesizing Centre - East, Moscow, Russian Federa-tion, Norwegian Institute for Air Research Kjeller, Norway, Umweltbundesamt GmbH, Vienna, Austria.

BTrinkwV (2001) (Bundes-Trinkwasserverordnung): BGBI. I S. 2977: Verordnung über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch, zuletzt geändert durch Artikel 4 Absatz 22 des Gesetzes vom 7. August 2013 (BGBI. I S. 3154).

UBA (2008): Umweltprobenbank des Bundes – Konzeption. URL:

http://www.umweltprobenbank.de/upb_static/fck/download/Konzeption_Okt_2008_de.pdf. Web-Adresse aufgerufen am: Oktober 2008.

UNECE (2013): Protocol to the 1979 Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution on Heavy Metals with amendments adopted at the 31st session of the Executive Body on Thursday, 13 December 2013. 45 S.

Utermann, J., Düwel, O., Fuchs, M. (2008): Flächenrepräsentative Hintergrundwerte für As, Be, Co, Mo, Sb, Se, Tl, U, & V in Böden Deutschlands aus länderübergreifender Sicht. BGR-Bericht, Archiv Nr. 10040/08, 71 pp.

Utermann, J., Fuchs, M, Düwel, O. (2007): Hintergrundwerte für Vanadium in Ober-/Unterböden und Untergrund bezogen auf die in den Bodenausgangsgesteinsgruppen dominierenden Bodenarten. Veröff. der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe Hannover.

Van Driel, W., Stuurmans, W., Dekkers, J.M..J., de Vries, W., Vos, G., Stienen. M.J.J. (1987): Zware metalen in oevergronden en daarop verbouwde gewassen in het stroomgebied van Maas, Geul en Roer in de provincie Limburg. 1. Algemene gegevens en samenvatting van de resultaten. Rapport von de projectgroep zware metalen in oevergronden van Maas en zijrivieren.

Visschedijk ,A. H. J., Denier van der Gon H. A. C., Hulskotte J. H. J, Quass, U. (2013): Anthropogenic Vanadium emissions to air and ambient air concentrations in North-West Europe. E3S Web of Conferences, Proceedings of the 16th International Conference on Heavy Metals in the Environment, Vol 1. URL: http://dx.doi.org/10.1051/e3sconf/20130103004

Vogel, I., Terytze, K., Römbke, J., Jänsch, S.(2009): Methodologie der Ableitung von Vorsorgewerten unter Berücksichtigung der Bodenorganismen. In: Rosenkranz, D., Bachmann, G., König, W., Einsele G.: Bodenschutz, Ergänzbares Handbuch der Maßnahmen und Empfehlungen für Schutz, Pflege und Sanierung von Böden, Landschaft und Grundwasser. BoS 48. Lfg. IX/09.

Wallace, A., Alexander, G.V., Chaudhry, F.M. (1977): Phytotoxicity of cobalt, vanadium, titanium, silver and chromium. Z. Communication in Soil Science and Plant Analysis 9: S. 751-756

Wang, J.F., Liu, Z (1999): Effect of vanadium on the growth of soybean seedlings. Z. Plant and Soil 216: S. 47-51.

Welch, R.M., Edward, W.D., Huffman, J. (1973): Vanadium and plant nutrition. Z. Plant Physiology, 52: S. 183-185.

WHO (2004b): Guidelines for drinking water quality. 3. ed., reprinted edn, Geneva XXIII, 515 S.

WHO (2011): Guidelines for drinking-water quality. 4th edn. World Health Organization, Geneva 632 S.

Wiedemann, F. (1936): Ertragstafeln der Fichte. In: Schober (1975) Ertragstafeln wichtiger Baumarten bei verschiedenen Durchforstungen. Frankfurt a. M.: Verlag Sauerländer.

Wiedemann, F. (1943): Ertragstafeln der Kiefer. In: Schober (1975) Ertragstafeln wichtiger Baumarten bei verschiedenen Durchforstungen. Frankfurt a. M.: Verlag Sauerländer.

Wiedemann, F. (1951): Ertragskundliche und waldbauliche Grundlagen der Forstwirtschaft. Sauerländer Verlag, Frankfurt a.M..

Wiersma, D., van Goor, B.J., van der Veen, N.G. (1986): Cadmium, lead, mercury and arsenic concentrations in crops and corresponding soils in the Netherlands. J. agric. food chem. 34: S. 1067-1075.

Wilke, B.-M., Hund-Rinke, K., Pieper, S., Kratz, W., Römbke, J. (2003): Entwicklung ökotoxikologischer Orientierungswerte für Böden. Bericht für das Umweltbundesamt. (FKZ 299 71 207)Wilkison, R.E., Duncan, R.R. (1993): Vanadium influence on Ca (45Ca2+) absorption by sorghum root tips. Z. Journal of Plant nutrition 16: S. 1991-1994.

Wilkison, R.E., Duncan, R.R. (1993): Vanadium influence on Ca (45Ca2+) absorption by sorghum root tips. Z. Journal of Plant nutrition 16:1991-1994Wimmenauer, K. (1919): Wachstum und Ertrag der Esche. AFJZ S. 9-17 und S. 37-40.

Wimmenauer, K. (1919): Wachstum und Ertrag der Esche. AFJZ S. 9-17 und S. 37-40.

Wyttenbach, A., Bajo, S., Tobler, L., (1990): Major and trace elements in spruce needles by NAA. In: Schrauzer, G.N. (Ed.), Biological Trace Element Research. Humana Press, Clifton, UK, p. 213-221.

Zeddel, A., Quadflieg, A., Utermann, J. (2016): Grundsätze für die Anwendung der Geringfügigkeitsschwellen an der Schnittstelle Wasserrecht – Abfallrecht – Bodenschutzrecht. Recht/Strategie/Wirtschaft . URL: http://vivis.de/phocadownload/2016_mna/2016_MNA_051-64_Zeddel.pdf
5 Anhangsverzeichnis

ANHANG A1: Datenrecherche und -beschaffung ANHANG A2: Integrative Auswertung der Daten ANHANG A3: Erheblichkeitsbeurteilung

ANHANG A1

Zu Teilbericht 2:

Datenrecherche und -beschaffung

INHALT

- A1.1: Übersicht der projektrelevanten Datengrundlagen
- A1.2: Übersicht der wichtigsten Biomonitoringprogramme in den Bundesländern

Anhang A1.1:	Übersicht der projektrelevanten	Datengrundlagen
0		0 0

Daten	Institution
Datenquellen, die für die integrative Analyse verwen	idet wurden
Modellierte Depositionsdaten, EMEP-Modell	Meteorological Synthesizing Centre-East (MSC-E) 2nd Roshchinsky proezd, 8/5 115419, Moscow
Modellierte Depositionsdaten, Modell LOTOS-EUROS	TNO Princetonlaan 6 NL-3584 CB Utrecht
Mess- und Metadaten aus dem Europ. Moos- Monitoring	Universität Vechta Lehrstuhl für Landschaftsökologie Driverstr. 23 D-49377 Vechta
Geostatistische Flächenschätzungen der Schwer- metallgehalte im Moos	Universität Vechta Lehrstuhl für Landschaftsökologie Driverstr. 23 D-49377 Vechta
Moosdaten aus Studienprojekten des LLÖK	Universität Vechta Lehrstuhl für Landschaftsökologie Driverstr. 23 D-49377 Vechta
Mess- und Metadaten aus der Depositionsdaten- bank des UBA	Umweltbundesamt Wörlitzer Platz 1 06844 Dessau
Monitoringdaten aus der Umweltprobenbank (UPB)	Umweltbundesamt Bismarckplatz 1 14193 Berlin
Monitoringdaten aus dem ICP Forests Level II	Thünen-Institut für Waldökosysteme Alfred-Möller-Str. 1 16225 Eberswalde
Sonstige projektrelevante Datenquellen	
Monitoringdaten aus der Bodenzustandserhebung (BZE) Daten zu 50%-Perzentilen der Schwermetallgehal- te im Boden (LABO 1998, 2003)	Thünen-Institut für Waldökosysteme Alfred-Möller-Str. 1 16225 Eberswalde Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe im GEOZENTRUM HANNOVER Stilleweg 2 30655 Hannover

Daten	Institution
Hintergrundwerte von Schwermetallen in Auflage- horizonten unter Forst in Bayern für As, Cd, Co, Cr, Cu, Hg, Mo, Ni, Pb, Sb, Ti, V und Zn	Bayerisches Landesamt für Umwelt über Bundesanstalt für Geowissenschaften und Roh- stoffe im GEOZENTRUM HANNOVER Stilleweg 2 30655 Hannover
Critical Loads (CL)	ÖKO-DATA Gesellschaft für Ökosystemanalyse und Umweltdatenmangement mbH Hegermühlenstrasse 58 15344 Strausberg
Corine Landcover (CLC)	European Environment Agency (EEA) Kongens Nytorv 6 1050 Copenhagen K
Aktuelle Natürliche Ökosystemtypen (ANOEST)	Universität Vechta Lehrstuhl für Landschaftsökologie Driverstr. 23 D-49377 Vechta
Landschaftsökologische Raumgliederung	Universität Vechta Lehrstuhl für Landschaftsökologie Driverstr. 23 D-49377 Vechta

Bundesland	Monitoringprogramme	Institution
Baden- Württemberg	Von der Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Natur- schutz Baden-Württemberg werden unterschiedliche Schwermetall-Biomonitoring-Programme durchgeführt:	Landesanstalt für Umwelt, Messungen und Natur- chutz Baden-Württemberg
	 Untersuchung von Wanderfalken-Resteiern auf Quecksilber, Cadmium und Blei. Es liegt kein Mess- netz zugrunde, da es sich um zufällige Einzelfunde handelt. 	Postfach 10 01 63 76231 Karlsruhe
	 Untersuchung der Leber von Bachforellen im Fließ- gewässermessnetz der Medienübergreifenden Um- weltbeobachtung (MUB) 	
	3. Untersuchung von Moosen (Hypnum cupressiforme, Plurozium schreberi), Buchenblättern, Tannennadeln, Grünlandaufwuchs (extensive Magerrasen) und Ein- zelpflanzen des Grünlandes (Bromus erectus, Planta- go media, Plantago lanceolata, Achillea millefolium, Calluna vulgaris). Messnetz der Wald- und Grünland- dauerbeobachtungsflächen der Medienübergreifen- den Umweltbeobachtung (MUB).	
	 Regenwürmer (L. rubellus) aus Wald- Dauerbeobachtungsflächen der Medienübergreifen- den Umweltbeobachtung (MUB). 	
	 Quecksilberuntersuchung von Fischen in Rhein, Neckar und Donau nach Richtlinie 2013/39/EU zur Oberflächenqualität. Probeentnahme erfolgte an Stel- len von besonderer wasserwirtschaftlicher Bedeu- tung. 	
Sachsen	Das Sächsische Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie (LUNG) erfasst im Rahmen der EU- Wasserrahmenrichtlinie (WRRL) folgende Parameter:	Staatliche Betriebsgesell- schaft für Umwelt und Landwirtschaft (BfUL)
	Die Belastung mit Hg, Cd und Pb an Fischen aus dem sächsi- schen Oberflächenwasserkörper. In der Elbe und in Gewäs- sern, in denen sich Überblicksmessstellen nach WRRL befin- den. Es handelt sich dabei um die Freiberger und Zwickauer Mulde, die Vereinigte Mulde und Lausitzer Neiße. Am Über- gang zu den in Fließrichtung unterliegenden Bundesländern wurden auch Untersuchungen in der Spree, sowie der Schwarzen Elster und Weißen Elster durchgeführt.	

Anhang A1.2: Ü	Übersicht der wichtigsten	Biomonitoringprogramme	in den Bundesländern
----------------	---------------------------	------------------------	----------------------

Bundesland	Monitoringprogramme	Institution		
Bayern	 In der Zuständigkeit des Bayrischen Landesamtes für Umwelt (LfU)- Bayern liegen: Moosmonitoring mit dem Epiphyt Hypnum cupressiforme 2010 an ca. 300 Messpunkten (16km-Raster) 2013 an ca. 50 ausgewählten Standorten. Standardisierte Graskultur (Weidelgras) an 8 Dauerbeobachtungsstationen (jährlich 5x 4 Wochen) Seit 1995 Schwermetallgehaltmessung im Rahmen des Fisch- und Muschelschadstoffmonitorings; letzte Untersuchungsjahre für Fische 2007-2009, für Muscheln 2008-2011. Bericht Erscheinungsjahr 2013. Seit 2011 wurden die Monitoringstrategie und das Mess- netz an die Erfordernisse der EU- Wasserrahmenrichtlinie (WRRL) angepasst. Derzeit erfolgt das Fischschadstoffmonitoring an ca. 50 Mess- tellen (einmal jährlich im Herbst, alle 3 Jahre), das Muschelmonitoring an ca. 20 Messstellen (halbjähr- lich, jedes Jahr). Es handelt sich um Messstellen aus dem bayrischen Landesmessnetz und dem Messnetz Überblicküberwachung WRRL. 	Bayerisches Landesamt für Umwelt Bürgermeister-Ulrich Str. 160 86179 Augsburg Bayerisches Landesamt für Umwelt Demollstr. 31 82407 Wielenbach		
Thüringen	Im Forstlichen Forschungs- und Kompetenzzentrum Thürin- genforst werden Schwermetalleinträge an 14 Wald- und Hauptmessstationen durch jährliche Messungen von Nadeln und Blättern nur im Rahmen des Intensiv-Monitorings erfasst.	Forstliches Forschungs- und Kompetenzzentrum Jägerstr. 1 99867 Gotha		
Rheinland- Pfalz	 Von der Forschungsanstalt für Waldökologie und Forstwirtschaft Rheinland-Pfalz werden auf eigenen Intensivuntersuchungsflächen folgende Proben erhoben: 1. Nadel und Blätter von Probebäumen; Blätter Mitte Ende Juli; Nadeln außerhalb der Vegetationsperiode 2. Der Streufall dieser Untersuchungsflächen wird als Jahresmischprobe/Kompartiment auf Schwermetalle untersucht Das Messnetz ergibt sich für beide oben genannten Biomonitore aus den Intensivuntersuchungsflächen (9 Standorte der Hauptbaumarten in den Hauptwaldgebieten von RLP). Hier werden jährlich bis 2-jährlich Proben gewonnen und analysiert. 	Forschungsanstalt für Waldökologie und Forst- wirtschaft Rheinland-Pfalz Hauptstraße 16 67705 Trippstadt		

Bundesland	Monitoringprogramme	Institution
Nordrhein- Westfalen	Das Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucherschutz Nordrheinwestfalen (LANUV) führt seit vielen Jahren folgende Schwermetalluntersuchungen durch:	Landesamt für Natur, Umwelt und Verbraucher- schutz NRW
	Im Rahmen des Wirkungsdauermessprogramms werden an 13 Standorten Graskulturen und Grünkohl untersucht.	Wallneyer Str. 6 45133 Essen
	Im Rahmen des forstlichen Umweltmonitorings erfolgen Na- del- und Blattanalysen; zum einen auf Dauerbeobachtungsflä- chen, zum anderen im landesweiten Raster der WZE. Es wer- den zeitversetzt alle 4 Jahre die Baumarten Buche, Eiche, Fichte und Kiefer beprobt. Allerdings ist der Kanon der unter- suchten Schwermetalle eingeschränkt auf:	
	1. Pb, Cd (Gruppe A, mit höchster Intensität zu bearbei- tende Schwermetalle)	
	2. Cu, Zn (Gruppe B, mit mittlerer Intensität zu bearbei- tende Schwermetalle)	
	3. Mn (Gruppe C)	
	Die Schwermetalle der beiden letztgenannten Gruppen B und C liefern Hinweise für den Waldernährungszustand.	
Mecklen- burg- Vorpommern	Im Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie Meck- lenburg-Vorpommern (LUNG) laufen derzeit folgende Pro- gramme:	Landesamt für Umwelt, Naturschutz und Geologie (LUNG) Postfach 13 38
	 Jahrliche Untersuchungen zur Belastung von Mu- scheln mit Schwermetallen im Rahmen des Landes- monitorings 	18263 Güstrow
	2. seit 2013 Schadstoffmonitoring an Fischen in Fließ- gewässern	

Erläuterung: Die Tabelle fasst die Ergebnisse einer Recherche zum Biomonitoring in den Bundesländern zusammen, die im Frühjahr 2014 durchgeführt wurde (Internet-Recherchen, Sondierungsgespräche, schriftliche Anfragen per E-Mail bei Fachstellen der Länder). Erfragt wurden Messnetze der einzelnen Bundesländer mit Biomonitoringaktivitäten nach 2009, welche Organismen gegebenenfalls untersucht wurden, welche Messnetze der Untersuchung zugrunde lagen und wer der jeweilige Ansprechpartner für die Fachbetreuung bzw. das Informationsmanagement ist. Mit Ausnahme der Hansestadt Bremen ergingen Anfragen in alle Bundesländer, der Rücklauf umfasste 7 Bundesländer. Im Ergebnis wurden seit 2009 zumindestens in fünf Bundesändern Schwermetalldaten im Rahmen von Biomonitoring-Programmen erfasst (s.o.). Die Ergebnisse erheben keinen Anspruch auf Vollständigkeit. Insgesamt deuten sich allerdings aktuell außerordentlich geringe Biomonitoringaktivitäten in den Ländern an.

ANHANG A2

Zu Teilbericht 2:

Integrative Auswertung der Daten

INHALT

- A2.1: Häufigkeitsverteilung der mit LE für den Zeitraum 2007 2011 modellierten Cd-Gesamtdeposition (links) bzw. Pb-Gesamtdeposition (rechts)
- A2.2: Häufigkeitsverteilung der im Moos-Monitoring 2005 in Deutschland gemessenen Cd-Gehalte (links) bzw. Pb-Gehalte (rechts) im Moos
- A2.3: Kennwerte der modellierten Cd- und Pb-Gesamtdeposition der Jahre 2007-2011 bezogen auf das 50 km mal 50 km aufgelöste EMEP-Grid über Deutschland (n = 204)
- A2.4: Jahresmediane der modellierten Cd- und Pb-Gesamtdeposition der Jahre 1998 bis 2011 von EMEP und LE für Deutschland (n = 204)
- A2.5: Jahresmediane und auf das Jahr 2005 normierte Jahresmediane der gemessenen Cd- und Pb-Gehalte im Moos und der mit dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition 1991, 1995, 2000 und 2005
- A2.6: Korrelationsmatrix der mit LE berechneten Gesamtdeposition verschiedener Schwermetalle der Gruppe B (links) und geostatistisch geschätzten Schwermetallkonzentrationen im Moos (rechts)
- A2.7: Probenarten- und ökosystemspezifische Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cd- und Pb Nadel-/Blattspiegelwerten aus der Umweltprobenbank des Bundes (UPB) und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum 2007-2011)
- A2.8: Jahresmediane und auf das Jahr 2005 normierte Jahresmediane der Nadel-/Blattspiegelwerten der Cd- und Pb-Belastung aus der Umweltprobenbank des Bundes (UPB) und der mit dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition von 1998 bis 2011
- A2.9: Probenarten- und altersklassenspezifische Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cd- und Pb Nadel-/Blattspiegelwerten aus der Level-II-Datenbank und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum 2007-2011)
- A2.10: Altersklassenspezifische Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cuund Zn-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) und der mit LE berechneten Gesamtdeposition (Zeitraum 2009-2011)
- A2.11: Jahresmediane und auf das Jahr 2005 normierte Jahresmediane der Cd- und Pb-Gehalten in Blättern/Nadeln Level II und der mit dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition von 2002 bis 2010
- A2.12: Residuenanalyse zum linearen Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Cd-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)
- A2.13: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Cd-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)
- A2.14: Residuenanalyse zum linearen Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Pb-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)
- A2.15: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Pb-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)
- A2.16: Residuenanalyse zum linearen Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der As-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)

- A2.17: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der As-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)
- A2.18: Residuenanalyse zum linearen Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Ni-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)
- A2.19: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Ni-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)

Anhang A2.1: Häufigkeitsverteilung der mit LE für den Zeitraum 2007 – 2011 modellierten Cd-Gesamtdeposition (links) bzw. Pb-Gesamtdeposition (rechts)



Anhang A2.2: Häufigkeitsverteilung der im Moos-Monitoring 2005 in Deutschland gemessenen Cd-Gehalte (links) bzw. Pb-Gehalte (rechts) im Moos



Anhang A2.3: Kennwerte der modellierten Cd- und Pb-Gesamtdeposition der Jahre 2007-2011 bezogen auf das 50 km mal 50 km aufgelöste EMEP-Grid über Deutschland (n = 204)

Variable	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD
cd_lotos_07	Cd-Gesamtdeposition 2007, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	13,63	51,97	27,76	27,72	5,84
cd_lotos_08	Cd-Gesamtdeposition 2008, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	13,39	50,13	25,28	24,63	5,32
cd_lotos_09	Cd-Gesamtdeposition 2009, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	13,59	55,35	26,67	26,20	5,71
cd_lotos_10	Cd-Gesamtdeposition 2010, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	15,50	57,15	29,11	28,21	6,54
cd_lotos_11	Cd-Gesamtdeposition 2011, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	13,77	46,60	22,87	22,05	4,47
cd_emep_07	Cd-Gesamtdeposition 2007 (EMEP)	µg/m² a	16,52	217,85	50,95	45,35	24,49
cd_emep_08	Cd-Gesamtdeposition 2008 (EMEP)	µg/m² a	15,15	172,40	39,42	34,29	19,46
cd_emep_09	Cd-Gesamtdeposition 2009 (EMEP)	µg/m² a	16,73	143,69	37,10	31,31	17,85
cd_emep_10	Cd-Gesamtdeposition 2010 (EMEP)	µg/m² a	13,44	143,96	35,71	31,14	18,24
cd_emep_11	Cd-Gesamtdeposition 2011 (EMEP)	µg/m² a	15,39	227,74	43,41	36,40	25,82
pb_lotos_07	Pb-Gesamtdeposition 2007, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	322,17	1558,50	664,44	649,54	173,51
pb_lotos_08	Pb-Gesamtdeposition 2008, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	316,90	1556,12	614,41	588,08	166,82
pb_lotos_09	Pb-Gesamtdeposition 2009, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	322,64	1611,63	634,50	612,25	169,79
pb_lotos_10	Pb-Gesamtdeposition 2010, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	379,52	1744,15	679,83	655,61	176,65
pb_lotos_11	Pb-Gesamtdeposition 2011, Median des gewich- teten Mittels (LE)	µg/m² a	332,01	1367,75	556,31	523,57	140,87
pb_emep_07	Pb-Gesamtdeposition 2007 (EMEP)	µg/m² a	690,24	5154,91	1763,36	1649,47	656,05

Variable	Beschreibung	Einheit	Min	Max	Mean	Median	SD
pb_emep_08	Pb-Gesamtdeposition 2008 (EMEP)	µg/m² a	547,59	3955,38	1225,53	1138,57	445,10
pb_emep_09	Pb-Gesamtdeposition 2009 (EMEP)	µg/m² a	569,53	3285,66	1152,65	1045,74	424,74
pb_emep_10	Pb-Gesamtdeposition 2010 (EMEP)	µg/m² a	461,85	3099,06	1076,22	1014,36	401,12
pb_emep_11	Pb-Gesamtdeposition 2011 (EMEP)	µg/m² a	570,35	4941,32	1450,07	1336,82	581,23

SD = Standardabweichung

Anhang A2.4: Jahresmediane der modellierten Cd- und Pb-Gesamtdeposition der Jahre 1998 bis 2011 von EMEP und LE für Deutschland (n = 204)

	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2011
Cd EMEP	48,13	41,63	43,82	35,61	43,64	40,56	39,54	41,30	36,70	45,35	34,30	31,31	31,14
Cd LE								19,45		27,72	24,63	26,20	28,21
Pb EMEP	2342,12	1947,25	1731,88	1395,38	1605,21	1602,07	1615,34	1660,33	1582,85	1649,47	1138,57	1045,74	1014,36
Pb LE								495,87		649,54	588,08	612,25	655,61

Anhang A2.5: Jahresmediane und auf das Jahr 2005 normierte Jahresmediane der gemessenen Cd- und Pb-Gehalte im Moos und der mit dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition 1991, 1995, 2000 und 2005

	1991	1995	2000	2005
Cd EMEP			43,82	41,30
Cd EMEP normiert (2005)			106,00	100,00
Cd Moos	0,26	0,30	0,21	0,21
Cd Moos normiert (2005)	123,00	142,00	100,00	100,00
Pb EMEP			1731,88	1660,33
Pb EMEP normiert (2005)			104,00	100,00
Pb Moos	12,53	7,64	4,61	3,73
Pb Moos normiert (2005)	336,00	205,00	124,00	100,00

Anhang A2.6: Korrelationsmatrix der mit LE berechneten Gesamtdeposition verschiedener Schwermetalle der Gruppe B (links) und geostatistisch geschätzten Schwermetallkonzentrationen im Moos (rechts)



Anhang A2.7: Probenarten- und ökosystemspezifische Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cd- und Pb Nadel-/Blattspiegelwerten aus der Umweltprobenbank des Bundes (UPB) und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum 2007-2011)

Modell	Element	Probenart	Ökosystemtyp	Ν	r (k)	р
LE	Pb	Fagus sylvatica	Agrar-Ökosystemtyp	6	-0,60	0,13
LE	Pb	Fagus sylvatica	Forst-Ökosystemtyp	8	0,64	0,04
LE	Pb	Fagus sylvatica	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,30	0,15
LE	Pb	Pop. nigra 'Italica'	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	17	0,81	<0,01
LE	Pb	Picea abies	Agrar-Ökosystemtyp	6	-0,33	0,45
LE	Pb	Picea abies	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	6	-0,20	0,71
LE	Pb	Picea abies	Forst-Ökosystemtyp	8	0,43	0,17
LE	Pb	Picea abies	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,30	0,15
LE	Pb	Pinus sylvestris	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	6	-0,33	0,45
LE	Cd	Fagus sylvatica	Agrar-Ökosystemtyp	6	-0,33	0,45
LE	Cd	Fagus syl- vatica	Forst-Ökosystemtyp	8	0,71	0,02
LE	Cd	Fagus syl- vatica	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,60	<0,01

Modell	Element	Probenart	Ökosystemtyp	Ν	r (k)	р
LE	Cd	Pop. nigra 'Italica'	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	18	0,37	0,03
LE	Cd	Picea abies	Agrar-Ökosystemtyp	6	-0,87	0,02
LE	Cd	Picea abies	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	7	0,33	0,37
LE	Cd	Picea abies	Forst-Ökosystemtyp	8	0,64	0,04
LE	Cd	Picea abies	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,49	0,02
LE	Cd	Pinus sylvestris	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	6	0,33	0,45
EMEP	Pb	Fagus sylvatica	Agrar-Ökosystemtyp	6	0,47	0,26
EMEP	Pb	Fagus sylvatica	Forst-Ökosystemtyp	8	0,64	0,04
EMEP	Pb	Fagus sylvatica	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,56	0,01
EMEP	Pb	Pop. nigra 'Italica'	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	17	0,44	0,02
EMEP	Pb	Picea abies	Agrar-Ökosystemtyp	6	0,07	1,00
EMEP	Pb	Picea abies	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	6	0,33	0,45
EMEP	Pb	Picea abies	Forst-Ökosystemtyp	8	0,43	0,17
EMEP	Pb	Picea abies	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,21	0,32
EMEP	Pb	Pinus sylvestris	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	6	0,73	0,06
EMEP	Cd	Fagus sylvatica	Agrar-Ökosystemtyp	6	0,07	1,00
EMEP	Cd	Fagus sylvatica	Forst-Ökosystemtyp	8	0,69	0,02
EMEP	Cd	Fagus sylvatica	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,43	0,04
EMEP	Cd	Pop. nigra 'Italica'	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	18	0,26	0,15
EMEP	Cd	Picea abies	Agrar-Ökosystemtyp	6	-0,73	0,06
EMEP	Cd	Picea abies	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	7	0,29	0,45
EMEP	Cd	Picea abies	Forst-Ökosystemtyp	8	0,40	0,21
EMEP	Cd	Picea abies	Naturnaher Ökosystemtyp	14	0,36	0,08
EMEP	Cd	Pinus sylvestris	Ballungsraumnaher Öko- systemtyp	6	-0,07	1,00

Anhang A2.8: Jahresmediane und auf das Jahr 2005 normierte Jahresmediane der Nadel-/Blattspiegelwerten der Cd- und Pb-Belastung aus der Umweltprobenbank des Bundes (UPB) und der mit dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition von 1998 bis 2011

	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011
Cd EMEP	48,13	41,63	43,82	35,61	43,64	40,56	39,54	41,30	36,70	45,35	34,30	31,31	31,14	36,40
Cd EMEP normiert (2005)	117	101	106	86	106	98	96	100	89	110	83	76	75	88
Cd Blätter Bu.	0,05	0,08	0,04	0,04	0,04	0,05	0,03	0,07	0,06	0,08	0,05	0,05	0,05	0,06
Cd Blätter Bu. normiert (2005)	71	107	57	57	50	71	36	100	79	114	64	71	71	86
Cd Blätter P.pappel	1,69	0,85	1,17	0,87	0,94	0,96	1,55	1,37	1,54	1,36	1,35	1,50	1,28	1,35
Cd Blätter P.pappel normiert (2005)	123	62	85	64	69	70	113	100	112	99	99	109	93	99
Cd einjährige Triebe Pic.abies	0,16	0,15	0,13	0,15	0,13	0,11	0,11	0,11	0,08	0,12	0,10	0,12	0,07	0,13
Cd einjährige Triebe Pic.abies normiert (2005)	145	136	114	136	114	100	95	100	73	105	91	105	64	114
Cd einjährige Triebe Pinus sylv.	0,22	0,24	0,14	0,21	0,18	0,22	0,14	0,20	0,18	0,22	0,24	0,19	0,21	0,18
Cd einjährige Triebe Pinus sylv. normiert (2005)	110	120	70	105	90	110	70	100	90	110	120	95	105	90
Pb EMEP	2342,12	1947,25	1731,88	1395,38	1605,21	1602,07	1615,34	1660,33	1582,85	1649,47	1138,57	1045,74	1014,36	1336,82
Pb EMEP normiert (2005)	141	117	104	84	97	96	97	100	95	99	69	63	61	81
Pb Blätter Fagus sylv	1,05	0,65	0,71	0,45	0,55	0,49	0,40	0,58	0,42	0,40	0,33	0,42	0,33	0,31

	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011
Pb Blätter Fagus sylv normiert (2005)	181	111	122	78	94	84	68	100	72	69	56	72	57	53
Pb Blätter P.pappel	2,22	1,52	0,93	0,83	0,62	0,65	0,55	0,50	0,56	0,52	0,46	0,60	0,63	0,43
Pb Blätter P.pappel normiert (2005)	443	304	186	166	124	130	110	100	112	104	92	120	126	86
Pb einjährige Triebe Pic.abies	1,52	1,32	1,08	1,18	0,79	0,83	0,75	0,76	0,70	0,75	0,69	0,38	0,41	0,34
Pb einjährige Triebe Pic.abies normiert (2005)	200	174	141	155	103	109	98	100	92	99	91	49	54	44
Pb einjährige Triebe Pinus sylv.	1,16	1,13	0,84	0,73	0,58	0,82	0,70	0,59	0,57	0,51	0,47	0,48	0,46	0,53
Pb einjährige Triebe Pinus sylv. normiert (2005)	197	192	142	124	98	139	119	100	97	86	80	81	78	90

Anhang A2.9: Probenarten- und altersklassenspezifische Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cd- und Pb Nadel-/Blattspiegelwerten aus der Level-II-Datenbank und der mit LE und dem EMEP-Modell berechneten Cd- und Pb-Gesamtdeposition über Deutschland (Zeitraum 2007-2011)

Modell	Element	Probenart	Altersklasse	N	r _(k)	р
LE*	Cd	Quercus petraea	diesjährig	8	-0,07	0,90
LE*	Cd	Quercus robur	diesjährig	3	<0,01	1,00
LE*	Cd	Picea abies	diesjährig	23	0,18	0,27
LE*	Cd	Pinus sylvestris	diesjährig	27	0,43	<0,01
LE*	Cd	Fagus sylvatica	diesjährig	29	<0,01	0,93
LE*	Cd	Quercus petraea	vorjährig	2	1,00	1,00
LE*	Cd	Quercus robur	vorjährig	2	-1,00	1,00
LE*	Cd	Picea abies	vorjährig	14	0,21	0,39
LE*	Cd	Pinus sylvestris	vorjährig	25	0,40	0,01
LE*	Cd	Fagus sylvatica	vorjährig	3	0,33	1,00
LE*	Cd	Picea abies	zweijährig	13	0,12	0,59
LE*	Cd	Pinus sylvestris	zweijährig	22	0,37	0,01
LE*	Pb	Quercus petraea	diesjährig	8	0,18	0,72
LE*	Pb	Quercus robur	diesjährig	3	<0,01	1,00
LE*	Pb	Picea abies	diesjährig	23	-0,23	0,17
LE*	Pb	Pinus sylvestris	diesjährig	27	0,45	<0,01
LE*	Pb	Fagus sylvatica	diesjährig	29	0,30	0,02
LE*	Pb	Quercus petraea	vorjährig	2	1,00	1,00
LE*	Pb	Quercus robur	vorjährig	2	1,00	1,00
LE*	Pb	Picea abies	vorjährig	14	-0,03	1,00
LE*	Pb	Pinus sylvestris	vorjährig	25	0,48	<0,01
LE*	Pb	Fagus sylvatica	vorjährig	3	1,00	0,33
LE*	Pb	Picea abies	zweijährig	13	0,24	0,20
LE*	Pb	Pinus sylvestris	zweijährig	22	0,47	0,00
LE	Cd	Querc. rob. /-petraea	diesjährig	16	0,13	0,51
LE	Cd	Picea abies	diesjährig	33	0,24	0,05
LE	Cd	Pinus sylvestris	diesjährig	53	0,37	<0,01
LE	Cd	Fagus sylvatica	diesjährig	43	-0,03	0,74
LE	Cd	Querc. rob. /-petraea	vorjährig	4	-0,33	0,75
LE	Cd	Picea abies	vorjährig	27	0,15	0,30
LE	Cd	Pinus sylvestris	vorjährig	51	0,35	<0,01

Modell	Element	Probenart	Altersklasse	Ν	r (k)	р
LE	Cd	Fagus sylvatica	vorjährig	3	0,33	1,00
LE	Cd	Picea abies	zweijährig	17	0,23	0,20
LE	Cd	Pinus sylvestris	zweijährig	22	0,36	0,02
LE	Pb	Querc. rob. /-petraea	diesjährig	15	0,02	0,92
LE	Pb	Picea abies	diesjährig	31	0,04	0,71
LE	Pb	Pinus sylvestris	diesjährig	47	0,22	0,02
LE	Pb	Fagus sylvatica	diesjährig	36	0,22	0,07
LE	Pb	Querc. rob. /-petraea	vorjährig	4	0,33	0,75
LE	Pb	Picea abies	vorjährig	22	0,20	0,20
LE	Pb	Pinus sylvestris	vorjährig	45	0,20	0,04
LE	Pb	Fagus sylvatica	vorjährig	3	1,00	0,33
LE	Pb	Picea abies	zweijährig	15	0,58	0,01
LE	Pb	Pinus sylvestris	zweijährig	16	0,56	<0,01
EMEP	Cd	Querc. rob. /-petraea	diesjährig	16	-0,13	0,51
EMEP	Cd	Picea abies	diesjährig	33	0,27	0,02
EMEP	Cd	Pinus sylvestris	diesjährig	53	0,11	0,25
EMEP	Cd	Fagus sylvatica	diesjährig	43	0,19	0,08
EMEP	Cd	Querc. rob. /-petraea	vorjährig	4	0,67	0,33
EMEP	Cd	Picea abies	vorjährig	27	0,24	0,07
EMEP	Cd	Pinus sylvestris	vorjährig	51	0,09	0,35
EMEP	Cd	Fagus sylvatica	vorjährig	3	-0,33	1,00
EMEP	Cd	Picea abies	zweijährig	17	0,21	0,24
EMEP	Cd	Pinus sylvestris	zweijährig	22	0,02	0,91
EMEP	Pb	Querc. rob. /-petraea	diesjährig	15	0,57	<0,01
EMEP	Pb	Picea abies	diesjährig	31	0,34	0,01
EMEP	Pb	Pinus sylvestris	diesjährig	47	0,20	0,06
EMEP	Pb	Fagus sylvatica	diesjährig	36	0,37	<0,01
EMEP	Pb	Querc. rob. /-petraea	vorjährig	4	0,67	0,33
EMEP	Pb	Picea abies	vorjährig	22	0,11	0,47
EMEP	Pb	Pinus sylvestris	vorjährig	45	0,29	<0,01
EMEP	Pb	Fagus sylvatica	vorjährig	3	0,33	1,00
EMEP	Pb	Picea abies	zweijährig	15	0,44	0,05
EMEP	Pb	Pinus sylvestris	zweijährig	16	0,03	0,89

LE* = nutzungspezifische LE-Deposition

Anhang A2.10: Altersklassenspezifische Korrelationskoeffizienten (Kendall) für die Beziehung zwischen Cu- und Zn-Gehalten in Blättern/Nadeln (Quelle: Level II) und der mit LE berechneten Gesamtdeposition (Zeitraum 2009-2011)

Element	Probenart	Altersklasse	N _(LE)	r _(LE)	p (LE)
Cu	Picea abies	diesjährig	29	-0,04	0,78
Cu	Picea abies	vorjährig	25	-0,07	0,73
Cu	Picea abies	zweijährig	23	-0,11	0,46
Cu	Pinus sylvestris	diesjährig	28	0,32	0,02
Cu	Pinus sylvestris	vorjährig	27	0,41	<0,01
Cu	Pinus sylvestris	zweijährig	24	0,49	<0,01
Cu	Fagus sylvatica	diesjährig	33	0,04	0,72
Cu	Fagus sylvatica	vorjährig	3	1,00	0,33
Cu	Quercus robur	diesjährig	4	<0,01	1,00
Cu	Quercus robur	vorjährig	2	1,00	1,00
Cu	Quercus petraea	diesjährig	10	-0,29	0,29
Cu	Quercus petraea	vorjährig	2	1,00	1,00
Zn	Picea abies	diesjährig	39	<0,01	0,98
Zn	Picea abies	vorjährig	25	0,14	0,34
Zn	Picea abies	zweijährig	23	0,13	0,43
Zn	Picea abies	dreijährig	10	-0,47	0,07
Zn	Pinus sylvestris	diesjährig	28	0,30	0,02
Zn	Pinus sylvestris	vorjährig	27	0,41	<0,01
Zn	Pinus sylvestris	zweijährig	24	0,35	0,02
Zn	Fagus sylvatica	diesjährig	39	0,03	0,81
Zn	Fagus sylvatica	vorjährig	3	0,33	1,00
Zn	Quercus robur	diesjährig	4	0,33	0,75
Zn	Quercus robur	vorjährig	2	-1,00	1,00
Zn	Quercus petraea	diesjährig	10	-0,33	0,22
Zn	Quercus petraea	vorjährig	2	1,00	1,00

Anhang A2.11: Jahresmediane und auf das Jahr 2005 normierte Jahresmediane der Cd- und Pb-Gehalten in Blättern/Nadeln Level II und der mit dem EMEP-Modell berechneten Cdund Pb-Gesamtdeposition von 2002 bis 2010

	2002	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010
Cd EMEP	43,64	40,56	39,54	41,30	36,70	45,35	34,30	31,31	31,14
Cd EMEP normiert (2005)	106	98	96	100	89	110	83	76	75
Cd Picea abies	163,50	118,45		93,75	72,90	79,95	120,00	47,00	107,70
Cd Picea abies normiert (2005)	174	126		100	78	85	128	50	115
Cd Pinus sylv.		203,00	198,00	194,00	164,00	191,50	180,00	193,45	175,00
Cd Pinus sylv. normiert (2005)		105	102	100	85	99	93	100	90
Cd Fagus sylv.		71,02	53,00	69,00	49,00	88,50	105,00	54,75	76,17
Cd Fagus sylv. normiert (2005)		103	77	100	71	128	152	79	110
Cd Quercus petr.		70,00	39,00	70,30	62,85	79,17	38,67	61,52	55,60
Cd Quercus petr. normiert (2005)		100	55	100	89	113	55	88	79
Pb EMEP	1605,21	1602,07	1615,34	1660,33	1582,85	1649,47	1138,57	1045,74	1014,36
Pb EMEP normiert (2005)	97	96	97	100	95	99	69	63	61
Pb Picea abies	0,40	0,46		0,54	0,48	0,46	0,68	0,45	0,61
Pb Picea abies normiert (2005)	75	86		100	90	86	127	84	114
Pb Pinus sylv.	0,70	0,61	0,70	0,57	0,50	0,68	0,66	0,49	0,50
Pb Pinus sylv. normiert (2005)	123	106	123	100	87	118	116	86	88
Pb Fagus sylv.	0,42	0,40	1,82	0,35	0,49	0,42	0,59	0,26	0,65
Pb Fagus sylv. normiert (2005)	120	114	519	100	140	120	167	74	184
Pb Quercus petr.	0,20	0,35	0,73	0,27	0,41	0,68	0,34	0,16	0,52
Pb Quercus petr. normiert (2005)	74	130	270	100	150	250	126	59	193

Anhang A2.12:Residuenanalyse zum linearen Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der
Cd-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)



Anhang A2.13: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Cd-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)



Anhang A2.14:Residuenanalyse zum linearen Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der
Pb-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)



Anhang A2.15: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Pb-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)







Anhang A2.17: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der As-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)



Anhang A2.18:Residuenanalyse zum linearen Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der
Ni-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)



Anhang A2.19: Residuenanalyse zum transformierten Regressionsmodell durch Vergleich der Residuen mit der Ni-Gesamtdeposition aus LE (links) und normalverteilten Residuen im QQ-Plot (rechts)



ANHANG A3

Zu Teilbericht 2:

Erheblichkeitsbeurteilung

INHALT

- A3.1: Methodik der Literaturrecherche
- A3.2: Abschätzung der Ackerfruchtfolgen entsprechend guter fachlicher Praxis auf den Bodeneinheiten der BÜK1000N sowie die Anbauflächenverteilung der Fruchtfolgeglieder
- A3.3: Critical-Load-Überschreitung mit Blei-Gesamtdepositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität im Jahr 2010
- A3.4: Critical-Load-Überschreitung mit Blei-Gesamtdepositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Trinkwasser im Jahr 2010
- A3.5: Critical-Load-Überschreitung mit Kupfer-Gesamtdepositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität

Anhang A3.1: Methodik der Literaturrecherche

Stand: Juli 2016

Zur Thematik "Risiken von Schwermetalleinträgen aus der Luft auf Ökosysteme und die menschliche Gesundheit" wurden bisher 91 Literaturquellen ausgewertet. Im Vordergrund stand die Suche nach derzeit aktuellen Quellen über Schwermetalle und ihre Auswirkungen. So sind vorrangig Publikationen ab dem Jahr 2000 bis 2015, teilweise aus den 1990 Jahren und im geringen Teil von 1989 und eine von 1972 in die Recherche einbezogen worden. Literaturquellen vor 1972 sind nicht betrachtet worden. In Tabelle 1 sind die untersuchten Datenbanken gelistet.

Name der Datenbank	Bemerkung
Biological Abstracts	Thomson Reuters Web of Science research platform
BIOSIS	Kombiniert den Inhalt der Biological Abstracts, der Biological Abstracts / RRM (Reports, Reviews, Meetings) und BioResearch Index
Chemical Abstracts	CAS-Registry-Datenbank
ChemIDplus A TOXNET DATABASE	Medizinische Bibliothek der USA. Toxikologische Eigenschaften nur auf Menschen und Tiere bezogen.
Web of science	Thomson Reuters
TOXicology Data NETwork (= TOXNET)	Meta-Datenbank aus den Bereichen Toxikologie, Gefahrstoffe, Umwelt- schutz. Bietet Zugriff auf u.a.: HSDB, TOXLINE, ChemIDplus.
OPAC, ULIDAT, UFORDAT	Umweltbundesamt, Fachbibliothek Umwelt.
Deutsche Institut für Medizi- nische Dokumentation und Information (DIMDI)	30 Datenbanken, u. a. BIOSIS Previews, EMBASE, EMBASE Alert, German Medical Science – Journals, German Medical Science – Meetings, MED- LINE, SciSearch
HU Berlin	Bibliothek
TU Berlin	Bibliothek
UBA Berlin	Bibliothek
Institut für Pflanzenbiologie der TU Braunschweig	Literaturdatenbank Vegetationsökologie
ZALF Müncheberg	Bibliothek

Tabelle 1: Datenbanken und Bibliotheken, die in die Recherche einbezogen wurden

Als Dokumententyp wurden insbesondere Veröffentlichungen zu Forschungsvorhaben von Instituten und Fachbehörden, Studien, Artikel in Fachzeitschriften, Gesetze, Verordnungen und Richtlinien des deutschen und europäischen Rechts, Tagungsbeiträge, Jahresberichte sowie Bücher ausgewertet. Die recherchierte Literatur stammt vorrangig aus dem mitteleuropäischen Raum.

Die betrachteten Literaturquellen wurden in die Datenbank "EndNote X6" unter dem Ordner Schwermetalle eingepflegt. Dazu wurden nicht nur alle Angaben u. a. zum Autor bzw. den Autoren, Erscheinungsjahr, Titel, Herausgeber und Erscheinungsort aufgenommen, sondern auch, wenn bekannt, Schlüsselwörter, Zusammenfassungen und Adressen der Autoren bzw. Institute oder Fachbehörden aufgeführt. Lag das Dokument in digitaler Form vor, wurde ein Link zur Datei erstellt, so dass die Quelle aus der Literaturdatenbank heraus aufgerufen werden kann.

Die ausgewerteten Quellen bezogen sich einerseits auf die Methodik zur Bestimmung und Berechnung von Schwermetallgehalten im Boden sowie zu kritischen Konzentrationen und Grenzwerten auch bezüglich des Trinkwassers und der Nahrung und andererseits auf die chemischen Eigenschaften, Stoffflüsse und Möglichkeiten der Aufnahme durch Tiere und Menschen. Die Hauptschwerpunkte der betrachteten Literatur lagen in den Auswirkungen von Schwermetallgehalten auf Bodenlebewesen, Pflanzen, Tiere und die Aufnahme durch den Menschen innerhalb der Nahrungskette. Dabei wurden die Effekte und Risiken für die einzelnen Schwermetalle der zu untersuchenden Gruppen dargelegt. Weiterhin wurden Unterscheidungen zwischen bedeutenden Spurenelementen für lebende OrganiSchwermetallen und Elementen ohne diesbezüglich bekannte Bedeutung getroffen sowie die entsprechenden Risiken dargelegt und bewertet.

Die umfassende Auswertung der Literatur ergab sich aus der Beachtung von Verweisen innerhalb einer Quelle auf weiterführende Literatur. Insbesondere die Fachliteratur zur Methodik über Bestimmungen und Berechnungen von Schwermetallgehalten und Grenzwerten beinhaltete entsprechende Verweise zu Quellen über Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit und die Ökosysteme. Eine der wichtigsten Primärquellen war Alloway (Ed., 2013).

Anhang A3.2: Abschätzung der Ackerfruchtfolgen entsprechend guter fachlicher Praxis auf den Bodeneinheiten der BÜK1000N sowie die Anbauflächenverteilung der Fruchtfolgeglieder

Bo-	Fruchtfolge nach	Anbau-Flächenverhältnisse							
den- ein- heit	guter fachlicher Praxis	Wei- zen	Rog- gen	Gerste	Rauh- futter	Beta- Rüben	Kar- toffeln	Öl- früchte	Silo- mais*
1	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
2									
3	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
4	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
5	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0.25		0.125	0.5	0.0625			0.0625
6	Rauhfutter	0,20		0,120		0,0020			0,0020
7	Rauhfutter				- 1				
8	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
9	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
10	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
11	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625

Bo-	Fruchtfolge nach	Anbau-Flächenverhältnisse								
den- ein- heit	guter fachlicher Praxis	Wei- zen	Rog- gen	Gerste	Rauh- futter	Beta- Rüben	Kar- toffeln	Öl- früchte	Silo- mais*	
12	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25		
13	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625	
14	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Boggon	0.125	0.125	0 125	0.275	0.0625	0.0625	0.0625	0.0625	
14	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,123	0,125	0,125	0,575	0,0625	0,0625	0,0025	0,0625	
16	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25		
17	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25		
18	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625	
19	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625	
20	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte,	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625	

6

Bo-	Fruchtfolge nach	Anbau-Flächenverhältnisse							
den- ein-	guter fachlicher Praxis	Wei-	Rog-	Gerste	Rauh-	Beta- Bübon	Kar-	Öl- früchte	Silo- mais*
heit		Zen	gen		Tutter	Kuben	tonem	nuchte	mais
	Roggen								
21	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
22	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
23	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
24	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
25	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
26	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
27	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
28	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
29	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
30	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
31	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
32	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte,	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625

7

Bo-	Fruchtfolge nach	Anbau-Flächenverhältnisse							
den- ein- beit	guter fachlicher Praxis	Wei- zen	Rog- gen	Gerste	Rauh- futter	Beta- Rüben	Kar- toffeln	Öl- früchte	Silo- mais*
nen	Roggen								
33	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
34	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
35	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
36	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
37	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
38	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
39									
40	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
41	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625

Bo-	Fruchtfolge nach guter fachlicher Praxis	Anbau-Flächenverhältnisse							
den- ein- heit		Wei- zen	Rog- gen	Gerste	Rauh- futter	Beta- Rüben	Kar- toffeln	Öl- früchte	Silo- mais*
42	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
43	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
44	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
45	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
46	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
47	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
48	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
49	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	

Bo- den- ein-	Fruchtfolge nach guter fachlicher Praxis	Anbau-Flächenverhältnisse							
		Wei- zen	Rog- gen	Gerste	Rauh- futter	Beta- Rüben	Kar- toffeln	Öl- früchte	Silo- mais*
heit	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0.125	0.125	0.125	0.375	0.0625	0.0625	0.0625	0.0625
51	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
52	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
53	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
54	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
55	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
56	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
57	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte,	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625

10
Bo- den- ein-	Fruchtfolge nach guter fachlicher Praxis	Anbau-Flächenverhältnisse							
		Wei-	Rog-	Gerste	Rauh-	Beta- Büben	Kar-	Öl- früchte	Silo- mais*
heit		2011	gen		Tutter	Nubell	tonem	nucince	mais
	Roggen								
58	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
59	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
60	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
61	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0,125	0,125	0,375	0,0625	0,0625	0,0625	0,0625
62	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
63	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
64	2xWeizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Beta- Rüben/Silomais, 2xRauhfutter	0,25		0,125	0,5	0,0625			0,0625
65	Weizen, 2xRauhfutter, Gers- te, Kartoffel/Beta- Rüben, Rauhfutter, Silomais/Ölfrüchte, Roggen	0,125	0.125	0,125	0,375	0.0625	0.0625	0,0625	0,0625
66	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125	-, -	0,125	0,5			0,25	
67	Weizen/ Gerste, 2xRauhfutter, Ölfrüchte	0,125		0,125	0,5			0,25	
68	Rauhfutter				1				

Bo-	Fruchtfolge nach guter fachlicher Praxis	Anbau-Flächenverhältnisse							
den- ein- heit		Wei- zen	Rog- gen	Gerste	Rauh- futter	Beta- Rüben	Kar- toffeln	Öl- früchte	Silo- mais*
69	Rauhfutter				1				
70	Roggen, Wei- zen/Gerste, 2xRauhfutter	0,125	0,25	0,125	0,5				
71	Rauhfutter				1				

* unter Silomais wird Energiemais, Grünmais und der Futter-Silomais zusammengefasst



Anhang A3.3: Critical-Load-Überschreitung mit Blei-Gesamtdepositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität im Jahr 2010







Anhang A5.5: Critical-Load-Überschreitung mit Kupfer-Gesamtdepositionen aus der Luft mit dem Schutzziel Ökosystemintegrität