

**Kronenraumbilanzen zur Abschätzung der  
Stickstoffgesamtdeposition in Waldökosysteme des  
Nationalparks Bayerischer Wald**



Integrated Monitoring Programm  
an der  
Messstelle Forellenbach  
im  
Nationalpark Bayerischer Wald

Projektnummer 24314

**Kronenraumbilanzen zur Abschätzung der Stickstoff-  
gesamtdeposition in Waldökosysteme des  
Nationalparks Bayerischer Wald**

von

Burkhard Beudert und Wilhelm Breit

Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald  
Sachgebiet IV

Im Auftrag des  
Umweltbundesamtes

Juni 2014

## **Inhaltsverzeichnis**

Inhaltsverzeichnis	1
Abbildungen und Tabellen	2
1 Einleitung	3
2 Standort und Methoden	4
2.1 Messplätze und Untersuchungsbestände	4
2.3 Verfahren zur Abschätzung der Gesamtdeposition von reaktiven Stickstoffverbindungen - Kronenraumbilanzen	6
3 Gemessene Einträge des anorganischen Stickstoffs	10
4 Kronenraumbilanzen für die Dauerbeobachtungsflächen	12
4.1 Buchenbestand B1	12
4.2 Fichtenbestand F1	16
4.3 Zeitreihen der Stickstoffgesamtdeposition	19
5 Saisonale Kronenraumbilanzen für Hochlagenfichtenbestände am Großen Falkenstein	21
5.1 Wasser- und Stickstoffeinträge	21
5.2 Stickstoffgesamtdepositionen	23
5.3 Freilanddeposition: Wet-only- versus Bulk-Sammler	25
6 Gesamtdeposition des reaktiven Stickstoffs im Inneren Bayerischen Wald - Diskussion der Ergebnisse und Modellannahmen	26
6.1 Schätzwerte der DIN-Gesamtdeposition	26
6.2 Schlüsselmechanismen der Modellansätze	27
6.3 Retention im Kronenraum	28
6.4 DIN-Konversion und DON-Deposition	29
7 Zusammenfassung	32
Literatur	35
Anhang	39

## Abbildungen und Tabellen

Abb. 1:	Einträge des gelösten anorganischen Stickstoffs (DIN) im Freiland und mit der Kronentraufe unter Buche (Bestand B1) und Fichte (Bestand F1 bis 1996, F4 ab 2003). .....	10
Abb. 2:	Trockendepositionsfaktoren DDF ( $\text{Na}^+$ ) für den Buchenbestand B1, berechnet aus jährlichen und über drei Jahre gemittelten Stoffeinträgen (3J-GM). .....	12
Abb. 3:	Jährliche Trockendepositionsfaktoren DDF für $\text{Na}^+$ und $\text{SO}_4^{2-}$ im Buchenbestand B1 (gleitende Mittel über drei Jahre, links) sowie Mittelwerte ( $\pm s$ ) der DDF von $\text{Na}^+$ , $\text{Cl}^-$ und $\text{SO}_4^{2-}$ für die Teilzeiträume 1993 - 2002 und 2003 - 2012. ....	13
Abb. 4:	Jährliche Flüsse von $\text{K}^+$ , $\text{Ca}^{2+}$ und $\text{Mg}^{2+}$ (BC) mit dem Bestandesniederschlag unter Buche B1, differenziert nach Trockendeposition und Leaching (links), und ihre mittleren Anteile ( $\pm s$ ) an der Summe geleachter Ionen in den Teilzeiträumen 1993 - 2002 und 2003 - 2012 (rechts). ....	13
Abb. 5:	Trockendepositionsfaktoren DDF ( $\text{Na}^+$ ) für den Fichtenbestand F1, berechnet aus jährlichen und über drei Jahre gemittelten Stoffeinträgen (3J-GM). ....	16
Abb. 6:	Jährliche Flüsse von $\text{K}^+$ , $\text{Ca}^{2+}$ und $\text{Mg}^{2+}$ (BC) mit dem Kronendurchlass unter Fichte F4, differenziert nach Trockendeposition und Leaching (links), und ihre mittleren Anteile ( $\pm s$ ) an der Summe geleachter Ionen im Zeitraum 2003 - 2012 (rechts). ....	17
Abb. 7:	Jährliche N-Gesamtdeposition in den Buchenbestand B1. ....	19
Abb. 8:	Jährliche N-Gesamtdeposition in den Fichtenbestand F4. ....	20
Abb. 9:	Höhengradienten des Niederschlags (links) und des Stickstoffeintrags ( $\text{TN}_b$ , rechts) in Freiland und Bestand vom 10.07. und 27.11.2012. ....	21
Abb. 10:	Niederschlagssummen (oben) und Stickstoffflüsse (unten) im Freiland und unter Fichte am Großen Falkenstein vom 05.05.-27.11.2012 (BEUDERT u. BREIT 2013). ....	22
Abb. 11:	Gesamtdepositionsraten für DIN im Fichtenbestand am Ruckwiesberg, differenziert nach Freiland- (Bulk) und Trockendeposition (DD). ....	23
Abb. 12:	Gesamtdepositionsraten für DIN im Fichtenbestand am Großen Falkenstein, differenziert nach Freiland- (Wet-only) und Trockendeposition (DD). ....	24
Abb. 13:	Mittlere Deposition des analytischen Gesamtstickstoffs ( $\text{TN}_b$ ) mit dem Freiland- und Bestandesniederschlag in den Jahren 2003 bis 2012, getrennt nach DIN und DON. ....	30
Tab. 1:	Position und Ausstattung der Messplätze und Untersuchungsbestände im Depositionsmessprogramm. ....	4
Tab. 2:	Waldwachstumskundliche Charakterisierung der Untersuchungsbestände. ....	5
Tab. 3:	Einträge anorganischer Stickstoffverbindungen im Freiland und in den Beständen und ihre Kronendachdifferenzen (Eintrag Bestand – Eintrag Freiland). ....	11
Tab. 4:	Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD) und im Bestand (TF+SF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen (BC) und Kronendachdifferenzen KDD für DON im Buchenbestand B1. ....	15
Tab. 5:	Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD) und im Bestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON im Fichtenbestand F4. ....	18
Tab. 6:	Quotienten der Depositionsflüsse in Wet-only- und Bulk-Sammlern (Bulk/Wet-only bzw. Wet-only/Bulk) am Großen Falkenstein in der Periode 07.05.-19.11.2013. ....	25
Tab. 7:	Gemessene DIN-Einträge in Freiland und Bestand und berechnete Trockendeposition (DD), Rückhalt in der Krone (CU) und Gesamtdeposition (TD). ....	26
Tab. 8:	DOC/DON-Quotienten im Stoffeintrag aus der Atmosphäre (2003 - 2012) und C/N-Verhältnisse in Buchenblättern (B1, 2003 - 2012) und Fichtennadeln unterschiedlichen Alters (F1, 1995). ....	31

# 1 Einleitung

Die Stickstoffemissionen und -immissionen sind in Mitteleuropa in den letzten 20 Jahren zurückgegangen, weil gute Erfolge bei der Vermeidung oxidierter Stickstoffverbindungen (-50% seit 1990) erzielt werden konnten, wohingegen die Ammoniakemissionen v. a. aus der Tierhaltung nahezu unverändert geblieben sind (UBA 2013). Die Risiken hoher Stickstoffeinträge liegen v. a. in der Eutrophierung, die zu Veränderungen im Arteninventar der Biozöosen und in der Biodiversität führen kann (BOBBINK and HETTELINGH 2011) und in der Nitratbefruchtung der Grundwässer bei Übersättigung der Böden (KIESE et al. 2011).

Zur Risikoabschätzung für Ökosysteme wurde das Konzept der kritischen Stoffeinträge (UN ECE 1996) entwickelt: werden diese dauerhaft überschritten, ist mit nachteiligen Wirkungen im Ökosystem und mit Veränderungen der Ökosystemfunktionen zu rechnen. Für die Fichten- und Buchenwälder des Forellenbachgebiets entsprechen die standortsspezifischen kritischen Einträge von 10 - 15 kg N/ha/a (BEUDERT und BREIT 2004) den empirischen kritischen Einträgen für die verschiedenen Rezeptorengruppen in diesen Wäldern (BOBBINK and HETTELINGH 2011).

Überschreitungen dieser kritischen Belastungen können jedoch nur festgestellt werden, wenn die Einträge als solche hinreichend genau quantifiziert werden können. Dieses Ansinnen kann aufgrund der stofflichen Eigenschaften des Stickstoffs, seines Auftretens in organischen und anorganischen Verbindungen, der vielfältigen Transportwege in verschiedenen physikalischen Phasen und seiner Umsetzungen in den Ökosystemkompartimenten nicht allein messend erreicht werden.

In Monitoringprogrammen wie dem ICP Integrated Monitoring oder ICP Forest werden überwiegend Kronenbilanzverfahren auf der Basis von Kronendurchlass (und Stammablauf) und Niederschlagsdeposition im Freiland genutzt (DE VRIES et al 2003), um die schwierig zu messende trockene Deposition abzuschätzen. Die routinemäßige Messung mikrometeorologischer und stofflicher Eingangsgrößen für die inferentielle Modellierung (ZHANG et al. 2002, ZIMMERMANN et al. 2006) ist für große Messnetze nicht realisierbar. Darüber hinaus betragen die Ergebnisunterschiede zwischen verschiedenen inferentiellen Modellen an einem Standort durchaus ein Mehrfaches der Ergebnisse, sodass sie größer als die Differenzen zwischen Standorten sein können (FLECHARD et al. 2011). Kronenbilanzverfahren liefern zusätzlich Auskünfte über Prozesse im Inneren der Bestände, etwa über die Aufnahme oder das Auswaschen von Stoffen im Kronenraum oder ihre Umwandlung (FERM und HULTBERG 1999).

In der vorliegenden Bearbeitung werden verschiedene Ansätze zur Abschätzung der Gesamtdosition und ihrer Teilprozesse auf die langjährigen Datensätze der Untersuchungsbestände des Forellenbachgebietes (Buche B1, Fichte F4) und auf die saisonalen Erhebungen an Hochlagenstandorten des Großen Falkensteinmassivs (2012, 2013) angewendet. Ziel ist die Abschätzung plausibler mittlerer und maximaler atmosphärischer Einträge an reaktivem Stickstoff in die verschiedenen Ökosysteme.

## 2 Standort und Methoden

Die nachfolgenden Ausführungen zu Versuchsaufbau und Standorten sowie zu den angewandten Methoden sollen einen orientierenden Überblick über die durchgeführten Depositionsmessprogramme des Integrierten Monitoring Programms im Nationalpark Bayerischer Wald verschaffen. Detaillierte Angaben zu den Depositionsmessungen am Standort Forellenbach sind in BEUDERT et al. (1994, 2004) enthalten, zum Untersuchungsdesign des Sonderprogramms am Großen Falkenstein in BEUDERT und BREIT (2012, 2013).

### 2.1 Messplätze und Untersuchungsbestände

Die Messplätze in Unterhanglage im Forellenbachgebiet (770 - 820 m ü. NN) sind seit Aufnahme der Messungen im Jahr 1990 im Freiland ( $n = 3$ ) und den Beständen ( $n = 15$  bzw. 10) mit Bulk-Sammlern ausgestattet (Tab. 1). Die Ausstattung in Oberhanglage am Ruckwiesberg (1192 - 1200 m ü. NN) und am Gipfel des Großen Falkenstein (1300 - 1310 m ü. NN) ist bezüglich des Sammlertyps grundsätzlich identisch, wurde jedoch um einen Wet-only-Sammler auf dem Gipfelplateau ergänzt, um das Ausmaß der trockenen Deposition im Freiland abschätzen zu können.

Tab. 1: Position und Ausstattung der Messplätze und Untersuchungsbestände im Depositionsmessprogramm.

Art	Messplatz	Höhe ü. NN m	Position (Gauss-Krüger)		Depositionssammler	
			Rechts	Hoch	Typ	Anzahl
Freiland	Taferlruck DC3	770	4603611	5423153	Bulk	3
Bestand Buche	Schachtenebene B1	820	4604379	5424458	Bulk	15
Bestand Fichte	Weitau F4	787	4604044	5423738	Bulk	10
Freiland	Ruckwiesberg	1192	4593585	5440271	Bulk	1
Freiland	Großer Falkenstein	1308	4593645	5439472	Bulk	1
Freiland	Großer Falkenstein	1308	4593649	5439476	Wet-only	1
Bestand Fichte	Ruckwiesberg	1200	4593585	5440271	Bulk	5
Bestand Fichte	Großer Falkenstein Nord	1310	4593627	5439493	Bulk	3
Bestand Fichte	Großer Falkenstein Süd	1306	4593702	5439422	Bulk	5

Die waldwachstumskundliche Charakterisierung der untersuchten Bestände im Depositionsmessprogramm ist in Tabelle 2 (s. u.) aufgeführt. Der Buchenbestand B1 (820 m ü. NN) hat im Vergleich zu allen Fichtenbeständen geringere Brusthöhendurchmesser und insgesamt kleinere Grundflächen- und Holzvolumenvorräte (390 Vfm/ha). Die sehr eng benachbarten Fichtenbestände am Großen Falkenstein ( $> 1300$  m ü. NN) weisen mit 552 (Nord) und 728 Vfm/ha (Süd) deutlich voneinander abweichende Vorräte auf. Diese resultieren bei höheren Stammzahlen ( $n = 346$ /ha) aus den geringeren Stammdimensionen im Bestand Nord gegenüber Bestand Süd ( $n = 280$ /ha). Die niedri-

geren Baumhöhen ( $h_g = 23$  m versus 27 m) deuten auf stärkere Exponiertheit gegenüber Winden und Schneebeifrachtung, den wesentlichen Ursachen für Wipfelbrüche, hin.

Bei gleicher Stammzahl (350/ha) wie Falkenstein Nord erreicht der tiefgelegene Fichtenbestand Weitau (787 m ü. NN) doppelt so große Holzvorräte (1099 Vfm/ha). Sie werden durch mächtigere Baumdimensionen erzeugt. Die wesentlich größeren mittleren Baumhöhen ( $h_g = 33$  m versus 23 m) und die noch markanteren Unterschiede bei den Oberhöhen ( $h_{100} = 39$  m versus 25 m) sind Ausdruck der Standortgunst. Dies wird gestützt durch den Vergleich mit Falkenstein Süd, der einen identischen mittleren Brusthöhendurchmesser ( $d_g = 52$  cm), aber deutlich geringere Baumhöhen ( $h_g = 27$  m versus 33 m) aufweist.

Bei ähnlichen Holzvorräten von 727 Vfm/ha unterscheidet sich der Fichtenbestand in Oberhangposition am Ruckwiesberg (1200 m ü. NN) durch die mindestens doppelt so hohe Stammzahl (1060/ha) von den bereits vorgestellten Fichtenaltbeständen. Er kompensiert dadurch seine durchschnittlich geringeren Stammdimensionen.

Hinsichtlich ihrer Eigenschaften als Rezeptor für Wasser sowie Gase und Partikel dürften sich die gut benadelten Fichtenbestände einander ähnlich sein: im Vergleich zu den beständen Weitau und Falkenstein Süd weist der geringer dimensionierte Bestand Falkenstein Nord ein bis zum Boden reichende Bestattung und Benadelung auf, während der jüngere Bestand am Ruckwiesberg über die hohe Stammzahl eine entsprechende Kronendichte erreicht.

Tab. 2: Waldwachstumskundliche Charakterisierung der Untersuchungsbestände. G und V kennzeichnen Stammgrundfläche und Stammholzvolumen,  $h_g$  und  $h_{100}$  bzw.  $d_g$  und  $d_{100}$  mittlere Höhen und mittlere Durchmesser des Grundflächenmittelstamms bzw. der hundert stärksten Bäume pro Hektar.

Bestand	Baumart	N (/ha)	$h_{100}$ (m)	$d_{100}$ (cm)	$h_g$ (m)	$d_g$ (cm)	G (m <sup>2</sup> /ha)	V (Vfm/ha)
Schachtenebene B1	Buche	487	28	40	24	28	30	390
Weitau F4	Fichte	350	39	77	33	52	74	1099
Großer Falkenstein Nord	Fichte	346	25	54	23	43	51	552
Großer Falkenstein Süd	Fichte	280	29	61	27	52	61	728
Ruckwiesberg	Fichte	1060	25	47	19	30	74	727

## 2.2 Probenahme und Probenaufbereitung, Analytik

Die Deposition wird über LWF- und LÖLF-Sammler (im Winter) mit einer Auffangfläche von jeweils 321 cm<sup>2</sup> erfasst. Die Höhe der Auffangfläche ist bei allen Sammlern 1,25 m über Bodenoberfläche, beim Wet-only-Sammler (Fa. Eigenbrodt) in 2 m Höhe. Alle Sammelgefäße werden wöchentlich geleert und gereinigt (mechanisch, Aqua dest.). An den Messplätzen im Forellenbachgebiet (Taferlruck, Weitau, Schachtenebene) wurden die Proben jeweils zu einer Sammelprobe pro Messplatz und Woche vereinigt. An den Messplätzen des Großen Falkensteinmassivs wurden die Proben der Sammler getrennt analysiert. Die Niederschlagsmenge wurde gravimetrisch bestimmt.

Elektrische Leitfähigkeit und pH-Wert wurden an allen Proben am Tag nach der Probenahme mit Handmessgeräten (Firma WTW, inoLab level 3) ermittelt. Die Proben für die hydrochemische Analyse wurden nach der Membranfiltration (< 0,45 µm) ohne chemische Konservierung bei 2°C - 4°C bis zur Analyse gelagert. Bis 2006 wurden Teilproben für die Kationenbestimmung mit HNO<sub>3</sub> suprapur auf pH < 2 angesäuert. Seit 2007 erfolgt die chemische Analyse aus einer einzigen Probe, deren Stabilität über eine durchgehende Kühlkette gewährleistet wird, die auch den Transport ins Labor im vierwöchigen Rhythmus einschließt.

Die Analyse wässriger Proben erfolgte bis 2001 durch die Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), danach bis 2006 im Umweltbundesamt, Außenstelle Langen. Seit 2007 analysiert die Bayerische Landesanstalt für Wald und Forstwirtschaft (LWF) mit den aufgeführten Verfahren:

Ca, K, Mg, Na, Al, Fe, Mn, SiO <sub>2</sub>	ICP - AES nach DIN 38406 Teil 22
SO <sub>4</sub> , NO <sub>3</sub> , PO <sub>4</sub> , Cl	IC nach DIN 38405 Teil 19
NH <sub>4</sub>	Spektralphotometrie nach DIN 38406 Teil 5
TN <sub>b</sub>	Gesamtstickstoff; Elementaranalyse (DIN 38409-27, EN 12260)
DOC	Elementaranalyse / UV-Oxidation (DIN EN 1484)

Alle drei Labors führen Qualitätssicherungsmaßnahmen durch und beteiligen sich an Ringanalysen von ICP Waters und ICP Forests. Die Analysequalität wird über Doppelanalysen und Ionenäquivalentbilanzen abgeschätzt.

### **2.3 Verfahren zur Abschätzung der Gesamtdeposition von reaktiven Stickstoffverbindungen - Kronenraumbilanzen**

Beginnend mit ULRICH (1983) wurden verschiedene Kronenbilanz- bzw. Kronenaustauschmodelle entwickelt, um fundierte Schätzwerte auch für die Gesamtdeposition von anorganischen Stickstoffverbindungen zu gewinnen. Stickstoffverbindungen entziehen sich aufgrund ihres Vorkommens in oxidiert und reduzierter Form sowohl in der Gas- und Partikelphase als auch in wässriger Lösung einer direkten Erfassung. Sie sind zudem Gegenstand permanenter Umwandlung durch physikalische und biologische Prozesse, u. a. auch in organische Verbindungen, die häufig nicht im Parameterumfang von Depositionsmessungen oder Monitoringprogrammen gewesen sind.

In der vorliegenden Arbeit werden das Modell von DRAIJERS & ERISMAN (1995, Modell 1), das zur Auswertung im UNECE ICP Forests Manual (2010) empfohlen wird, und das Modell von DE VRIES et al. (2003, Modell 2) jahresweise auf die Depositionsmessungen im Forellenbachgebiet der Jahre 1993 - 2012 angewendet. Der wesentliche Unterschied zwischen ihnen ist die Herleitung der Aufnahme des reduzierten Stickstoffs im Kronenraum, welche die Raten der trockenen Deposition und der Gesamtdeposition verändern kann. Die aggregierten Ergebnisse über den Teilzeitraum



2003 – 2012 werden mit den Ergebnissen bei Nutzung variierteter Eingangsparameter (vgl. STAELENS et al. 2008) und Ergebnissen vereinfachter Schätzverfahren nach LANGUSCH et al. (2003, Modell 3) und KOPACEK et al. (2009, Modell 4) verglichen. Die zentrale Fragestellung ist, ob und gegebenenfalls unter welchen Bedingungen sie verlässliche Schätzwerte der Gesamtdeposition von anorganischen Stickstoffverbindungen liefern können.

Die im weiteren Text verwendeten Abkürzungen verschiedener Prozesse, Flüsse und Parameter folgen der Nomenklatur von STAELENS et al. (2008). Die Modelle von DRAIJERS & ERISMAN (1995, Modell 1) und von DE VRIES et al. (2003, Modell 2) basieren auf der Annahme, dass bei  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  kein Austausch im Kronenraum CE stattfindet, bei diesen Ionen also weder die Aufnahme in pflanzliches Gewebe noch ein Leaching aus ihnen stattfindet.

Vorab sind wesentliche Begriffe zu klären, die je nach Ausstattung eines Depositionsmonitorings und/oder der verwendeten Auswertungsansätze mit unterschiedlichen Begriffsinhalten besetzt sind.

Niederschlagsdeposition PD bzw. Freilanddeposition enthält fast ausschließlich nass mit Niederschlägen deponierte Stoffmengen, wenn zur Erfassung Wet-only-Sammler verwendet werden, die in niederschlagsfreien Zeiten geschlossen sind. Werden dauerhaft geöffnete Bulk-Sammler eingesetzt, enthält die so erfasste Deposition zusätzlich sedimentierte trockene Bestandteile (anorganische und organische Stäube). Sie wird wie in den meisten Depositionsmessnetzen ebenfalls als Niederschlagsdeposition PD bezeichnet. In Abschnitt 5 werden Ergebnisse aus kurzzeitig parallel betriebenen Messungen mit Bulk- und Wet-only-Sammlern miteinander verglichen und deren Einfluss auf die Höhe der Gesamtdeposition von reaktiven Stickstoffverbindungen untersucht.

Der Begriff der ‚trockenen Deposition‘ DD muss für die vorliegende Ausarbeitung ebenfalls geklärt werden. Sie kennzeichnet nach MÖLLER (2003) in Abgrenzung zur Sedimentation die „Sorption von Substanz an der Erdoberfläche und einen dadurch ausgelöst – vertikal nach unten gerichteten – Transportprozess“. Wie in Kap. 5 gezeigt werden wird (siehe auch BEUDERT und BREIT 2013), spielt der Eintrag von Nebel- und Wolkenröpfchen durch Impaktion an Bestandesoberflächen, der auch als feuchte Deposition gekennzeichnet wird, in den untersuchten Hochlagenfichtenwäldern am Großen Falkenstein eine quantitativ durchaus bedeutsame Rolle (BEUDERT und BREIT 2012). Operationell wird die feuchte Deposition, weil sie messtechnisch schwer fassbar ist, wahlweise der trockenen oder nassen Deposition zugeordnet. Insofern ist die Verwendung des Begriffs „trockene Deposition“ für die gesamte rezeptorabhängige Deposition unscharf und missverständlich; bei Abwesenheit nennenswerter horizontaler Einträge von Wasser und darin gelösten Stoffen wie auf den Dauerbeobachtungsflächen des Integrierten Monitorings, ist trockene Deposition jedoch ein geeigneter Begriff. Aus Gründen der Konsistenz in der Verwendung der Nomenklatur wird der Begriff der trockenen Deposition DD nachfolgend in dem Sinn verwendet, dass er bei Vorliegen von feuchter Deposition diese integriert. Trockene Deposition entspricht so der Interzeptionsdeposition ID, die den gesamten rezeptorabhängigen Eintrag von Stoffen in die Wälder ungeachtet ihres Aggregatzustandes kennzeichnet.

Die Differenz zwischen der Deposition mit Kronendurchlass und Stammablauf TF+SF und der Freilanddeposition PD, die als Nettodeposition im Bestand NTF oder Kronendachdifferenz KDD bezeichnet wird, wird der trockenen Deposition DD und gegebenenfalls dem Austausch dieser Ionen in der Krone CE zugerechnet:

$$\text{NTF} = \text{TF} + \text{SF} - \text{PD} = \text{DD} (+ \text{CE}) \quad (1)$$

Als Tracer, über den sich die Interzeptionsdeposition DD und die Auswaschung CL (= CE) von  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$ , die gegen  $\text{H}^+$  und  $\text{NH}_4^+$  im Kronenraum ausgetauscht werden, voneinander trennen lassen, wird, wie schon bei ULRICH (1983),  $\text{Na}^+$  verwendet, dessen inertes Verhalten im Kronenraum in einer Reihe von Untersuchungen belegt worden ist (Zusammenstellung in UNECE ICP Forests Manual 2010). Die Eignung von  $\text{Cl}^-$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  als Tracer für diesen Zweck wurde ebenso getestet. Die Anreicherung von  $\text{Na}^+$  im Bestandesniederschlag gegenüber dem Freilandniederschlag wird als Trocken-depositionsfaktor DDF verwendet:

$$\text{DDF} = \text{NTF}_{\text{Na}} / \text{PD}_{\text{Na}} \quad (2)$$

Die trockene Deposition für  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$  errechnet sich aus (3), die Auswaschung CL dieser Ionen nach (4):

$$\text{DD} = \text{DDF} * \text{PD} \quad (3)$$

$$\text{CL} = \text{NTF} - \text{DD} \quad (4)$$

Bis zu diesem Punkt unterscheiden sich beide Modelle nicht. Der wesentliche Unterschied liegt in der Ermittlung der Aufnahme bzw. des Rückhalts von  $\text{H}^+$  und  $\text{NH}_4^+$  im Kronenraum. Während im Modell 2 die Aufnahme äquivalent dem Leaching  $\text{CL}_{\text{BC}}$  der basisch wirkenden Kationen  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$  ist (5), werden im Modell 1 nur die nicht durch schwache organische und anorganische Säuren WA begleiteten Kationen (6) berücksichtigt (weitere Algorithmen siehe UNECE ICP Forests Manual 2010):

$$\text{CU}_{\text{NH}_4+\text{H}} = \text{CL}_{\text{BC}} \quad (5)$$

$$\text{CU}_{\text{NH}_4+\text{H}} = \text{CL}_{\text{BC}} - \text{CL}_{\text{WA}} \quad (6)$$

Die Herleitung des  $\text{NH}_4^+$ -Rückhalts im Wettbewerb mit  $\text{H}^+$  erfolgt bei beiden Modellen (Modell 1a, 2a) übereinstimmend nach dem Ansatz von VAN DER MAAS et al. (1991, zit. in UNECE ICP Forests Manual 2010), wonach die Austauschaktivität von  $\text{H}^+$  (xH) sechsfach größer als von  $\text{NH}_4^+$  ist (7, 8):

$$\text{CU}_{\text{NH}_4} = \text{CL}_{\text{BC}} * (\text{TF} + \text{SF})_{\text{NH}_4} / ((\text{TF} + \text{SF})_{\text{NH}_4} + \text{xH} * (\text{TF} + \text{SF})_{\text{H}}) \quad (7)$$

$$\text{CU}_{\text{H}} = \text{CU}_{\text{NH}_4+\text{H}} - \text{CU}_{\text{NH}_4} \quad (8)$$

Der Wert für die Austauschaktivität von  $\text{H}^+$  wird in den Modellvarianten 1b und 2b zudem von  $\text{xH} = 6$  auf  $\text{xH} = 1$  variiert (DE SCHRIJVER et al. 2004), um die quantitativen Effekte auf den Rückhalt von  $\text{NH}_4^+$  zu testen.

Die Gesamtdeposition von  $\text{NH}_4^+$  ( $\text{TD}_{\text{NH}_4}$ ) errechnet sich dann als Summe aus Rückhalt und Eintrag im Bestand (9), die trockene Deposition als Differenz aus Gesamtdeposition und Niederschlagsdeposition (10):

$$TD_{NH_4} = (TF+SF)_{NH_4} + CU_{NH_4} \quad (9)$$

$$DD_{NH_4} = TD_{NH_4} - PD_{NH_4} \quad (10)$$

LANGUSCH et al. (2003, Modell 3) folgen ULRICH (1983) und berücksichtigten bei der Ermittlung der Gesamtdeposition von anorganischen Stickstoffverbindungen nur die partikuläre Interzeptionsdeposition und nutzen hierfür ebenfalls den Trockendepositionsfaktor von  $Na^+$  (2); die gasförmige Interzeptionsdeposition wird wegen des nicht unerheblichen, jedoch unbekanntem Rückhalts im Kronenraum nicht bearbeitet.

KOPACEK et al. (2009, Modell 4) ermittelten für Fichtenwälder über den gesamten Höhengradienten des westböhmisches Sumava einen empirischen Rückhalt des  $NH_4^+$  im Kronenraum von 22% der Gesamtdeposition TD (11):

$$TD = (TF+SF) / 0,78 \quad (11)$$

Die Senkenfunktion des Kronenraums ordneten sie der mikrobiellen Transformation des eingetragenen  $NH_4^+$  in gelöste organische Stickstoffverbindungen (DON) zu (FERM & HULTBERG 1999). Für  $NO_3^-$  wird auch in diesem regionalen Ansatz der Fluss mit der Kronentraufe als Gesamtdeposition gesetzt.

### 2.3 Statistik

Für die Trendberechnung wurde das parameterfreie Verfahren nach SEN verwendet, das die Trendgröße aus dem Median der Steigungsfaktoren aller möglichen Datenpaare eines Datensatzes bestimmt. Die Signifikanz der so berechneten Trends wurde mit dem Verfahren nach MANN-KENDALL geprüft, das zusammen mit der Trendberechnung als EXCEL-Vorlage (MÄÄTTÄ et al. 2002) zur Verfügung stand.

### 3 Gemessene Einträge des anorganischen Stickstoffs

Nach den deutlichen Rückgängen der DIN-Depositionen im Untersuchungsgebiet bereits Ende der 1980er Jahre (BEUDERT und BREIT 2013), war die weitere Verringerung seit 1991 nur noch gering. Die DIN-Einträge im Freiland weisen zwar seit 1991 einen signifikanten rückläufigen Trend von -0,16 kg/ha/a auf (Abb. 1), variieren jedoch seit 1996 in einem engen Korridor von 8 - 12 kg N/ha/a. Dieser Befund ist in gleicher Weise für die rezeptorabhängigen Einträge unter Buche und Fichte gültig, die sich im selben Wertekorridor befinden, wobei die Einträge im Freiland nicht selten größer als die Einträge unter Krone sind. Dies ist ein verbreitetes Phänomen in nur schwach mit Stickstoff belasteten Regionen Europas (MUSTAJÄRVI et al. 2008).

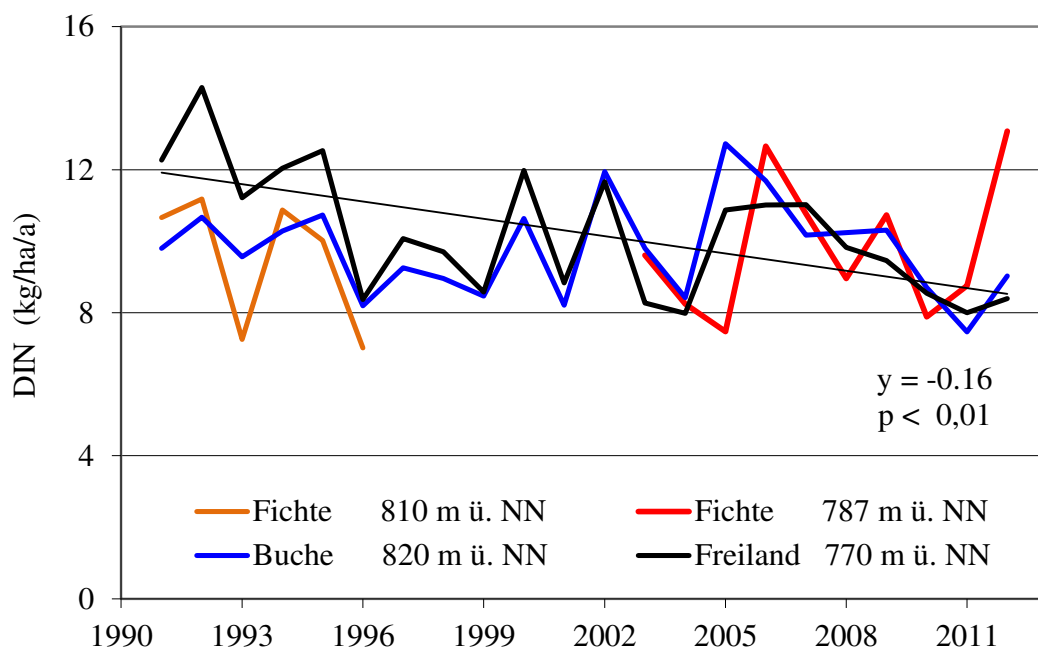


Abb. 1: Einträge des gelösten anorganischen Stickstoffs (DIN) im Freiland und mit der Kronentraufe unter Buche (Bestand B1) und Fichte (Bestand F1 bis 1996, F4 ab 2003).

Im Zeitraum von 2003 bis 2012, der für alle Messplätze einen vollständigen, zusammenhängenden Datensatz aufweist (Tab. 3, s. u.), lag der DIN-Eintrag im Freiland mit 9,3 kg N/ha/a ( $\pm 1,3$ ) unter dem Ergebnis der Dekade zuvor mit 10,5 N kg/ha/a ( $\pm 2,5$ ). Die Eintragungssituation unter Buche B1 ist seit Beginn der Messungen unverändert (Tab. 3, s. u.); im Zeitraum 2003 bis 2012 lag der DIN-Eintrag bei 9,8 kg N/ha/a ( $\pm 1,6$ ), in der Dekade zuvor bei 9,6 kg/ha/a ( $\pm 0,8$ ). Die Einträge unter Fichte F4 und Buche B1 sind seit 2003 im Mittel mit 9,8 kg N/ha/a ( $\pm 1,9$  bzw.  $\pm 1,6$ ) identisch. Bemerkenswert ist zudem, dass die DIN-Einträge unter Fichte und im Freiland Veränderungen zwischen aufeinanderfolgenden Jahren aufweisen, die in Richtung (2005, 2006) und Betrag (2005, 2012) deutlich voneinander abweichen können. Derart nicht synchrone Variationen im Eintrag sind zwischen Buchenbestand und Freiland sel-

ten. Es ist wahrscheinlich, dass der ganzjährig benadelte Fichtenbestand sowohl physikalisch als auch biologisch stärker mit den Depositionen interagiert und sie verändert. Insgesamt ergibt sich zunächst der Befund, dass die DIN-Einträge in den Untersuchungsbeständen um 0,5 kg/ha/a höher sind als im Freiland, wobei die Unterschiede statistisch nicht signifikant sind. Interzeptionsgewinne werden somit nicht über als große Kronendachdifferenzen angezeigt. Dies muss jedoch nicht bedeuten, dass rezeptorabhängige Depositionsprozesse im Forellenbachgebiet unbedeutend sind.

Im Freiland lieferten die anorganischen Verbindungen in beiden Teilzeiträumen gleiche Anteile am Stickstoffeintrag (Tab. 3). Die Kronendachdifferenzen machen deutlich, dass die Beiträge der DIN-Komponenten im Bestandesniederschlag einer Verschiebung unterliegen, die unter Fichte stärker als unter Buche ausgeprägt ist. Während der mittlere Fluss des  $\text{NH}_4\text{-N}$  unter Buche und Fichte um 0,3 bzw. 1,0 kg/ha/a reduziert ist, steigt der Fluss des  $\text{NO}_3\text{-N}$  um 0,8 bzw. 1,5 kg/ha/a an. Der Anteil des  $\text{NH}_4\text{-N}$  verringert sich damit zugunsten des  $\text{NO}_3\text{-N}$  auf 44% (1993 - 2002: 43%) unter Buche und 38% unter Fichte. Unklar bleibt, ob die derart erhöhten Einträge des  $\text{NO}_3\text{-N}$  das Ergebnis der Oxidation des deponierten  $\text{NH}_4\text{-N}$  im Kronenraum sind, die Gesamtd deposition also wenig verändert ist, oder ob sie Ausdruck zusätzlich trocken deponierten  $\text{NO}_3\text{-N}$  sind. Die reduzierten Einträge des  $\text{NH}_4\text{-N}$  wären dann das Ergebnis der biologischen Retention im Kronenraum.

Tab. 3: Einträge anorganischer Stickstoffverbindungen im Freiland und in den Beständen und ihre Kronendachdifferenzen (Eintrag Bestand – Eintrag Freiland).

		2003-2012			1993-2002		
		$\text{NO}_3\text{-N}$	$\text{NH}_4\text{-N}$	DIN	$\text{NO}_3\text{-N}$	$\text{NH}_4\text{-N}$	DIN
<b>a) Eintrag</b>	Freiland	4,7	4,7	9,3	5,3	5,2	10,5
	±	0,7	0,6	1,3	0,6	1,6	2,2
	Buche	5,5	4,4	9,8	5,5	4,2	9,6
	±	0,9	0,8	1,6	0,1	0,7	0,8
	Fichte	6,1	3,7	9,8			
	±	1,3	1,1	1,9			
<b>b) Kronendachdifferenz</b>	Buche	0,8	-0,3	0,5	0,1	-1,0	-0,9
	±	0,3	0,6	0,8	0,5	0,9	1,4
	Fichte	1,5	-1,0	0,5			
	±	1,1	1,3	2,1			

## 4 Kronenraumbilanzen für die Dauerbeobachtungsflächen

### 4.1 Buchenbestand B1

#### Trockendepositionsfaktoren

Der wesentliche erste Schritt vor der Anwendung der Modelle ist die Prüfung der regionalen Eignung des  $\text{Na}^+$  als Tracer zur Ermittlung der trockenen Deposition und der Leachingverluste von  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$ , deren Ausmaß wiederum einen maßgeblichen Einfluss auf die Aufnahme von  $\text{NH}_4^+$  im Kronenraum hat (s. o.). Wie Abb. 2 zu entnehmen ist, nahm der Trockendepositionsfaktor im Buchenbestand B1 Werte zwischen 0,0 (2012) und 0,5 (1991) an. Das Mittel der Jahre 1993 bis 2002 betrug 0,15 ( $\pm 0,09$ ), das Mittel der Folgeperiode bis 2012 0,14 ( $\pm 0,10$ ).

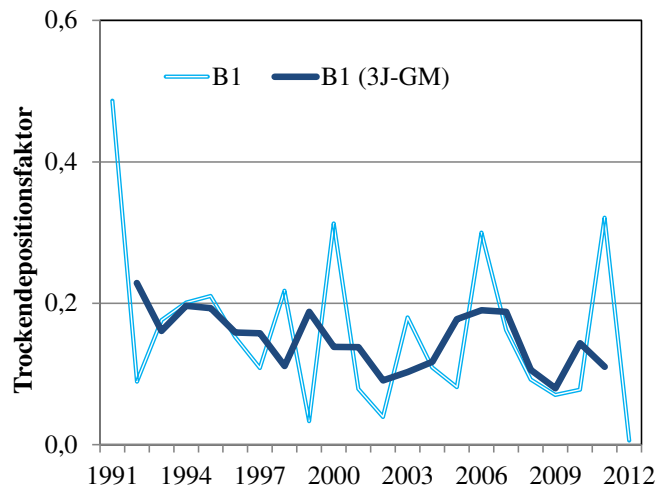
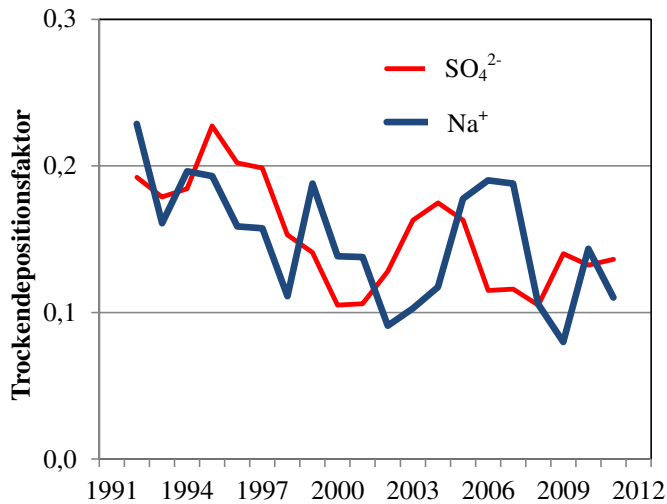


Abb. 2: Trockendepositionsfaktoren DDF ( $\text{Na}^+$ ) für den Buchenbestand B1, berechnet aus jährlichen und über drei Jahre gemittelten Stoffeinträgen (3J-GM).

Lokal wurden bspw. auch  $\text{Cl}^-$  (BOUYA et al. 1999) und  $\text{SO}_4^{2-}$  (UKONMAANAHO and STARR 2002) zur Ermittlung der Trockendeposition verwendet. Wie Abb. 3 (s. u.) zu entnehmen ist, sind die Interzeptionsfaktoren für  $\text{Na}^+$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  im Buchenbestand in beiden Teilzeiträumen nahezu gleich, wobei  $\text{Na}^+$  stärker streut. Der zum Teil asynchrone Verlauf deutet auf unterschiedliche Prozesse und unterschiedliche saisonale Beeinflussung hin. Während der Schwefeleintrag stärker von den winterlichen Witterungsbedingungen als von den sommerlichen bestimmt wird, dürften dies beim  $\text{Na}^+$  mehr die sommerlichen Witterungsbedingungen (mineralische Aerosole) und biologische Einflüsse (organische Stäube) sein.

Die Faktoren beim  $\text{Cl}^-$  waren zwischen 1993 und 2002 mit 0,18 ( $\pm 0,16$ ) größer als bei  $\text{Na}^+$  und  $\text{SO}_4^{2-}$ , im Zeitraum danach jedoch nur halb so hoch bei großer Streuung (Abb. 3, s. u.). Die großen Unterschiede zwischen den Zehnjahreszeiträumen machen es sehr wahrscheinlich, dass der überschießende  $\text{Cl}^-$ -Eintrag der Interzeption von HCL zuzuordnen war, die der Glasindustrie als regionaler Quelle zugeordnet werden könnten. Nach deren Ende zu Anfang des neuen Jahrtausends drehten die Trockendepositionsfaktoren für  $\text{Cl}^-$  von überproportional auf unterproportional zu den beiden anderen Ionen. Ein weiterer Beleg hierfür sind die molaren  $\text{Na}/\text{Cl}$ -Verhältnisse, welche im Freilandniederschlag von 1,1 ( $\pm 0,2$ ) auf 1,2 ( $\pm 0,2$ ) anstiegen, im Bestandesniederschlag dagegen von 1,1 ( $\pm 0,2$ ) auf 1,3 ( $\pm 0,2$ ). Dies entspricht dann Befunden aus dem schweizerischen ICP Forests Monitoring mit höheren  $\text{Na}/\text{Cl}$ -Verhältnissen im Bestandesniederschlag

unter Laubbäumen als im Freilandniederschlag (THIMONIER et al. 2008).  $\text{Na}^+$  ist daher auch für die regionalen Bedingungen als am besten zur Berechnung des Trockendepositionsfaktors im Buchenbestand geeignet. Aus der Wertegleichheit mit dem aus  $\text{SO}_4^{2-}$  berechneten Faktor lässt sich schließen, dass die gasförmige Deposition ( $\text{SO}_2$ ) keine Bedeutung mehr für die Schwefel-Einträge in den Buchenbestand B1 hat.

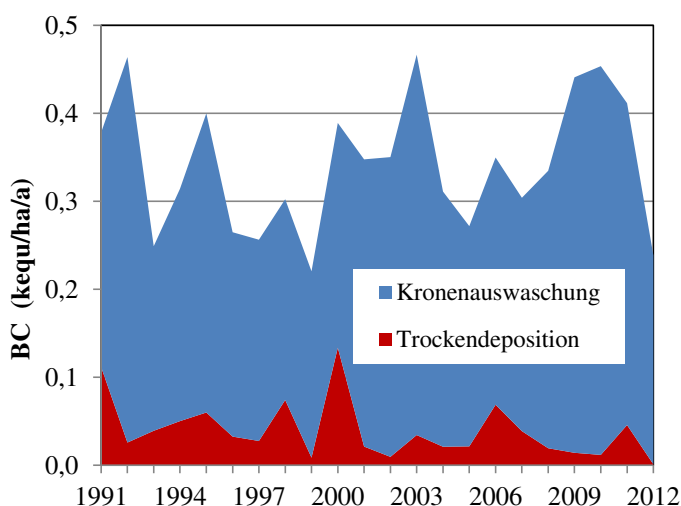


	$\text{Na}^+$	$\text{Cl}^-$	$\text{SO}_4^{2-}$
1993-2002	0,15	0,18	0,16
	0,09	0,16	0,06
2003-2012	0,14	0,08	0,14
	0,10	0,10	0,04

Abb. 3: Jährliche Trockendepositionsfaktoren DDF für  $\text{Na}^+$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  im Buchenbestand B1 (gleitende Mittel über drei Jahre, links) sowie Mittelwerte ( $\pm s$ ) der DDF von  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  für die Teilzeiträume 1993 - 2002 und 2003 - 2012.

### Trockendeposition und Kronenauswaschung basisch wirkender Kationen

Die Flüsse von  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$  mit dem Bestandesniederschlag unter Buche B1 (Abb. 4, Tab. 2a im Anhang) schwankten in den Jahren 1993 - 2012 ungerichtet zwischen 0,22 und 0,47 keq/ha/a und betragen im Mittel 0,33 ( $\pm 0,08$ ) keq/ha/a.



	$\text{K}^+$	$\text{Ca}^{2+}$	$\text{Mg}^{2+}$
1993-2002	74%	14%	11%
	8%	8%	3%
2003-2012	70%	19%	11%
	7%	7%	2%

Abb. 4: Jährliche Flüsse von  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  und  $\text{Mg}^{2+}$  (BC) mit dem Bestandesniederschlag unter Buche B1, differenziert nach Trockendeposition und Leaching (links), und ihre mittleren Anteile ( $\pm s$ ) an der Summe geleachter Ionen in den Teilzeiträumen 1993 - 2002 und 2003 - 2012 (rechts).

Den geringen Trockendepositionsfaktoren entsprechend lag der Beitrag der partikulären Deposition bei 11 ( $\pm 8$ ) %, der Beitrag der Kronenauswaschung bei 89%. Die Anteile der Ionen an der Äquivalentsumme geleahter Ionen veränderten sich zwischen 1993 – 2002 und 2003 – 2012 nicht signifikant.  $K^+$  ist mit einem Anteil von mindestens 70% das wichtigste Ion. Bemerkenswert sind die geringe Variabilität beim  $Mg^{2+}$  mit einem konstanten Anteil von 11% und der von 14% auf 19% erhöhte Anteil des  $Ca^{2+}$  bei gleichbleibender Variabilität. Dies dürfte unmittelbar auf die verbesserte Versorgung der Buchen mit basisch wirkenden Kationen zurückzuführen sein. Bodenuntersuchungen, Flussbilanzen und Blattspiegelwerte dokumentieren für diesen Bestand übereinstimmend und eindeutig die Erholung von den Folgen der ökosystemaren Versauerung (BEUDERT und BREIT 2011, 2013) und letztlich die Erfolge der politischen und technischen Maßnahmen zur Luftreinhaltung.

### **Deposition und Rückhalt von Stickstoffverbindungen im Kronenraum**

Die Anwendung der durchgehend kleinen Trockendepositionsfaktoren DDF auf  $NH_4^+$  und  $NO_3^-$  im Modell 3 (Tab. 4, s. u.) erbrachte für den Zeitraum 2003 - 2012 auch geringe Trockendepositionsraten DD von jeweils 0,05 keq/ha/a. Für  $NO_3^-$  ergibt sich Übereinstimmung mit allen Modellen, die den Fluss unter der Krone als Gesamtdeposition und die Trockendepositionrate als Differenz zur Freilanddeposition definieren.

Die Trockendeposition von  $NH_4^+$  wurde nach KOPÁČEK et al. (2009, Modell 4) aus dem Kronendurchlass zu 0,40 keq/ha/a bestimmt; sie liegt damit sehr eng bei den meisten anderen Varianten der Kronenraumbilanz (Tab. 4, s. u.). Die Trockendepositionsraten der weiteren Ansätze liegen bei 0,01 - 0,20 keq/ha/a und sind abhängig vom berechneten  $NH_4^+$ -Rückhalt. Den minimalen Wert von 0,01 keq/ha/a lieferte Modell 1a mit dem großem Austauschkoefizienten für  $H^+$ , bei dem die Auswaschung schwacher organischer Säuren den Rückhalt von  $NH_4^+$  und  $H^+$  kontrolliert. Den zwanzigfachen Rückhalt brachte Modell 2b mit dem Austauscheffizienzfaktor 1 für  $NH_4^+$  wie für  $H^+$ . Die Modellvarianten 1b, 2a, 3 und 4 lieferten Trockendepositionen von 0,05 - 0,07 keq/ha/a bei  $NH_4^+$  und von 0,09 - 0,13 keq/ha/a beim DIN (Tab. 4, s. u.).

Ohne Berücksichtigung der Modellvarianten 1a und 2b mit dem Minimum von 0,73 bzw. dem Maximum von 0,93 keq/ha/a, ergibt sich für die DIN-Gesamtdeposition in den Buchenbestand B1 ein Schätzwert von 0,78 ( $\pm 0,02$ ) keq/ha/a, beim DIN-Rückhalt im Kronenraum CU ein Schätzwert von 0,08 ( $\pm 0,01$ ) keq/ha/a, entsprechend 10% der Gesamtdeposition (Tab. 4, s. u.). Über die Anwendung der Kronenraumbilanzverfahren wurde gegenüber dem Eintrag unter der Kronen ein Mehreintrag von 11% ermittelt.

Die gemessene Kronendachdifferenz KDD des glösten organischen Stickstoffs DON (TF - BD) entspricht für die Modellvarianten 1b, 2a, 3 und 4 exakt dem berechneten DIN-Rückhalt in der Krone von 0,08 ( $\pm 0,01$ ) keq/ha/a. Daraus lässt sich die Hypothese ableiten, dass die Baumkrone in diesem Umfang nicht als Senke, sondern als Transformationsraum dient. Es ist unklar, ob die DON-Produktion in der Krone der Auswaschung aus lebenden Geweben oder der Abwaschung von Oberflächen entstammt, ob sie dem Baum selbst oder Mikroorganismen in der Krone zuzuschreiben ist.



Tab. 4: Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD) und im Bestand (TF+SF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen (BC) und Kronendachdifferenzen KDD für DON im Buchenbestand B1. Zur Berechnung von Trockendepositionsrate DD, Verbleib im Kronenraum CU und Gesamtdosition TD siehe Methodenteil. Dargestellt sind Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) für den Zeitraum 2003 - 2012 in  $\text{keq/ha/a}$ . xH: Austauscheffizienzfaktor für  $\text{H}^+$  im Kronenraum.

	TF+SF		BD		LE	TF+SF	BD	KDD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	BC			
<b>Messungen 2003-2012</b>	0,31	0,39	0,33	0,33	0,33	0,14	0,06	0,08
	<i>0,06</i>	<i>0,06</i>	<i>0,04</i>	<i>0,05</i>	<i>0,08</i>	<i>0,06</i>	<i>0,04</i>	<i>0,04</i>
	DD		CU	TD		DD	CU	TD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$			
<b>Schätzverfahren</b>								
ICP Forest Manual 2010								
Modell 1a xH = 6	0,01	0,06	0,03	0,34	0,39	0,07	0,03	0,73
	<i>0,06</i>	<i>0,02</i>	<i>0,02</i>	<i>0,06</i>	<i>0,06</i>			
Modell 1b xH = 1	0,05	0,06	0,07	0,39	0,39	0,11	0,07	0,78
	<i>0,09</i>	<i>0,02</i>	<i>0,06</i>	<i>0,08</i>	<i>0,06</i>			
DeVRIES 2003								
Modell 2a xH = 6	0,07	0,06	0,09	0,41	0,39	0,13	0,09	0,80
	<i>0,07</i>	<i>0,02</i>	<i>0,05</i>	<i>0,07</i>	<i>0,06</i>			
Modell 2b xH = 1	0,20	0,06	0,23	0,54	0,39	0,26	0,23	0,93
	<i>0,10</i>	<i>0,02</i>	<i>0,08</i>	<i>0,09</i>	<i>0,06</i>			
LANGUSCH et al. 2005								
Modell 3 DDF für alle Ionen	0,05	0,05	0,07	0,38	0,38	0,09	0,07	0,76
	<i>0,03</i>	<i>0,04</i>	<i>0,06</i>	<i>0,06</i>	<i>0,07</i>			
KOPÁČEK et al. 2009								
Modell 4 $\text{TD}_{\text{NH}_4} = \text{TF}(\text{+SF})_{\text{NH}_4}/0,78$	0,07	0,06	0,09	0,40	0,39	0,13	0,09	0,79
	<i>0,06</i>	<i>0,02</i>	<i>0,02</i>	<i>0,08</i>	<i>0,06</i>			

## 4.2 Fichtenbestand F1

### Trockendepositionsfaktoren

Die Trockendepositionsfaktoren im Fichtenbestand F4 betragen maximal 0,46 (1998), nahmen jedoch 1999, 2010 und 2012 negative Werte an (Abb. 5). Daher ist die Standardabweichung mit  $\pm 0,16$  größer als das Mittel der Jahre 2003 bis 2012. Dieses ist mit 0,14 geringfügig kleiner als unter Buche B1, was wegen der anzunehmenden größeren Blattfläche des Fichtenbestands wenig wahrscheinlich ist. Die Gründe für die negativen Trockendepositionsfaktoren sind unklar, jedoch fällt für das Jahr 2012 die Übereinstimmung mit

dem Buchenbestand B1 auf (Abb. 2, s. o.). Das gleitende Mittel lässt erkennen, dass die ersten und letzten Jahre der Messperiode sich deutlich vom relativen einheitlichen Wert der Periode zwischen 1998 und 2008 (0,19) unterscheiden. Insofern ist die Annahme eines rückläufigen Trends vorerst verfrüht.

Mit dem mittleren, ohne die negativen Werte berechneten Faktor von 0,19 ( $\pm 0,12$ ) wurden die Trockendepositionsfaktoren der Jahre 2010 und 2012 ersetzt, um Kronenraumbilanzen für Einzeljahre im Zeitraum 2003 bis 2012 berechnen zu können.

### Trockendeposition und Kronenauswaschung basisch wirkender Kationen

Die Flüsse von  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{K}^+$  mit dem Bestandesniederschlag unter Fichte F4 (Abb. 6, s. u. und Anhang Tab. 3a) schwankten in den Jahren 2003 - 2012 ungerichtet zwischen 0,53 und 0,91 keq/ha/a und betragen im Mittel 0,79 ( $\pm 13$ ) keq/ha/a. Dies ist mehr als Doppelte des Betrags unter Buche. Den geringen Trockendepositionsfaktoren entsprechend lag der Beitrag der partikulären Deposition bei 5 ( $\pm 4$ )%, der Beitrag der Kronenauswaschung bei 95 ( $\pm 4$ )%.

Die Anteile der Ionen an der Äquivalentsumme geleachter Ionen sind bei geringen Standardabweichungen nur wenig veränderlich.  $\text{K}^+$  ist mit einem Anteil von 59% das wichtigste Ion.  $\text{Mg}^{2+}$  und  $\text{Ca}^{2+}$  kommen auf Anteile von 15% bzw. 26% und haben damit unter Fichte deutlich größere quantitative Bedeutung für den Austausch im Kronenraum als unter Buche.

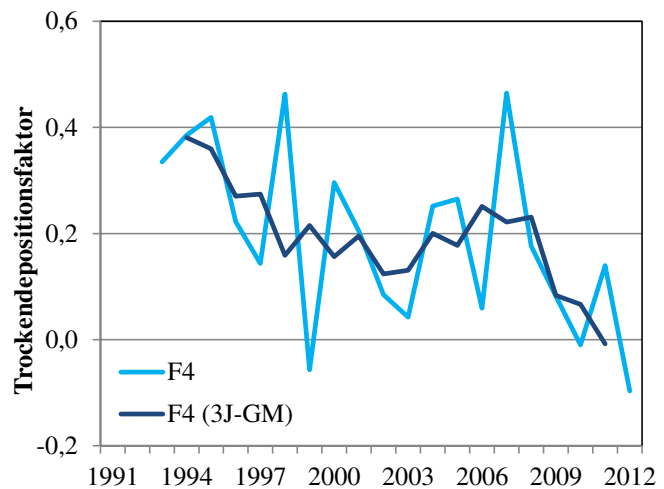
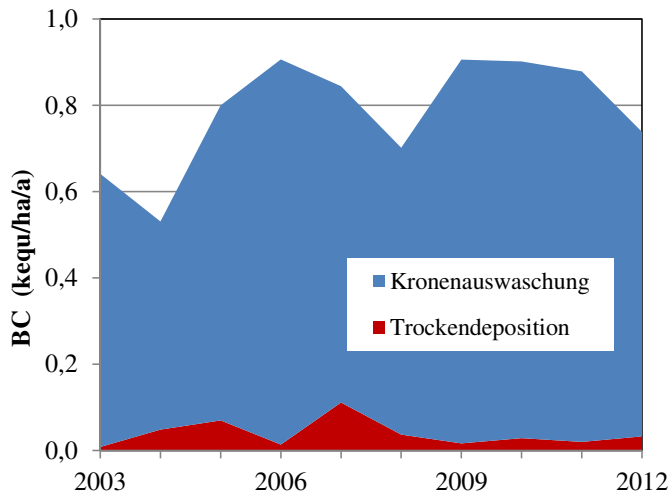


Abb. 5: Trockendepositionsfaktoren DDF ( $\text{Na}^+$ ) für den Fichtenbestand F1, berechnet aus jährlichen und über drei Jahre gemittelten Stoffeinträgen (3J-GM).



	K <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>
2003-2012	59%	26%	15%
	3%	2%	1%

Abb. 6: Jährliche Flüsse von K<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup> und Mg<sup>2+</sup> (BC) mit dem Kronendurchlass unter Fichte F4, differenziert nach Trockendeposition und Leaching (links), und ihre mittleren Anteile (± s) an der Summe geleachter Ionen im Zeitraum 2003 - 2012 (rechts).

### Deposition und Rückhalt von Stickstoffverbindungen im Kronenraum

Obwohl die DIN-Einträge mit der Kronentraufe im Fichtenbestand F4 (0,70 keq/ha/a) identisch mit den Einträgen im Buchenbestand B1 sind, weisen nur die Modellvarianten 1a, 3 und 4 vergleichbare Gesamtdepositionsraten TD von knapp 0,80 keq/ha/a auf. Diese Gleichheit resultiert jedoch aus der Nichteignung der Modelle für die vorliegende Depositionssituation, weil wesentliche Annahmen oder Prozesse ökologisch nicht sinnvoll abgebildet werden können. Der Grund für das Versagen liegt in Verschiebungen in der DIN-Komposition zwischen Kronentraufe und Freilandniederschlag, die im Fichtenbestand (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> +0,11, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> -0,07 keq/ha/a, Tab. 5, s. u.) deutlich ausgeprägter sind als im Buchenbestand (NO<sub>3</sub><sup>-</sup> +0,06, NH<sub>4</sub><sup>+</sup> -0,02 keq/ha/a, Tab. 4, s. o.).

Die kleinen Trockendepositionsfaktoren von im Mittel 0,19 reichen im Modell 3 nicht aus, die Deposition von NO<sub>3</sub><sup>-</sup> mit der Kronentraufe (0,44 keq/ha/a), welche in den anderen Modellvarianten die Gesamtdeposition darstellt, aus den Komponenten nasse Deposition (0,33 keq/ha/a) und Trockendeposition (0,06 keq/ha/a) darzustellen (Tab. 5, s. u.). Die Massenbilanz wird in sechs von zehn Jahren durch die Auswaschung von NO<sub>3</sub><sup>-</sup> aus dem Kronenraum ausgeglichen (Tab. 3b im Anhang), welche den Gesamteintrag im Mittel um 10% verringert.

Die Trockendeposition von NH<sub>4</sub><sup>+</sup> nimmt in den Modellen 1a und 4 in fünf bzw. vier von zehn Jahren negative Werte an (Tab. 3b im Anhang) und ist im Mittel Null (Tab. 5, s. u.), wenn und weil die Summe aus Kronentraufe und Rückhalt die Niederschlagsdeposition von NH<sub>4</sub><sup>+</sup> gerade ausgleicht.

Die Modelle 1a, 3 und 4 weisen eine mittlere Gesamtdeposition von etwa 0,78 keq/ha/a auf, die aus einem NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Rückhalt von 0,10 keq/ha/a (12%) resultiert. Die abgeleitete Trockendeposition von etwa 0,12 keq/ha/a entspricht 15% der Gesamtdeposition.

Mit Modell 2b ergab sich die größte DIN-Gesamtdepositionsrate von 1,21 keq/ha/a, weil die  $\text{NH}_4^+$ -Rückhalterate mit durchschnittlich 0,5 keq/ha/a sehr hoch ist. Der Anteil der Trockendeposition liegt mit 44% deutlich über dem Anteil im Buchenbestand B1 (15%). Die  $\text{NH}_4^+$ -Rückhalterate liegt allerdings auch deutlich über Untersuchungsergebnissen zur direkten N-Aufnahme in Assimilationsorgane von 0,07 - 0,21 keq/ha/a (BRUMME 1992, GESSLER et al. 2002, SCHMITT et al. 2005, WILSON und TILEY 1998). Angesichts möglicher anderer Retentionsmöglichkeiten im Kronenraum (sorptive Oberflächen, Aufnahme durch Moose, Flechten und Mikroorganismen) kann der sehr hohe Wert nicht als unrealistisch verworfen werden.

Dennoch erscheint das mittlere Ergebnis von 0,21 keq/ha/a aus den Modellen 1b und 2a plausibler. Die Trockendeposition von etwa 0,24 keq/ha/a macht 26% der Gesamtdepositionsrate von etwa 0,91 keq/ha/a auf. Zudem entspricht, wie schon unter Buche B1 (s. o.), die Kronendachdifferenz KDD des glösten organischen Stickstoffs DON mit 0,20 ( $\pm 0,05$ ) keq/ha/a dem Betrag für den DIN-Rückhalt in der Krone.

Tab. 5: Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD) und im Bestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON im Fichtenbestand F4. Zur Berechnung von Trockendepositionsrate DD, Verbleib im Kronenraum CU und Gesamtdeposition TD siehe Methodenteil. Dargestellt sind Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) für den Zeitraum 2003 - 2012 in keq/ha/a. xH: Austauscheffizienzfaktor für  $\text{H}^+$  im Kronenraum. **Rote Werte:** DD häufig  $< 0$ ; **blauer Wert:** errechnete TD  $<$  TF

	TF		BD		LE	TF	BD	KDD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	BC			
<b>Messungen 2003-2012</b>	0,26	0,44	0,33	0,33	0,75	0,25	0,06	0,20
	<i>0,08</i>	<i>0,09</i>	<i>0,04</i>	<i>0,05</i>	<i>0,13</i>	<i>0,05</i>	<i>0,04</i>	<i>0,05</i>
	DD		CU	TD		DD	CU	TD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$			
<b>Schätzverfahren</b>								
ICP Forest Manual 2010								
Modell 1a xH = 6	<b>0,01</b>	0,10	0,08	0,35	0,44	0,12	0,08	0,78
	<i>0,12</i>	<i>0,08</i>	<i>0,04</i>	<i>0,11</i>	<i>0,09</i>			
Modell 1b xH = 1	0,13	0,10	0,20	0,47	0,44	0,24	0,20	0,90
	<i>0,12</i>	<i>0,08</i>	<i>0,07</i>	0,13	0,09			
DeVRIES 2003								
Modell 2a xH = 6	0,14	0,10	0,21	0,47	0,44	0,24	0,21	0,91
	<i>0,16</i>	<i>0,08</i>	<i>0,10</i>	0,15	0,09			
Modell 2b xH = 1	0,43	0,10	0,50	0,76	0,44	0,53	0,50	1,20
	<i>0,20</i>	<i>0,08</i>	<i>0,16</i>	<i>0,20</i>	<i>0,09</i>			
LANGUSCH et al. 2005								
Modell 3 DDF für alle Ionen	0,06	0,06	0,13	0,40	<b>0,40</b>	0,13	0,13	0,79
	<i>0,05</i>	<i>0,05</i>	<i>0,13</i>	<i>0,08</i>	<i>0,08</i>			
KOPÁČEK et al. 2009								
Modell 4 $\text{TD}_{\text{NH}_4} = \text{TF}(\text{+SF})_{\text{NH}_4}/0,78$	<b>0,00</b>	0,10	0,07	0,34	0,44	0,11	0,07	0,78
	<i>0,11</i>	<i>0,08</i>	<i>0,02</i>	<i>0,10</i>	<i>0,09</i>			

### 4.3 Zeitreihen der Stickstoffgesamtdeposition

In der zehnjährigen Zeitreihe (Abb. 7) ergaben sich minimale Schätzwerte der DIN-Gesamtdeposition in den Buchenbestand B1 zwischen 8 und 14 kg/ha/a (Modell 1a), während die Maxima zwischen 11 und 15 kg/ha/a lagen, durchgehend erzeugt von Modell 2b. Die mittlere Abschätzung aus den Modellen 1b, 2a, 3 und 4 betrug 9 bis 14 kg/ha/a bei einer mittleren Standardabweichung von etwa 1 kg/ha/a. Diese Menge entspricht auch dem Abstand zu den geringsten Schätzwerten des Vergleichs (Modell 1a). Was bereits für den 10-Jahreszeitraum festgestellt worden war (Tab. 4, s. o.), lässt sich in beeindruckender Weise durch die Zeitreihe (Abb. 7) untermauern: hinsichtlich der Höhe und der zeitlichen Abfolge entspricht die Summe aus dem DIN-Eintrag mit der Kronentraufe und der Kronendachdifferenz des DON den mittleren Schätzwerten für die DIN-Gesamtdeposition (Modell 1b, 2a, 3 und 4).

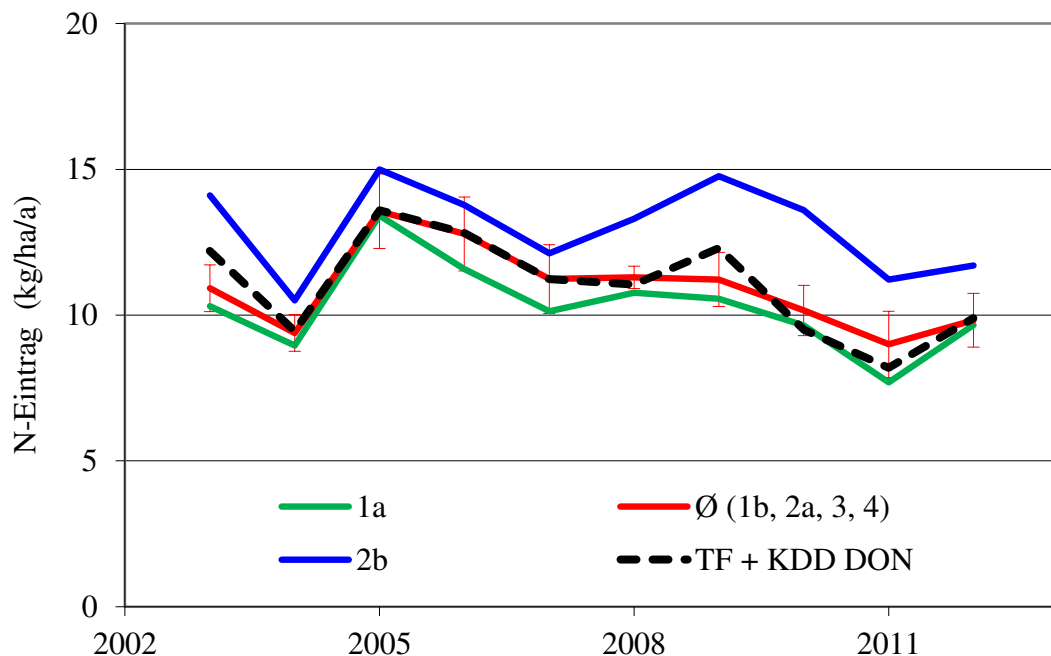


Abb. 7: Jährliche N-Gesamtdeposition in den Buchenbestand B1. Die Ziffern entsprechen den Modellvarianten in Tab. 4. Zum Vergleich: gemessene Summe aus DIN im Kronendurchlass TF und Kronendachdifferenz (KDD DON) des gelösten organischen Stickstoffs.

Für den Fichtenbestand F4, dessen Einträge insgesamt höher und variabler sind, ergeben sich sehr ähnlich Befunde. Modell 2b liefert mit 11 bis 22 kg/ha/a mit deutlichem Abstand die größten DIN-Gesamtdepositionsraten (Abb. 8, s. u.). Das Mittel aus den Modellen 1a, 3 und 4 erbrachte mit 9 bis 13 kg/ha/a die geringsten DIN-Frachten, das Mittel aus den Modellen 1b und 2a mit 9 bis 17 kg/ha/a die mittleren Schätzwerte.

Auch bei der Abschätzung der DIN-Gesamtdeposition im Fichtenbestand F4 beeindruckt die sehr gute Übereinstimmung zwischen der Summe aus dem DIN-Eintrag mit der Kronentraufe und der Kronendachdifferenz des DON mit den mittleren Schätzwerten (Modell 1b, 2a). Dies betrifft den gesamten Zeitraum (Tab. 5, s. o.) wie auch die einzelnen Jahre und die Jahr-zu-Jahr-Variabilität.

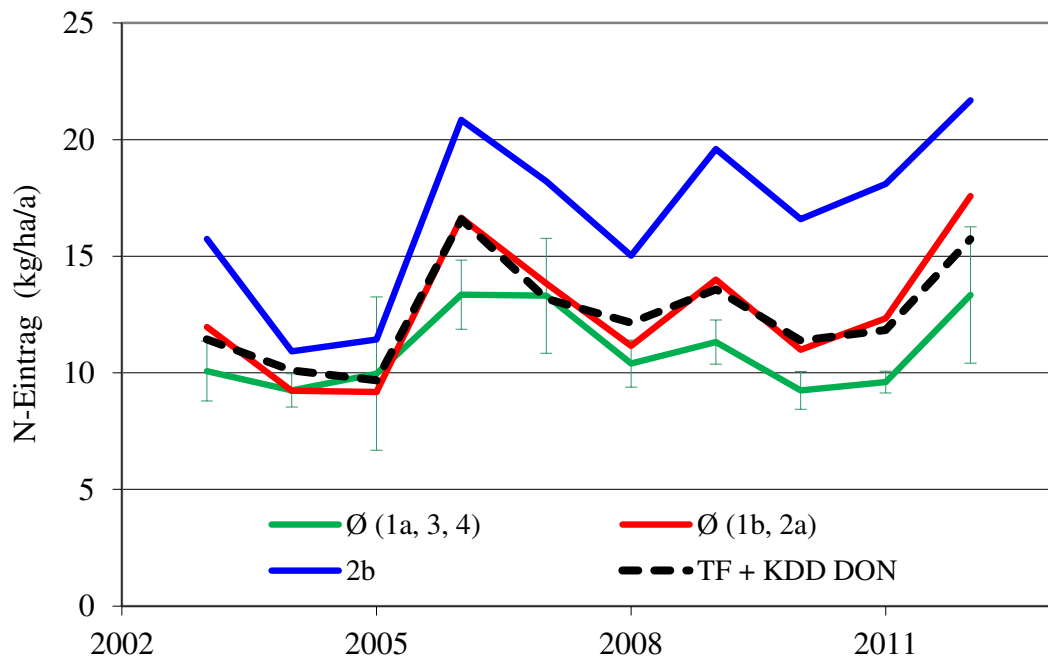


Abb. 8: Jährliche N-Gesamtdeposition in den Fichtenbestand F4. Die Ziffern entsprechen den Modellvarianten in Tab. 5. Zum Vergleich: gemessene Summe aus DIN (Kronendurchlass TF) und Kronendachdifferenz (KDD DON) des gelösten organischen Stickstoffs.

Aus diesem für Buchen- und Fichtenbestand gleichen Befund ergibt sich die Frage nach der Herkunft des DON im Kronenraum. Ist er Teil jener Kohlenstoffverbindungen, die mit bodenbürtigem Stickstoff synthetisiert und aus Assimilationsgeweben ausgewaschen wurden? Oder muss der organische Stickstoff im Kronendurchlass als Ergebnis der Umwandlung von deponiertem DIN im Kronenraum interpretiert werden?

In einem ersten Schritt kann überprüft werden, ob dieses Phänomen über die unteren Hanglagen des Untersuchungsgebietes hinaus auch in den Fichtenbeständen der Oberhanglagen und der Gipfelregion beobachtet werden kann, und damit als zumindest regional bedeutsam anzusehen ist.

## 5 Saisonale Kronenraumbilanzen für Hochlagenfichtenbestände am Großen Falkenstein

### 5.1 Wasser- und Stickstoffeinträge

Für die Abschätzung der Stickstoffdeposition in höheren Lagen konnten Messungen am Großen Falkenstein (1314 m ü. NN) und am Ruckwiesberg (1200 m ü. NN) genutzt werden, die in der schneefreien Zeit der Jahre 2012 und 2013 durchgeführt wurden. Die untersuchten Fichtenaltbestände, die Anordnung der Sammelgeräte und das Messprogramm entsprechen den Standardmethoden des ICP IM und des ICP FOREST und sind ausführlich in BEUDERT und BREIT (2012, 2013) beschrieben. Anders als in den beschriebenen Beständen der tieferen Lage ergeben sich an diesen exponierten Hochlagenstandorten quantitative bedeutsame Wasser- und Stoffeinträge durch ausgekämmtes Nebel- und Wolkenwasser. Wie Abb. 9 links zu entnehmen ist, liegen im Bestand F4 für die Zeit vom 10.07. und 27.11.2012 Interzeptionsverluste von 184 mm vor, die sich am Ruckwiesberg auf 43 mm verringern und am Großen Falkenstein zu Interzeptionsgewinnen von 79 mm wenden. Die gemessenen Stickstoffeinträge steigen in derselben Reihenfolge von 3,4 auf über 6 kg/ha an (Abb. 9 rechts) und machen deutlich, dass der Impaktion von Tröpfchen („feuchte“ Deposition) eine maßgebliche Rolle beim Stickstoffeintrag zukommt. Darin sind, über die Beiträge im tief gelegenen Bestand hinaus, auch zusätzliche Anteile an „trocken“ deponierten Gasen und Partikeln enthalten. Bemerkenswert ist, dass zwar die Niederschlagsmengen im Freiland mit der Höhe ansteigen, die Stoffeinträge (Bulk-Sammler) jedoch gleichbleiben und damit einen Verdünnungseffekt anzeigen, der bereits in den 1980er Jahren unter einem völlig anderen Depositionsregime im Einzugsgebiet der Großen Ohe festgestellt wurde (TEICHMANN 1983).

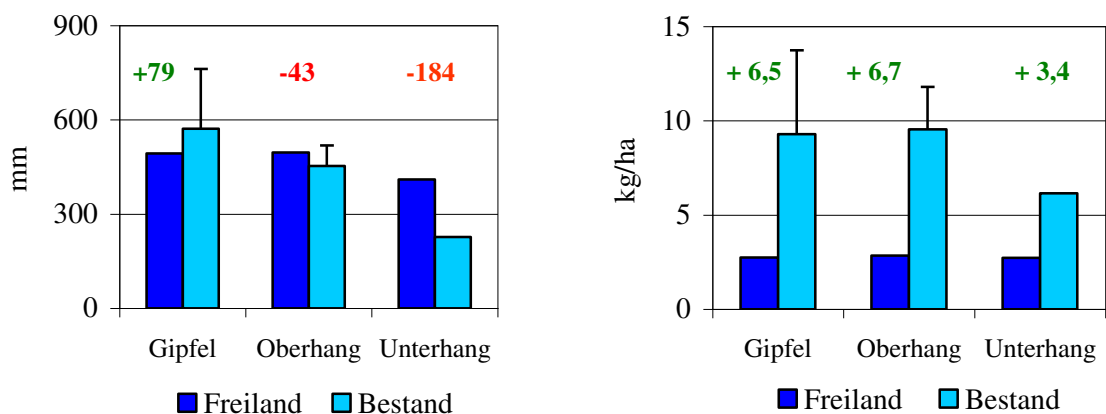


Abb. 9: Höhengradienten des Niederschlags (links) und des Stickstoffeintrags ( $TN_b$ , rechts) in Freiland und Bestand vom 10.07. und 27.11.2012. Unterhang: Weitau F4; Oberhang: Ruckwiesberg; Gipfel: Großer Falkenstein (aus BEUDERT und BREIT 2013).

Durch die Einzelbeprobung und Einzelanalyse der Depositionswässer konnten Informationen zur Variabilität der Stoffeinträge unter Fichte über geringe Horizontalabstände gewonnen werden.

Am Großen Falkenstein fiel bezüglich der Niederschlagsmenge im Kronendurchlass im Vergleich zum Freiland ein Sammler (ST-f) als gering und unterdurchschnittlich, ein anderer dagegen (ST-c) als weit überdurchschnittlich auf (Abb. 10 oben). Über die Analyse der Stickstoffflüsse (Abb. 10 unten) kann jedoch gezeigt werden, dass der Sammler ST-f mit unterdurchschnittlicher Menge tatsächlich Kronentraufe repräsentiert, während der mengenmäßig unauffällige Sammler ST-d identische Stickstoffflüsse wie der Freilandniederschlag aufweist, obwohl er in einer Bestandeslücke von höchstens sieben Metern Durchmesser steht. Die Stickstoffflüsse in Sammler ST-c lagen um das Doppelte über dem durchschnittlichen Fluss; hier dürfte zufällig die Sondersituation „Tropfunkt“ (HOLWERDA et al. 2006, ZIEGLER et al. 2008) erfasst worden sein.

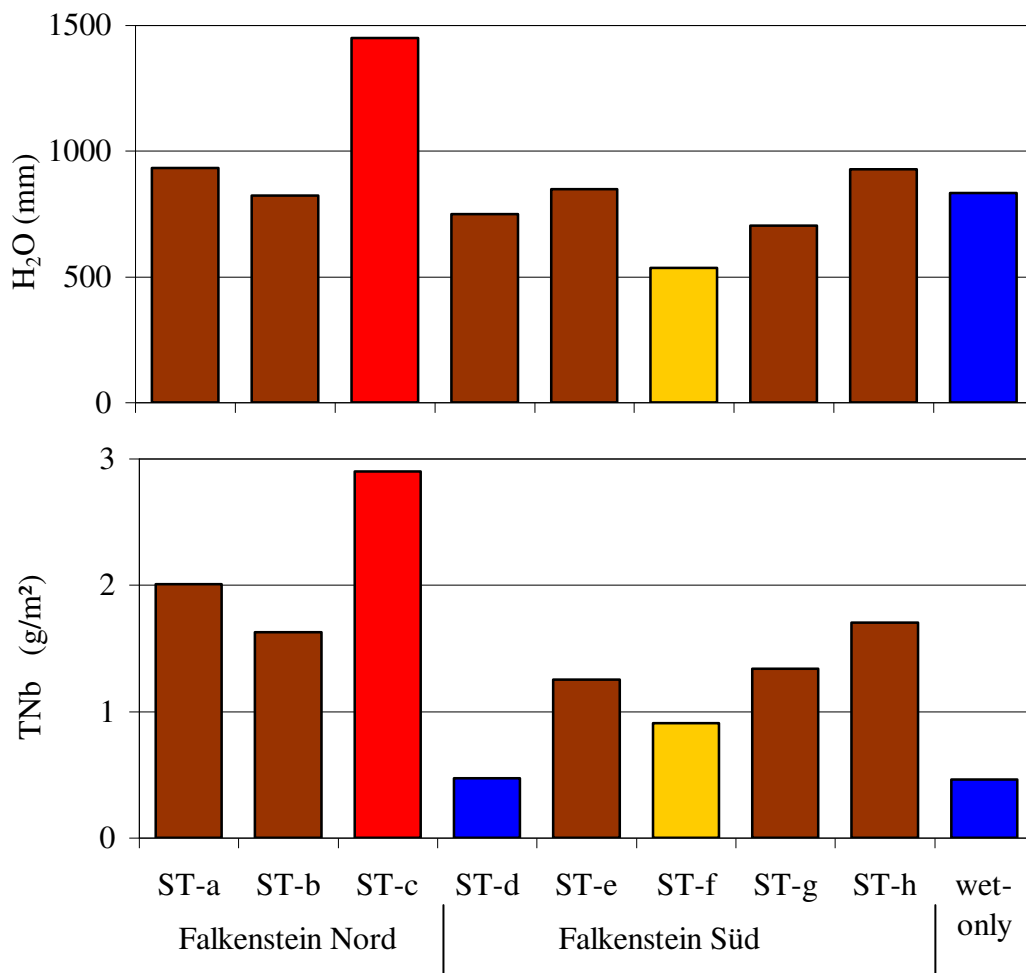


Abb. 10: Niederschlagssummen (oben) und Stickstoffflüsse (unten) im Freiland und unter Fichte am Großen Falkenstein vom 05.05.-27.11.2012 (BEUDERT u. BREIT 2013).

Zeitreihenbetrachtungen der Prozesse, die in Kronenraumbilanzverfahren abgebildet sind, können wegen des kurzen Messzeitraums nicht unternommen werden. Stattdessen werden die für Buche B1 und Fichte F4 genutzten Kronenraumbilanzverfahren auf die Einzelsammler am Großen Falkenstein und am Ruckwiesberg angewendet, um ihr Ver-



halten an Hochlagenfichtenbeständen unter Einschluss der feuchten Deposition zu testen. Die Variante 3 von LANGUSCH et al. (2003) wurde nicht weiter verfolgt. Die Sammler ST-c und ST-d wurden nicht berücksichtigt, weil die quantitative Bedeutung der durch diese Sammler repräsentierten Positionen im Bestand unklar ist.

## 5.2 Stickstoffgesamtdepositionen

Die Trockendepositionsfaktoren für  $\text{Na}^+$  lagen am Ruckwiesberg mit  $0,20 (\pm 0,04)$  und  $0,42 (\pm 0,15)$  in den Jahren 2012 und 2013 (Tab. 6 im Anhang, Abb. 11) im Bereich der Werte in den tiefer gelegenen Beständen B1 und F4 (Tab. 2 und 3 im Anhang). Auch hier waren sie unter Verwendung der Freilanddeposition aus Bulk-Sammlern berechnet worden; auch hier traten 2012 negative Trockendepositionsfaktoren bei zwei Sammlern auf, welche durch den Mittelwert aus den drei anderen Sammlern ersetzt worden sind. Modell 2b lieferte für das Messintervall im Jahr 2012 mit  $13,1 (\pm 3,1)$  kg/ha höhere DIN-Gesamtdepositionsraten als im Mittel der anderen Modelle mit  $10,2 (\pm 0,8)$  kg/ha. Für das Messintervall im Jahr 2013 ergab sich qualitativ das gleiche Bild: höchste DIN-Gesamtdepositionsraten bei Modell 2b mit  $17,9 (\pm 4,9)$  kg/ha gegenüber  $12,7 (\pm 0,9)$  kg/ha im Mittel der anderen Modelle, die wie schon 2012 bemerkenswert eng beieinander lagen (Tab. 6 im Anhang).

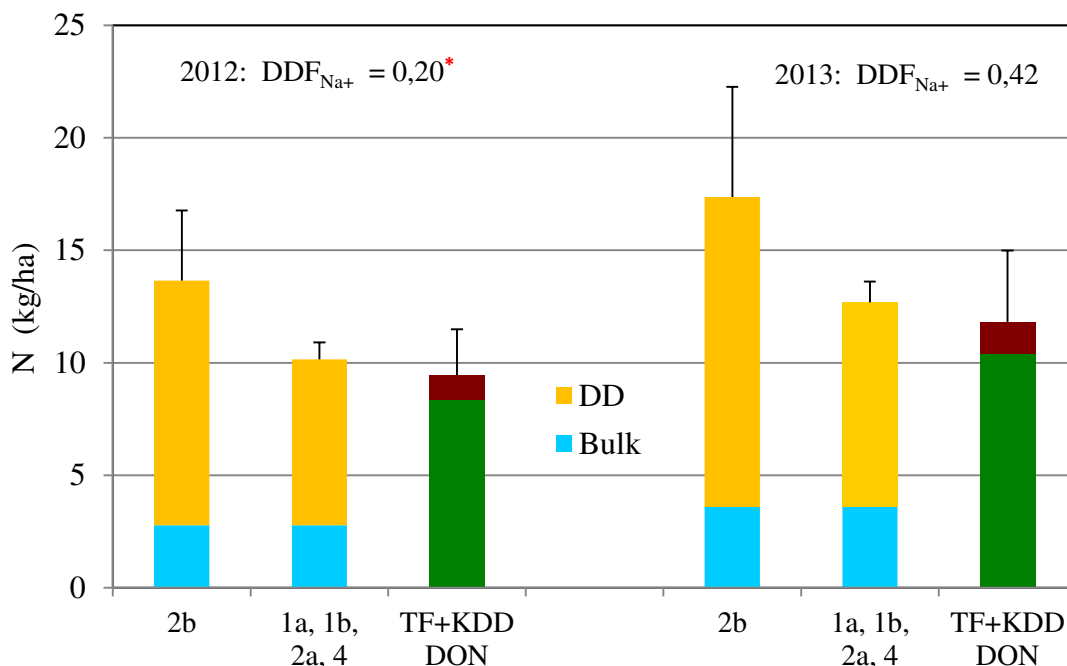


Abb. 11: Gesamtdepositionsraten für DIN im Fichtenbestand am Ruckwiesberg, differenziert nach Freiland- (Bulk) und Trockendeposition (DD). **Links:** 10.07.-27.11.2012, **rechts:** 07.05.-19.11.2013. Zum Vergleich: DIN im Kronendurchlass (TF, grüne Säulen) und Kronendachdifferenz (KDD) für gelösten organischen Stickstoff DON (braun gekennzeichnet).

Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) über fünf Sammler (Modell 2b) bzw. über die mittleren Ergebnisse der Modelle 1a, 1b, 2a und 4. \*: negative DDF zweier Sammler ersetzt durch Mittelwert.

Für beide Messintervalle jedoch gilt trotz unterschiedlicher Flüsse übereinstimmend, dass die Summen aus DIN im Kronendurchlass und Kronendachdifferenz des DON mit  $9,4 (\pm 2,0)$  kg/ha (2012) und  $11,8 (\pm 3,2)$  kg/ha (2013) geringfügig kleiner, aber nicht signifikant unterscheidbar von den Mittelwerten der DIN-Gesamtdeposition der Modelle 1a, 1b, 2a und 4 sind. Am Großen Falkenstein waren die Trockendepositionsfaktoren für  $\text{Na}^+$  mit  $0,91 (\pm 0,38)$  und  $1,80 (\pm 0,72)$  in den Jahren 2012 und 2013 (Abb. 12, Tab. 7 im Anhang) um ein Vielfaches größer und variabler als am Ruckwiesberg. Allerdings waren sie unter Verwendung der Freilanddeposition aus Wet-only-Sammlern berechnet worden.

Modell 2b lieferte für das Messintervall im Jahr 2012 mit  $20,6 (\pm 4,6)$  kg/ha weitaus höhere DIN-Gesamtdepositionsraten als sich im Mittel der anderen Modelle mit  $13,2 (\pm 0,9)$  kg/ha ergaben (Abb. 12). Für das Messintervall im Jahr 2013 ergab sich qualitativ das gleiche Bild: höchste DIN-Gesamtdepositionsraten bei Modell 2b mit  $14,9 (\pm 5,3)$  kg/ha gegenüber  $10,0 (\pm 0,6)$  kg/ha im Mittel der anderen Modelle.

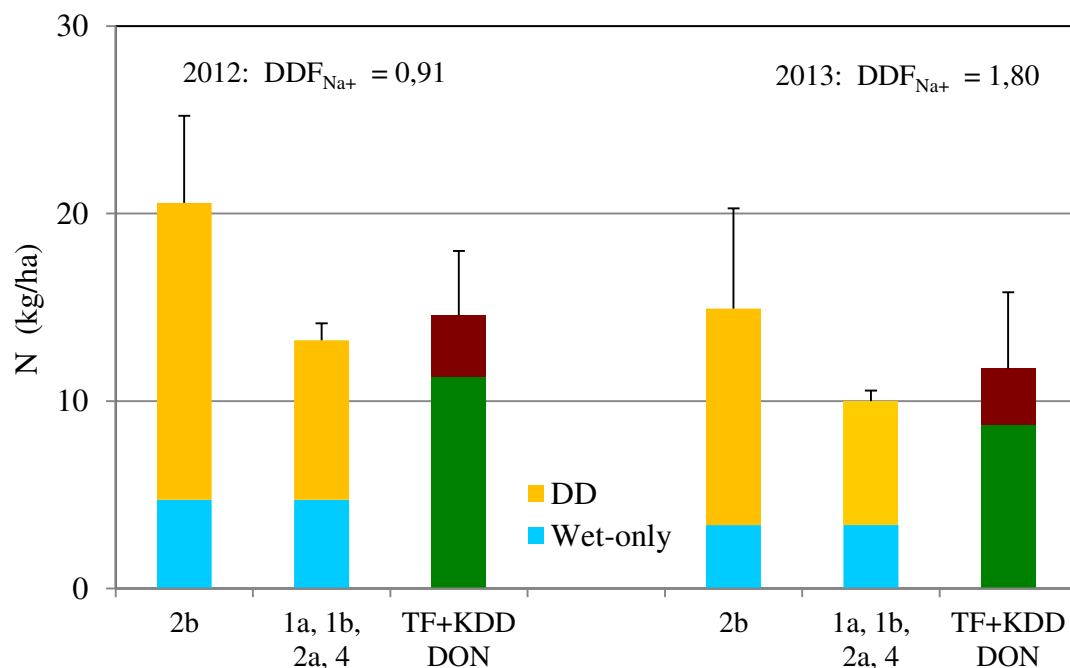


Abb. 12: Gesamtdepositionsraten für DIN im Fichtenbestand am Großen Falkenstein, differenziert nach Freiland- (Wet-only) und Trockendeposition (DD). Links: 08.05.-27.11.2012, rechts: 07.05.-19.11.2013. Zum Vergleich: DIN im Kronendurchlass (TF, grüne Säulen) und Kronendachdifferenz (KDD) für gelösten organischen Stickstoff DON (braun gekennzeichnet).

Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) über sechs Sammler (Modell 2b) bzw. über die mittleren Ergebnisse der Modelle 1a, 1b, 2a und 4.

Für beide Messintervalle gilt trotz unterschiedlicher Flüsse übereinstimmend, dass die Summen aus DIN im Kronendurchlass und der Kronendachdifferenz des DON (Kronendurchlass minus Freilanddeposition) mit  $14,6 (\pm 3,4)$  kg/ha und  $11,7 (\pm 4,1)$  etwas größer, aber nicht unterscheidbar von den Mittelwerten der DIN-Gesamtdeposition der Modelle 1a, 1b, 2a und 4 sind.

### 5.3 Freilanddeposition: Wet-only- versus Bulk-Sammler

Im Jahr 2013 wurde der Freilandniederschlag am Großen Falkenstein sowohl mit Bulk- als auch mit Wet-only-Sammlern aufgefangen. Daraus ergab sich die Möglichkeit, die Bedeutung sedimentierender organischer und anorganischer Stäube für die Freilanddeposition an einem Standort mit relativ hohen Einträgen zu erhellen. Zum anderen sollte geprüft werden, ob die Verwendung von Bulk- statt Wet-only-Daten in Kronenbilanzverfahren zu wesentlichen Abweichungen bei der Stickstoffgesamtdeposition führt.

Aus Tab. 6 wird ersichtlich, dass sich Bulk und Wet-only bei Menge und  $H^+$ -Fluss nicht unterscheiden. Bei  $NO_3-N$  (0,86),  $NH_4-N$  (1,07) und  $SO_4-S$  (0,89) ergeben sich ähnlich hohe Wet-only/Bulk-Quotienten wie bei GAUGER et al. (2008). Mit Ausnahme von  $Na^+$  und  $Cl^-$ , die sehr niedrige Quotienten von 0,43 und 0,50 aufweisen und deutlich kleiner als die entsprechenden Vergleichswerte sind, entsprechen die Quotienten von  $K^+$ ,  $Mg^{2+}$  und  $Ca^{2+}$  ebenso den Werten bei GAUGER et al. (2008) oder liegen im Bereich von einer Standardabweichung um den Mittelwert.

Tab. 6: Quotienten der Depositionsflüsse in Wet-only und Bulk-Sammlern (Bulk/Wet-only bzw. Wet-only/Bulk) am Großen Falkenstein (Gr. Falk.) in der Periode 07.05.-19.11.2013. Zum Vergleich: Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) der entsprechenden Quotienten in Deutschland (GAUGER et al. 2008).

	$H^+$	$Na^+$	$K^+$	$Ca^{2+}$	$Mg^{2+}$	$NH_4-N$	$Cl^-$	$NO_3-N$	$SO_4-S$	$H_2O$
Bulk/Wet-only (Gr. Falk.)	0,97	2,34	1,55	1,25	1,47	0,94	2,02	1,16	1,12	1,01
Wet-only/Bulk (Gr. Falk.)	1,03	0,43	0,65	0,80	0,68	1,07	0,50	0,86	0,89	0,99
Wet-only/Bulk (Gauger)	1,34	0,81	0,62	0,63	0,76	0,95	0,85	0,90	0,82	1,03
$\pm s$	0,62	0,20	0,24	0,24	0,25	0,25	0,19	0,22	0,17	0,29

$Na^+$  (2,34) und  $Cl^-$  (2,02) sind in den Bulk-Sammlern gegenüber den Wet-only-Sammlern ähnlich hoch angereichert, was für ihre gemeinsame Herkunft aus dem Seespray des Atlantiks spricht, allerdings auch deutlich stärker als  $Ca^{2+}$  (1,25),  $Mg^{2+}$  (1,47) und  $K^+$  (1,55). Dies widerspräche der Annahme, dass die Interzeptionsdeposition bzw. der Trockendepositionsfaktor von  $Na^+$  ein geeigneter Proxy für die Partikeldeposition von Alkali- und Erdalkalitionen ist, kann aber im vorliegenden Fall der Kürze des Datensatzes geschuldet sein. Dennoch lässt sich damit die Reaktion der Kronenraummodelle austesten, weil die Zuordnung dieser Kationen zu Trockendeposition oder Kronenaustausch die  $NH_4^+$ -Aufnahme und damit die N-Gesamtdeposition beeinflusst. Für die Messperiode 2013 lag der Trockendepositionsfaktor auf Basis der Bulk-Deposition im Freiland bei nur 0,33 ( $\pm 0,23$ ) verglichen mit 1,80 ( $\pm 0,72$ ) auf Basis der Wet-only-Deposition. Auf die DIN-Gesamtdepositionsraten der Varianten 1a und 1b sowie 4 hatte die Verwendung der Wet-only-Daten keinen Einfluss, obwohl die Reduzierung der geleachten Kationen zwar die DIN-Aufnahme verringerte, die größeren  $NH_4^+$ -Flüsse im Wet-only-Sammler diesen Effekt jedoch minimierten. Der Nettoeffekt war also Null. Nur in den Modellen 2a und 2b erhöhte sich die DIN-Gesamtdeposition um 0,3 bzw. 0,6 kg/ha und damit um weniger als fünf Prozent.

## 6 Gesamtdeposition des reaktiven Stickstoffs im Inneren Bayerischen Wald - Diskussion der Ergebnisse und Modellannahmen

### 6.1 Schätzwerte der DIN-Gesamtdeposition

Für die Bestände der Dauerbeobachtungsflächen des Integrierten Monitorings ergab sich aus den Bilanzierungsansätzen, welche die  $\text{NH}_4^+$ -Retention explizit berechnen, um daraus die Trockendeposition abzuschätzen, folgendes Bild (Tab. 7):

- minimale Gesamtdepositionsraten von 10,3 (B1) und 11,0 kg N/ha/a (F4) lieferte das Modell 1a
- mittlere Gesamtdepositionsraten von 10,9 (B1) und 12,7 kg N/ha/a (F4) lieferten die Modelle 1b und 2a
- maximale Gesamtdepositionsraten von 13,0 (B1) und 16,8 kg N/ha/a (F4) lieferte das Model 2b

Die Modelle 3 und 4 mit abweichenden Verfahren zur Schätzung der Trockendeposition lieferten minimale bis mittlere Schätzwerte.

Tab. 7: Gemessene DIN-Einträge in Freiland und Bestand und berechnete Trockendeposition (DD), Rückhalt in der Krone (CU) und Gesamtdeposition (TD). Mittlere und extreme Jahressummen der Jahre 2003 - 2012 für die Bestände B1 und F4.

			Freiland/ Throughfall	DD Trockene Deposition	CU Kronen- rückhalt	TD Gesamt- deposition
Freiland Bulk	Messung	Mittel	9,3			
Buche B1	Messung	Mittel	9,9			
	1a	Min		0,9	0,4	10,3
	1b, 2a, 3, 4	Mittel		1,6	1,1	10,9
	2b	Max		3,7	3,2	13,0
Fichte F4	Messung	Mittel	9,8			
	1a, 3, 4	Min		1,6	1,4	11,0
	1b, 2a	Mittel		3,4	2,9	12,7
	2b	Max		7,5	7,0	16,8

Dieselbe Abfolge liegt bei den saisonalen Kronenraumbilanzen der Hochlagenfichtenbestände am Großen Falkenstein vor (Tab. 6 und 7, Anhang). In überschlägiger konservativer Extrapolation können für den Großen Falkenstein maximal 22 (2013) und 31 kg/ha/a (2012) als DIN-Gesamtdeposition angenommen werden, im Mittel 17 (2013) und 23 kg/ha/a (2012). Aus dem benachbarten Sumava (CR) werden für 1998 bis 2009 vergleichbare Gesamteinträge von 18 - 20 kg/ha/a in Fichtenbestände auf 1100 - 1300 m ü. NN berichtet (KOPÁČEK und HRUŠKA 2010).

Ausgehend von den Befunden bei ADRIAENSSENS et al. (2013), dass die  $\text{NO}_3^-$ -Aufnahme im Kronenraum wenig relevant ist und die N-Aufnahme auch während des Winterhalbjahrs im Modell zur Überschätzung der DIN-Trockendeposition führt, können die vorliegenden Ergebnisse der Modellvariante 2b tatsächlich als maximale Schätzwerte der regionalen DIN-Gesamtdeposition gelten. Die aus mehreren Modellvarianten gemittelten Schätzwerte dagegen werden wegen ihrer Ähnlichkeit und guten Übereinstimmung mit unabhängigen Messdaten als realistisches Abbild der mittleren Depositionssituation betrachtet.

## 6.2 Schlüsselmechanismen der Modellansätze

Zur Berechnung der Trockendepositionsfaktoren DDF wurde bei allen Beständen  $\text{Na}^+$  genutzt. Sie sind auf Basis der Bulk-Messungen auf einem sehr niedrigen Niveau (Kap. 4.1 und 4.2), in Einzeljahren auch negativ, und lassen nur geringe Unterschiede zwischen den Baumarten erkennen: 0,14 (Buche B1) und 0,19 (Fichte F4). Darüber hinaus sind die Unterschiede zu  $\text{Cl}^-$  und  $\text{SO}_4^{2-}$  sehr gering. Insofern liegen auch keine Differenzen der DDF zwischen  $\text{SO}_4^{2-}$  und  $\text{Na}^+$  vor, die als Faktoren zur Ableitung der gasförmigen Deposition von Stickstoffverbindungen genutzt werden könnten (ULRICH 1991). Auch in den Fichtenhochlagenbeständen am Ruckwiesberg (2012: 0,20; 2013: 0,42) und am Großen Falkenstein (2013: 0,33) waren die  $\text{DDF}_{\text{Na}}$  auf Basis der Bulk-Messung vergleichsweise klein. Mit der Wet-only-Deposition als Bezugsbasis ergab sich im Jahr 2013 ein DDF von 1,8 (Abb. 12, s. o.). Die Leachingverluste aus der Krone erniedrigten sich gleichwohl nur um 0,07 keq/ha, weil auch die Frachten der Basenkationen in der Wet-only-Deposition geringer waren. In der Folge sank der DIN-Rückhalt um maximal 0,05 keq/ha. Dies entspricht den Befunden von ADRIAENSSENS et al. (2013), dass die Verwendung von Wet-only statt Bulk-Deposition eine signifikante, aber kleine Erhöhung der DIN-Retention und -Trockendeposition erzeugt. Allerdings unterliegen die untersuchten Baumbestände in Belgien einem völlig anderen Depositionsregime. Geringe DDF erzeugten in den Modellen 1 und 2 geringe Raten deponierter und höhere Raten geleachter Kationenäquivalente, welche den Rückhalt im Kronenraum CU und dementsprechend die Trockendeposition DD von  $\text{NH}_4^+$  erhöhten. Die im Fichtenbestand F4 gegenüber dem Buchenbestand B1 höhere DIN-Gesamtdeposition (Tab. 7, s. o.) ist bei ähnlichen DDF den mit 0,75 zu 0,33 keq/ha/a höheren Leachingverlusten geschuldet (Tab. 4 und 5, Kap. 4ff).

Bei DRAIJERS und ERISMANN (1995, Modell 1) werden Teilmengen der ausgetauschten Kationen durch geleachte Anionen schwacher Säuren begleitet, welche die Aufnahme von  $\text{NH}_4^+ + \text{H}^+$  drosseln. Das Modell von DE VRIES et al. (2003, Modell 2) stellt die Aufnahme von  $\text{NH}_4^+ + \text{H}^+$  quantitativ auf die Summe geleachter Basenkationen ab und unterstellt dabei, dass in den Wasserfilmen der Kronenoberflächen nur Austausch gegen  $\text{NH}_4^+ + \text{H}^+$  stattfindet. Entsprechende Befunde liegen für Sitka-Fichte (CHIWA et al. 2004) und Buche im Riesengebirge vor (STACHURSKI und ZIMKA 2002). Durch die Nichtberücksichtigung schwacher Säuren verdoppelt sich der DIN-Rückhalt in Modell 2a gegenüber Modell 1a in den Beständen B1 und F4 (Tab. 7, s. o.).

Quantitativ bedeutsamer noch ist die Veränderung des Austauscheffizienzfaktors für  $H^+$  ( $xH$ ), der auf lediglich einen einzigen experimentellen Befund zurückgeht (VAN DER MAAS et al. 1991, zit. in UNECE ICP Forests Manual 2010), von 6 auf 1, dem Ansatz von DE SHRIJVER et al. (2004) folgend: in beiden Modellen (1b, 2b) und für beide Bestände erhöhte sich dadurch die  $NH_4^+$  - Retention um mehr als das Doppelte.

Die Ergebnisse der Modellvarianten 1b, 2a lagen, häufig zusammen mit 1a, 3, 4, über alle Datensätze hinweg sehr eng beieinander, weil die jeweils abweichenden internen Annahmen unter den gegebenen Bedingungen nicht sehr differenzierend wirkten. Die Mittelwerte aus diesen Modellen werden daher als Schätzwerte für die mittlere DIN-Gesamtdeposition angesehen. Die Ergebnisse der Modellvariante 2b, die grundsätzlich am größten waren, werden als maximale Schätzwerte betrachtet. Damit soll den mit dem Filteransatz nicht erfassbaren Stickstoffeinträgen Rechnung getragen werden.

### **6.3 Retention im Kronenraum**

Die Schätzwerte für den DIN-Rückhalt in der Krone (Tab. 7, s. o.) von 0,4 bis 3,2 kg/ha/a (B1) und 1,4 bis 2,9 kg/ha/a (F4) entsprechen den Ergebnissen für einen kanadischen Laubmischwald (STAELENS et al. 2008) mit ähnlich moderater DIN-Freilanddeposition (8 - 9 kg/ha/a) wie am Forellenbach (9 kg/ha/a), ermittelt mit den gleichen Modellansätzen. Sie liegen ebenso im Bereich von Untersuchungsergebnissen zur direkten N-Aufnahme in Assimilationsorgane von 1 - 3 kg/ha/a (BRUMME 1992, GESSLER et al. 2002, SCHMITT et al. 2005, WILSON und TILEY 1998). Niedrigere Aufnahme-raten werden von ADRIAENSSENS et al. (2012) und DAIL et al. (2009) mit 1 - 3 % bzw. 3 - 6% des DIN im Niederschlag berichtet. SIEVERING et al. (2007) ermittelten einen DIN-Rückhalt in und an Fichtenzweigen von 2,5 kg/ha, entsprechend 80% (!) der Gesamtdeposition. FRIEDLAND et al. (1991) bezifferten den Rückhalt im Kronenraum eines subalpinen Fichten-/Tannen-waldes auf 5 kg N/ha/a bei einer Gesamtdeposition von 16 kg/ha/a unter Berücksichtigung von Wolkenwassereinträgen. Aufgrund dessen erscheint der DIN-Rückhalt in der Fichtenkrone von 7 kg/ha/a (F4, Tab. 7, s. o.) und, auf ein Jahr hochgerechnet, von 8 - 12 kg/ha/a (Ruckwiesberg, Großer Falkenstein, Tab. 6 und 7, Anhang) im Modell 2b als sehr hoher Schätzwert für die Aufnahme in die Assimilationsorgane. Allerdings schätzten auch EILERS et al. (1992) Aufnahme-raten bis 9 kg/ha/a für Fichtenaltbestände, extrapoliert aus Versuchen an zehnjährigen Fichten. LOVETT und LINDBERG (1993) fanden beim Vergleich europäischer und nordamerikanischer Untersuchungen DIN-Retentionsraten zwischen 1 und 12 kg/ha/a (vor allem Fichten), gemessen als Differenz zwischen Kronendurchlass und Freilanddeposition. Auch die Walddüngungsexperimente von GAIGE et al. (2007) erbrachten einen Netto-rückhalt von 12 kg/ha/a in einem Fichten-/Hemlocktannenwald, jedoch ohne Partitionierung in die möglichen Pools im Kronenraum.

Die in der vorliegenden Bearbeitung verwendeten Modellansätze (1 und 2) definieren den DIN-Rückhalt über den Kationentausch im Kronenraum, der in erster Linie im Wasserfilm auf und in den Assimilationsorganen stattfinden dürfte. Allerdings ist der

tatsächliche Mechanismus dieser Form der Aufnahme von deponierten Stickstoffverbindungen ungeklärt (SPARKS 2009). Weitere Senkenprozesse wie die Aufnahme in Zweige und Äste (KATZ et al. 1989) oder die Sorption an verholzten Oberflächen (DAIL et al. 2009) sind insofern und insoweit berücksichtigt, als sie mit Kationentausch einhergehen, dürften aber quantitativ insgesamt wenig bedeutsam sein (ADRIAENSSENS et al. 2013, FRIEDLAND et al. 1991). Dagegen ist die stomatäre Aufnahme von N-haltigen Gasen konzeptionell nicht abgebildet.

Der Aufnahme (passiv und aktiv) durch Mikroorganismen und epiphytische Flechten (REINERS und OLSON 1984, DAHLMAN et al. 2004) muss Aufmerksamkeit gewidmet werden, auch wenn ältere Schätzwerte für die DIN-Aufnahme durch epiphytische Flechten bei weniger als 1 kg/ha/a (LANG et al. 1976, FRIEDLAND et al. 1991) liegen. Die DIN-Assimilation von epiphytischen Flechten mit Grünalgen als Photobionten (keine N<sub>2</sub>-Fixierung) wie *Platismatia glauca* (L.) Culb. & Culb., *Hypogymnia physodes* (L.) Nyl., *Evernia prunastri* (L.) Ach. kann in borealen Fichtenbeständen durchaus größer sein als die Aufnahme der Nadeln (JOHANSSON et al. 2010). Diese Arten, die insbesondere an alten Bäumen (FRITZ et al. 2008) vorkommen, sind häufig in den untersuchten Altbeständen am Forellenbach, auf Fichten wie auf Buchen (DIEPOLDER 1992, 1995). Die Aufnahme erfolgt bei diesen Arten bevorzugt als NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, etwa zur Hälfte passiv (DAHLMAN et al. 2004) durch Ionentausch im extrazellulären Raum des Thallus (HAUCK 2010). Sie nehmen jedoch auch NO<sub>3</sub><sup>-</sup> und Aminosäuren (DAHLMAN et al. 2004) auf. Bei geringem atmosphärischem DIN-Eintrag erfolgt die Aufnahme von NH<sub>4</sub><sup>+</sup> und NO<sub>3</sub><sup>-</sup> mit gleich hoher Effizienz (HAUCK 2010), wobei die NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Aufnahme möglicherweise auf den Mykobionten beschränkt ist (PAVLOVA und MASLOV 2005). Auch Experimente an subalpinen Balsamtannen (REINERS und OLSON 1984) ergaben, dass Flechten die Komponenten des Kronenraums mit der größten Influxrate für DIN sein können. Ihre Bedeutung für die hier untersuchten Baumbestände kann nicht geklärt werden. Es ist jedoch anzunehmen, dass Deckung und DIN-Aufnahmerate von epiphytischen Flechten (und Moosen, möglicherweise auch Bakterien) ebenso mit der Höhe zunehmen wie Niederschlagsmenge und DIN-Eintrag (siehe Kap. 5).

## 6.4 DIN-Konversion und DON-Deposition

Der DIN-Eintrag lag unabhängig von den Standortbedingungen bzw. der Baumart im Mittel bei 9 - 10 kg N/ha/a, wobei sich eine Zunahme des NO<sub>3</sub><sup>-</sup> und ein Rückgang des NH<sub>4</sub><sup>+</sup> vom Freiland zum Fichtenbestand F4 erkennen ließen (Abb. 13). Beide Befunde entsprechen Ergebnissen von DE SCHRIJVER et al. (2007) und MUSTAJÄRVI et al. (2008) für Gebiete mit geringer N-Deposition (< 10 kg N/ha/a). Diese Verschiebung deutet auf die biologische Transformation von NH<sub>4</sub><sup>+</sup> hin, könnte aber auch der Interzeption von NO<sub>3</sub><sup>-</sup> bei gleichzeitiger Adsorption und/oder Absorption von NH<sub>4</sub><sup>+</sup> im Kronenraum zuzuordnen sein.

DON erhöhte den N-Gesamteintrag um 0,7 (+/- 0,6) kg/ha/a im Freiland (DC1), um 1,1 (+/-0,6) kg/ha/a im regenerierenden Fichtenbestand (F1), um 2,0 (+/- 0,8) kg/ha/a im Buchenbestand (B1) und um 3,6 (+/- 0,7) kg/ha/a unter Fichte (F4) im Mittel der Jahre

2003 bis 2012 (Abb. 13). Die Anteile des DON am Gesamtstickstoff nehmen daher in dieser Reihenfolge von 7 % auf 27 % zu und sind damit eine nicht zu vernachlässigende Quantität. Die saisonalen DON-Einträge unter Fichte betragen am Ruckwiesberg 1,1 und 1,4 kg N/ha/a (2012, 2012) und am Großen Falkenstein 3,3 und 3,1 kg N/ha/a, entsprechend 12% bzw. 23% und 26% des gemessenen Gesamteintrags.

DON-Einträge von 0,2 - 2,5 kg/ha/a im Freiland entsprechen Literaturangaben für europäische und nordamerikanische Standorte (CAMPBELL et al. 2000, KOPACEK et al. 2009, MUSTAJÄRVI et al. 2008, SOLINGER et al. 2001). Als Quellen können Pollen, Mikroorganismen und oxidierte organische Verbindungen wie Peroxiacetylnitrat (NEFF et al. 2002) angenommen werden, zudem von Bestandesoberflächen verdrifteter DON.

Unter Baumbeständen können die DON-Einträge deutlich größer sein: 4 - 6 kg N/ha/a unter Fichte im benachbarten Sumava (KOPACEK et al. 2009) oder bis 5 kg N/ha/a unter Buche (SOLINGER et al. 2001). Die Applikation von gasförmigen ( $\text{NH}_3$ ) und gelöstem N-Düngern auf Fichte und Kiefer in Schottland führte zur Netto-DON-Produktion von maximal 3 kg/ha/a (CAPE et al. 2010). Dies entsprach weniger als 10% (!) des zusätzlich applizierten reaktiven Stickstoffs. Als Quellen des DON-Eintrags in den Boden über den Bestandesniederschlag werden die atmosphärische Deposition (einschließlich Mikroorganismen, Pollen u.a.), Exsudate aus Assimilationsorganen (DRAAIJERS et al. 1997), die Fäkalien von herbivoren Insekten (LE MELLECC und MICHALZIK 2008, MICHALZIK und STADLER 2005, STADLER et al. 2006) und die Biomasse der von diesen Abfallprodukten und autotroph lebenden Mikroorganismen (MÜLLER et al. 2006) diskutiert.

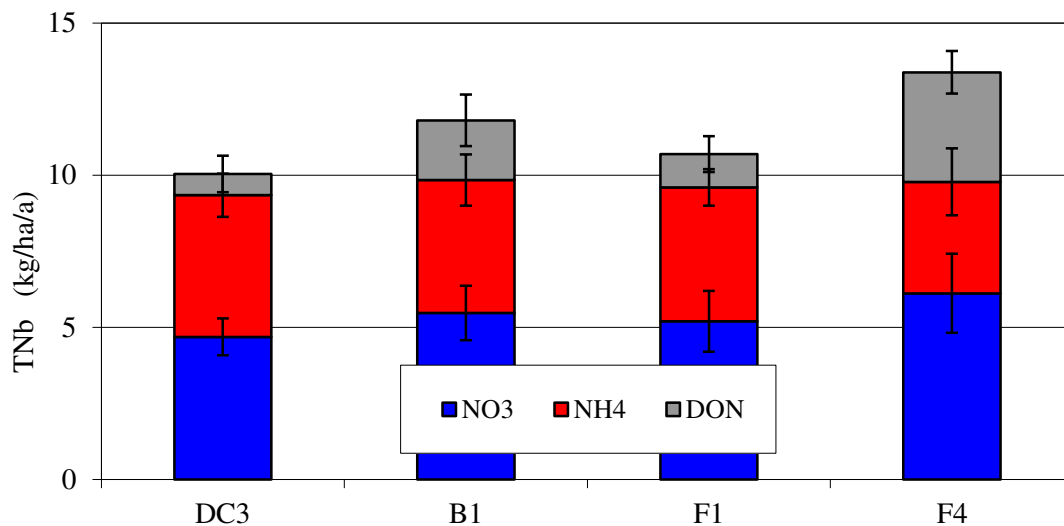


Abb. 13: Mittlere Deposition des analytischen Gesamtstickstoffs ( $\text{TN}_b$ ) mit dem Freiland- und Bestandesniederschlag in den Jahren 2003 bis 2012, getrennt nach DIN und DON.

Anders als im Freilandniederschlag und bedingt durch ihre biologische Herkunft unterliegen die DON-Konzentrationen in den Bestandesniederschlägen einer ausgeprägten Saisonalität: die Maxima werden in beiden Beständen im Sommerhalbjahr erreicht, wobei DON hochsignifikant mit DOC korreliert ist (BEUDERT und BREIT 2010).



Wie in Kapitel 4 und 5 vorgestellt, entsprach die Summe aus DIN-Kronendurchlass und Kronendachdifferenz (Netto-Kronendurchlass) des DON in allen Beständen der mittleren berechneten Gesamtdeposition recht genau. Dies wirft die Frage auf, ob die berechnete DIN-Aufnahme (im Austausch gegen Kationen) auch die Konversion in DON enthält oder sie abdeckt. Bereits FRIEDLAND et al. (1991) vermuteten, dass die Zunahme des DON im Kronendurchlass eines subalpinen Fichten-/Tannenwaldes in einem unmittelbaren Zusammenhang mit der gleich großen Abnahme des  $\text{NH}_4\text{-N}$  von Gesamtdeposition (einschließlich Gas- und Wolkenröpfcheninterzeption) zu Kronendurchlass stehen könnte. Auch in gering aus der Atmosphäre belasteten finnischen Fichten- und Kiefernwäldern, in denen DON 36% des Eintrags mit dem Kronendurchlass ausmacht, war DON im Kronendurchlass signifikant positiv mit DIN im Freilandniederschlag korreliert,  $\text{NH}_4\text{-N}$  jedoch signifikant negativ (MUSTA-JÄRVI et al. 2008). FERM und HULTBERG (1999) fanden ebenfalls enge Korrelationen zwischen partikulär und gasförmig deponiertem  $\text{NH}_Y$  und der Kronendachdifferenz des DON in schwedischen Fichtenwäldern. Alle Befunde sind so zu deuten, dass insbesondere  $\text{NH}_4^+$  im Kronenraum in DON umgewandelt wird, wobei diese Umwandlung offensichtlich innerhalb weniger Tage stattfinden kann (GAIGE et al. 2007). Daraus kann auch für das Untersuchungsgebiet geschlossen werden, dass die Höhe des DON-Eintrags von der Höhe des gemessenen DIN-Eintrags abhängt, der als Schätzer für den tatsächlichen DIN-Eintrag anzusehen ist. Für die Frage nach der auffälligen quantitativen Koinzidenz über Baumarten und Standorte hinweg lassen sich daraus jedoch keine Antworten ableiten.

Die DOC/DON-Verhältnisse lagen bereits im Freilandniederschlag des Forellenbachgebiets (DC3) mit  $19 \pm 9$  (Tab. 8) deutlich über Angaben bei SOLINGER et al. (2001, 10 - 15) und CAMPBELL et al. (2000, 7 - 9). Im Kronendurchlass entsprachen sie mit  $25 \pm 10$  (B1) bis  $37 \pm 6$  (F4) (Tab. 8) den C/N-Verhältnissen in Buchenblättern ( $23 \pm 2$ ) und den ersten vier Nadeljahrgängen von Fichten ( $30 \pm 3$  bis  $41 \pm 3$ ). Im Kronendurchlass der Fichtenhochlagenwälder erreichten sie ebenfalls Werte zwischen 27 und 35.

Tab. 8: DOC/DON-Quotienten im Stoffeintrag aus der Atmosphäre (2003 - 2012) und C/N-Verhältnisse in Buchenblättern (B1, 2003 - 2012) und Fichtennadeln unterschiedlichen Alters (F1, 1995). In Klammern: Standardabweichung

	DC3	B1	F1	F4
Deposition	19 (9)	25 (10)	29 (13)	37 (6)
Blätter		23 (2)		
Nadeljahrgang				
1			30 (3)	
2			31 (3)	
3			36 (5)	
4			41 (3)	

Im Vergleich zu Angaben bei CLEVELAND und LIPTZIN (2007) lagen sie bereits im Freilandniederschlag (DC3) weit über den mittleren Verhältnisse bei Bakterien (6,5) und Pilzen (5 - 17). Dagegen entsprachen die DON/DP-Verhältnisse (nicht dargestellt) als Proxy für die DON/DOP-Verhältnisse mit 4 im Freiland (DC3) sowie 7 (B1) und 21 (F4) den mittleren N/P-Verhältnissen bei Bakterien (7) und Pilzen (15) deutlich besser. Dies darf zumindest als Hinweis auf Mikroorganismen (Bakterien, Algen, Pilze, Mikroflechten) als Quelle des DON im Kronendurchlass gelten. Der erkennbare Kohlenstoffüberschuss in den Einträgen kann gelösten organischen Verbindungen aus pflanzlichen Geweben (Exsudaten) bzw. von pflanzlichen Oberflächen zugeordnet werden.

Die Qualität dieser Aussagen leidet jedoch eindeutig unter der häufigen Unterschreitung der Nachweisgrenze bei Gesamt- und Phosphatphosphor. Zudem beinhaltet der Betrag des DON alle analytischen Fehler bei der Bestimmung des Gesamtstickstoffs mittels Elementaranalyse und der DIN-Komponenten mittels Ionenchromatographie.

## **6.5 Schätzwerte der N-Gesamtdeposition**

Insgesamt deuten diese Ergebnisse auf die maßgebliche Bedeutung von Mikroorganismen für die Bildung des DON im Kronenraum hin. Dies entspräche dann auch der Vorstellung eines höchst konservativen Umgangs von Bäumen mit Stickstoff, der eine Abgabe von bereits assimiliertem Stickstoff in Höhe von 3 bzw. 7 kg/ha/a (Tab. 7, Kap. 6.1), entsprechend 50 - 100% des jährlichen Nettobedarfs, unwahrscheinlich macht.

Für die Abschätzung der Gesamtdeposition folgt daraus, dass die Kronendachdifferenz des DON als umgewandelter, deponierter DIN angesehen werden kann und dann zum gemessenen bzw. abgeleiteten DIN-Eintrag zu addieren ist. Dies setzt allerdings voraus, dass diese Transformation nicht implizit über die Ionenaustauschalgorithmien der Modelle abgedeckt ist (siehe Kap. 6.4).

Für die Bestände im Forellenbachgebiet ergeben sich damit als Summe aus mittleren berechneten DIN-Gesamtdepositionen (Tab. 7, Kap. 6.1) und Kronendachdifferenzen des DON (Tab. 4 und 5, Kap. 4) mittlere Gesamtdepositionen für die Jahre 2003 bis 2012 von 12 kg/ha/a (B1) und 15 kg/ha/a (F4). Angewendet auf die maximalen Modellwerte könnten dementsprechend 14 kg/ha/a (B1) und 20 kg/ha/a (F4) als obere Schätzwerte für den Gesamteintrag angenommen werden.

Die modellierten Gesamtdepositionsraten der EMEP-Gitterfläche 71/48 mit dem Forellenbachgebiet stützen mit 14 ( $\pm 1$ ) kg N/ha/a (2002 - 2011) die Abschätzungen aus den Kronenraumbilanzmodellen sehr gut ([http://webdab.emep.int/Unified\\_Model\\_Results/](http://webdab.emep.int/Unified_Model_Results/)).

Für die Fichtenbestände in den Kammlagen des Falkensteinmassivs ergeben sich mit dieser Vorgehensweise extrapolierte N-Gesamtdepositionen bis zu 29 und 23 kg/ha/a (2012, 2013). Sie sind als lokale Maxima mit minimaler Flächenbedeutung anzusehen, die aus der besonderen Exponiertheit gegenüber anströmenden Luftmassen resultieren.

## 7 Zusammenfassung

Im Untersuchungszeitraum 2003 - 2012 unterschieden sich die DIN-Einträge unter Fichte und Buche im Höhenbereich zwischen 770 und 825 m ü. NN mit jeweils etwa 10 kg/ha/a nicht von einander und nicht von der Niederschlagsdeposition im Freiland. Die hinter diesem Nettoergebnis herrschenden Prozesse wie die trockene Deposition von stickstoffhaltigen Gasen und Partikeln in den Kronenraum und die physikalischen und biologischen Austausch- und Umsetzungsprozesse sind somit nicht augenscheinlich. DON erreichte zwischen 7% (Freiland) und 27% (Fichte F4) des gesamten gemessenen Stickstoffeintrags. Zur Abschätzung des Gesamteintrags wurden daher verschiedene Kronenraumbilanzverfahren (v.a. DE VRIES et al. 2003, DRAIJERS et al. 1995) auf die Daten im Integrierten Ökosystemmonitoring am Forellenbach und im saisonalen Messprogramm am Großen Falkenstein angewendet. Sie basieren auf dem Filteransatz (URICH 1983) mit einem einheitlichen Trockendepositionsfaktor für Partikel und der Annahme, dass  $\text{NO}_3^-$  ohne Interaktion im Kronenraum den Boden erreicht. Sie unterscheiden sich in den Ansätzen zur Aufnahme bzw. dem Rückhalt von  $\text{NH}_4^+$  über Ionentausch im Kronenraum. Die Vernachlässigung schwacher Säuren in der Ionenbilanz (DE VRIES et al 2003) und gleiche Austauscheffizienzen von  $\text{NH}_4^+$  und  $\text{H}^+$  (DE SHRIJVER et al. 2004) führten dabei zum maximalen Stickstoffrückhalt im Kronenraum und damit maximaler Trockendeposition.

Die mittleren Modellwerte für die DIN-Gesamtdepositionen im Untersuchungszeitraum lagen im Buchenbestand B1 (820 m ü. NN) bei 10 bis 13 kg/ha/a und im Fichtenbestand F4 (787 m ü. NN) bei 11 bis 17 kg/ha/a, während die Maxima für Einzeljahre 15 kg/ha/a unter Buche B1 und 22 kg/ha/a unter Fichte F4 betragen.

Dieselben Kronenraumbilanzverfahren wurden auf die Ergebnisse der Fichtenaltbestände am Ruckwiesberg (1200 m ü. NN) und am Großen Falkenstein (1310 m ü. NN) angewendet. Die DIN-Einträge mit dem Kronendurchlass von 8 bzw. 11 kg/ha (2012) und 10 bzw. 9 kg/ha (2013) waren zwei- bis dreimal größer als im Freiland. Sie verdeutlichen die enorme Bedeutung der Interzeption insbesondere von Nebel- und Wolkentropfen für den Wasser- und Stoffeintrag. Die berechneten sommerlichen DIN-Gesamtdepositionen lagen am Ruckwiesberg bei maximal 14 (2012) bzw. 17 kg/ha (2013), am Großen Falkenstein bei maximal 21 (2012) bzw. 15 kg/ha (2013). Die Verwendung von Wet-only- statt Bulk-Daten für den Eintrag im Freiland brachte nur marginale Veränderungen bei der DIN-Trockendeposition am Großen Falkenstein.

Sowohl in den gering befruchteten Beständen am Unterhang als auch in den exponierten Fichtenbeständen der Hochlagen entsprach die Summe aus DIN im Kronendurchlass und DON im Netto-Kronendurchlass (Kronendachdifferenz) der mittleren modellierten DIN-Gesamtdeposition. Indizien für die Herkunft des DON aus Bakterien und Pilzen ergaben sich aus sehr engen DON/DP-Relationen, während relativ große DOC/DON-Quotienten auf die Beteiligung von ab- bzw. ausgewaschenen pflanzlichen Verbindungen hinwiesen. DON kann daher als DIN angenommen werden, der im Kronenraum von anderen Organismen als den Bäumen umgewandelt wird.

Die in den Kronenraumbilanzmodellen über Ionentausch ermittelten maximalen DIN-Retentionsraten von 3 (Buche B1) bis 7 kg/ha/a (Fichte F4) können auch im regionalen, moderaten Depositionsregime als Summe der Aufnahme in die Assimilationsorgane der Bäume, in epiphytische Flechten und Mikroorganismen angesehen und damit der trockenen Deposition zugerechnet werden.

Für die Fichtenbestände in den Kammlagen des Falkensteinmassivs ergaben sich mit dieser Vorgehensweise extrapolierte N-Gesamtdepositionen bis zu 29 und 23 kg/ha/a (2012, 2013). Sie sind als lokale Maxima mit minimaler Flächenbedeutung anzusehen, die aus der besonderen Exponiertheit gegenüber anströmenden Luftmassen resultieren. Für die Bestände in den Hanglagen des Forellenbachgebietes wurden mittlere DIN-Gesamtdepositionen (2003 - 2012) von 12 kg/ha/a (Buche) und 15 kg/ha/a (Fichte) ermittelt. Sie können als robuste Schätzwerte für die reale Gesamtdeposition angesehen werden, die in den modellierten DIN-Einträgen (2002 - 2011) für die EMEP-Gitterfläche 71/48 von 14 ( $\pm 1$ ) kg/ha/a ([http://webdab.emep.int/Unified\\_Model\\_Results/](http://webdab.emep.int/Unified_Model_Results/)) gute Unterstützung finden.

## Literatur

- 1) ADRIAENSSENS, S., STAELENS, J., BAETEN, L., VERSTRAETEN, A., BOECKX, P., SAMSON, R. and VERHEYEN, K.: Influence of canopy budget model approaches on atmospheric deposition estimates to forests. *Biogeochemistry* 116, 215-229 (2013).
- 2) ADRIAENSSENS, S., STAELENS, J., WUYTS, K., SAMSON, R., VERHEYEN, K. and BOECKX, P.: Retention of dissolved inorganic nitrogen by foliage and twigs of four temperate tree species. *Ecosystems* 15, 1093-1107 (2012).
- 3) BEUDERT, B. und BREIT, W.: Bodenchemische Veränderungen als Folge anthropogener Belastungen und natürlicher Störungen. Fkz. 351 01 012 des Umweltbundesamtes; Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald, Grafenau (2013).
- 4) BEUDERT, B. und BREIT, W.: Horizontaler Niederschlag, nasse und feuchte Deposition im Inneren Bayerischen Wald - erste Ergebnisse. Fkz. 351 01 012 des Umweltbundesamtes; Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald, Grafenau (2012).
- 5) BEUDERT, B. und BREIT, W.: Hydrochemische Trends und Versauerungsmechanismen im Forellenbachgebiet. Fkz. 351 01 012 des Umweltbundesamtes; Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald, Grafenau (2011).
- 6) BEUDERT, B. und BREIT, W.: Untersuchungen zum Stickstoffeintrag und zum wassergebundenen Stickstoffhaushalt des Forellenbachgebiets. Fkz. 351 01 012 des Umweltbundesamtes; Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald, Grafenau (2010).
- 7) BEUDERT, B. und BREIT, W.: Zwölf Jahre Integrated Monitoring Programm an der Messstelle Forellenbach im Nationalpark Bayerischer Wald. Fkz. 351 01 012 des Umweltbundesamtes; Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald, 307 S., Grafenau (2004).
- 8) BEUDERT, B., BREIT, W., DIEOLDER, U. und KAISER, M.: Errichtung und Betrieb einer Messstelle für das ECE-Projekt Integrated Monitoring im Rahmen der ECE-Luftreinhaltekonvention. Abschlussbericht zum F+E - Vorhaben 104 02 643 des Umweltbundesamtes. Bayerische Landesanstalt für Wald und Forstwirtschaft, Freising (1994).
- 9) BOBBINK, R. and HETTELINGH, J.-P. (eds.): Review and revision of empirical critical loads and dose-response relationships. RIVM report: 680359002, National Institute for Public Health and the Environment (RIVM), Bilthoven, The Netherlands, [www.rivm.nl/cce](http://www.rivm.nl/cce) (2011).
- 10) BOUYA, D., VAN VUUREN, D. P., WEISSEN, F. and VAN PRAAG, H. J.: Needle permeability of Norway spruce (*Picea abies* (L.) Karst.) as influenced by magnesium nutrition. *Belgian Journal of Botany* 132, 105-118 (1999).
- 11) BRUMME, R., LEIMCKE, U. und MATZNER, E.: Interception and uptake of  $\text{NH}_4$  and  $\text{NO}_3$  from wet deposition by above - ground parts of young beech (*Fagus sylvatica* L.) trees. *Plant and Soil* 142: 273-279 (1992).
- 12) CAMPBELL, J.L., HORNBECK, J.W., MCDOWELL, W.H, BUSO, D.C., SHANLEY, J.B. and LIKENS, G.E.: Dissolved organic nitrogen budgets for upland, forested ecosystems in New England. *Biogeochemistry* 49, 123-142 (2000).
- 13) CAPE, J.N., SHEPPARD, L.J., CROSSLEY, A., VAN DIJK, N. and TANG, Y.S.: Experimental field estimation of organic nitrogen formation in tree canopies. *Environmental Pollution* 158, 2926-2933 (2010).
- 14) CHIWA, M., CROSSLEY, A., SHEPPARD, L. J., SAKUGAWA, H. and CAPE, J. N.: Throughfall chemistry and canopy interactions in a Sitka spruce plantation sprayed with six different simulated polluted mist treatments. *Environmental Pollution* 127, 57-64 (2004).
- 15) CLEVELAND, C.C. and LIPTZIN, D.: C:N:P stoichiometry in soil: is there a "Redfield ratio" for the microbial biomass? *Biogeochemistry* 85, 235-252 (2007).
- 16) DAHLMAN, L., PERSSON, J., PALMQVIST, K. and NÅSHOLM, T.: Organic and inorganic uptake in lichens. *Planta* 219, 459-467 (2004).
- 17) DAIL, D.B., HOLLINGER, D.Y., DAVIDSON, E.A., FERNANDEZ, I., SIEVERING, H.C., SCOTT, N.A. et al.: Distribution of nitrogen-15 tracers applied to the canopy of a mature spruce-hemlock stand, Howland, Maine, USA. *Oecologia* 160, 589-599 (2009).
- 18) DE SCHRIJVER, A., GEUDENS, G., AUGUSTO, L., STAELENS, J., MERTENS, J., WUYTS, K., GIELIS, L. and VERHEYEN, K.: The effect of forest type on throughfall deposition and seepage flux: a review. *Oecologia* 153, 663-674 (2007).

- 19) DE SCHRIJVER, A., NACHTERGALE, L., STAELENS, J., LUYSSAERT, S. and DE KEERSMAEKER, L.: Comparison of throughfall and soil solution chemistry between a high-density Coarsian pine stand and a naturally regenerated silver birch stand. *Environmental Pollution* 131, 93-105 (2004).
- 20) DE VRIES, W., REINDS, G.J. and VEL, E.: Intensive monitoring of forest ecosystems in Europe 2: Atmospheric deposition and its impact on soil solution chemistry. *Forest Ecology and Management* 174, 97-115 (2003).
- 21) DIEPOLDER, U.: Ergebnisse der Flechtenkartierung im Forellenbachgebiet 1991. Unveröffentlichter Bericht. Grafenau (1992).
- 22) DIEPOLDER, U.: Ergebnisse der Flechtenkartierung im Forellenbachgebiet 1994. Unveröffentlichter Bericht. Grafenau (1995).
- 23) DRAAIJERS, G. P. J., ERISMAN, J. W., VAN LEEUWEN, N. F. M., RÖMER, F. G., TE WINKEL, B. H., VELTKAMP, A. C., VERMEULEN, A. T. and WYERS, G. P.: The impact of canopy exchange on differences observed between atmospheric deposition and throughfall fluxes. *Atmospheric Environment* 31, 387-397 (1997).
- 24) DRAAIJERS, G. and ERISMAN, J.W.: A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water Air Soil Pollution* 85, 2253-2258 (1995)
- 25) EILERS, G., BRUMME, R. und MATZNER, E.: Above-ground N-uptake from wet deposition by Norway spruce (*Picea abies* Karst.). *Forest Ecology and Management*. 51, 239-250 (1992).
- 26) FERM, M. and HULTBERG, H.: Dry deposition and internal circulation of nitrogen, sulphur and base cations to a coniferous forest. *Atmospheric Environment* 33, 4421-4430 (1999).
- 27) FLECHARD, C.R., NEMITZ, E., SMITH, R.I., FOWLER, D., VERMEULEN, A.T. et al.: Dry deposition of reactive nitrogen in European ecosystems: a comparison of inferential models across the NitroEurope network. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11, 2703-2728 (2011)
- 28) FRIEDLAND, A.J., MILLER, E.K., BATTLES, J.J. and THORNE, J.F.: Nitrogen deposition, distribution and cycling in a subalpine spruce-fir forest in the Adirondacks, New York, USA. *Biogeochemistry* 14, 31-55 (1991).
- 29) FRITZ, O., NIKLASSON, M. and CHURSKI, M.: Tree age is a key factor for the conservation of epiphytic lichens and bryophytes in beech forests. *Appl. Veg. Sci.* 12, 93-106 (2008).
- 30) GAIGE, E., DAIL, D.B., HOLLINGER, D.Y., DAVIDSON, E.A., LEE, J.T., FERNANDEZ, I.F., SIEVERING, H., RODRIGUES, C., HUGHES, H., WHITE, A. and HALTEMAN, W.: Changes in canopy processes following whole-forest canopy nitrogen fertilization of a mature spruce-hemlock forest. *Ecosystems* 10, 1133-1147 (2007).
- 31) GAUGER, T., HAENEL, H.-D., RÖSEMANN, C., NAGEL, H.-D., BECKER, R., KRAFT, P., SCHLUTOW, A., SCHÜTZE, G. WEIGELT-KIRCHNER, R. und ANSHELM, F.: Nationale Umsetzung UNECE-Luftreinhaltekonvention (Wirkungen). Teil 2: Wirkungen und Risikoabschätzungen, Critical Loads, Biodiversität, Dynamische Modellierung, Critical Levels Überschreitungen, Materialkorrosion. UBA-Texte 39/08. <http://www.umweltbundesamt.de> (2008).
- 32) GESSLER, A., RIENK, M. and RENNENBERG, H.: Stomatal uptake and cuticular adsorption contribute to dry deposition of NH<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> to needles of adult spruce (*Picea abies*) trees. *New Phytologist* 156, 179-194 (2002).
- 33) GESSLER, A., RIENK, M. and RENNENBERG, H.: Stomatal uptake and cuticular adsorption contribute to dry deposition of NH<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> to needles of adult spruce (*Picea abies*) trees. *New Phytologist* 156, 179-194 (2002).
- 34) HAUCK, M.: Ammonium and nitrate tolerance in lichens. *Environmental Pollution* 158, 1127-1133 (2010).
- 35) HOLWERDA, F., BURKARD, R., EUGSTER, W., SCATENA, F.N., MEEESTERS, A.G.C.A. and BRUIJNZEEL, L.A.: Estimating fog deposition at a Puerto Rican elfin cloud forest site: comparison of the water budget and eddy covariance methods. *Hydrological Processes* 20, 2669-2692 (2006).
- 36) JOHANSSON, O., NORDIN, A., OLOFSON, J. and PALMKVIST, K.: Responses of epiphytic lichens to an experimental whole-tree nitrogen-deposition gradient. *New Phytologist* 188, 1075-1084 (2010).
- 37) KATZ, C., OREN, R., SCHULZE, E.D. and MILBURN, J.A.: Uptake of water and solutes through twigs of *Picea abies* (L.) Karst. *Trees* 3, 33-37 (1989).
- 38) KIESE, R., HEINZELLER, C., WERNER, C., WOCHLE, S., GROTE, R. and BUTTERBACH-BAHL, K.: Quantification of nitrate leaching from German forest ecosystems by use of a process oriented biogeochemical model. *Environmental Pollution*, 159, 3204-3214 (2011).

- 39) KOPÁČEK, J. and HRUŠKA, J.: Reconstruction of acidic deposition in the catchments of Plešné and Čertovo lakes (the Bohemian Forest). *Silva Gabreta* 16, 149-163 (2010).
- 40) KOPÁČEK, J., TUREK, J., HEJZLAR, J. and ŠANTRŮČKOVÁ, H.: Canopy leaching of nutrients and metals in a mountain spruce forest. *Atmospheric Environment* 43, 5443–5453 (2009).
- 41) LANG, G.E., REINERS, W.A. and HEIER, R.K.: Potential alteration of precipitation chemistry by epiphytic lichens. *Oecologia* 25, 229-241 (1976).
- 42) LANGUSCH, J.J., BORKEN, W., ARMBRUSTER, M., DISE, N.B. and MATZNER, E.: Canopy leaching of cations in Central European forest ecosystems – a regional assessment. *J. Plant Nutr. Soil Sci.* 166, 168-174 (2003).
- 43) Le MELLEC, A. and MICHALZIK, B.: Impact of a pine lappet (*Dendrolimus pini*) mass outbreak on C and N fluxes to the forest floor and soil microbial properties in a Scots pine forest in Germany. *Canadian Journal of Forest Research* 38, 1829-1841(2008).
- 44) LOVETT, G.M. and LINDBERG, S.E.: Atmospheric deposition and canopy interactions of nitrogen in forests. *Can J For Res* 23, 1603-1616 (1993).
- 45) MÄÄTTÄ, A., SALMI, T., ANTTILA, P. and RUOHO-AIROLA, T.: MAKESENS 1.0. EXCEL template for the calculation of trend statistics of annual time series. Finnish Meteorological Institute, Helsinki, Finland (2002).
- 46) MICHALZIK, B. and STADLER, B.: Importance of canopy herbivores to dissolved and particulate organic matter fluxes to the forest floor. *Geoderma* 127, 227-236 (2005).
- 47) MÖLLER, D.: Luft: Chemie, Physik, Biologie, Reinhaltung, Recht. Band 1, Walter de Gruyter, Berlin, ISBN 3-11-016431-0 (2003).
- 48) MÜLLER, T., STROBEL, K., ULRICH, A.: Microorganisms in the phyllosphere of temperate forest ecosystems in a changing environment. In: BAILEY, M. J., LILLEY, A. K., TIMMS-WILSON, T.M., SPENCER-PHILLIPS, P. T. N. (Eds.): *Microbial Ecology of Aerial Plant Surfaces*. Ch. 4, pp. 51-65. CAB International, Wallingford, UK. (2006).
- 49) MUSTAJÄRVI, K., MERILÄ, P., DEROME, J., LINDROOS, A.-J., HELMISAARI, H.-S., NÖJD, P. and UKONMAANAHO, L.: Fluxes of dissolved organic and inorganic nitrogen in relation to stand characteristics and latitude in Scots pine and Norway spruce stands in Finland. *Boreal Environment Research* 13 (suppl.): 3-21 (2008).
- 50) NEFF, J. C., HOLLAND, E. A., DENTENER, F. J., MCDOWELL, W. H. and RUSSELL, K. M.: The origin, composition and rates of organic nitrogen deposition: A missing piece of the nitrogen cycle? *Biogeochemistry* 57/58, 99–136 (2002).
- 51) PAVLOVA, E.A. and MASLOV, A.I.: Nitrate uptake by isolated bionts of the lichen *Parmelia sulcata*. *Russian Journal of Plant Physiology* 55, 475–479 (2005)
- 52) REINERS, W.A. and OLSON, R.K.: Effects of canopy components on throughfall chemistry: an experimental-analysis. *Oecologia* 63, 320–30 (1984).
- 53) SCHMITT, M., THÖNI, L., WALDNER, P. AND THIMONIER, A.: Total deposition of nitrogen on Swiss long-term forest ecosystem research (LWF) plots: comparison of the throughfall and the inferential method. *Atmospheric Environment* 39, 1079-1091 (2005).
- 54) SIEVERING, H., TOMASZEWSKI, T. and TORIZZO, J.: Canopy uptake of atmospheric N deposition at a conifer forest: part I -canopy N budget, photosynthetic efficiency and net ecosystem exchange. *TELLUS* 59B, 483-492 (2007).
- 55) SOLINGER, S., KALBITZ, K. and MATZNER, E.: Controls on the dynamics of dissolved organic carbon and nitrogen in a Central European deciduous forest. *Biogeochemistry* 55, 327-349 (2001).
- 56) SPARKS, J.P.: Ecological ramifications of the direct foliar uptake of nitrogen. *Oecologia* 159, 1-13 (2009).
- 57) STACHURSKI, A. and ZIMKA, J. R.: Atmospheric deposition and ionic interactions within a beech canopy in the Karkonosze Mountains. *Environmental Pollution* 118, 75–87 (2002).
- 58) STADLER, B., MÜLLER, T. and ORWIG, D.: The ecology of energy and nutrient fluxes in hemlock forests invaded by hemlock woolly adelgid. *Ecology* 87: 1792-1804 (2006).
- 59) STAELENS, J., HOULE, D., DE SHRIJVER, A. NEIRYNCK, J. and VERHYEN, K.: Calculating dry deposition and canopy exchange with the canopy budget model: review of assumptions and application to two deciduous forest. *Water Air Soil Pollution* 191, 149-169 (2008).
- 60) TEICHMANN, U.: Die Ermittlung des Gebietsniederschlags zur Lösung hydrologischer Bilanzen. Schriftenreihe Wasserhaushalt und Stoffbilanzen im naturnahen Einzugsgebiet Große Ohe. Heft 1. Nationalparkverwaltung Bayerischer Wald, Grafenau (1984).

- 61) THIMONIER, A., SCHMITT, M., WALDNER, P. and RIHM, B.: Atmospheric deposition on Swiss long-term forest ecosystem research (LWF) plots. *Environmental Monitoring and Assessment* 104, 81-118 (2008).
- 62) UBA: Emissionen ausgewählter Luftschadstoffe.  
[http://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/384/bilder/dateien/2\\_abb\\_emi-ausgew-luftschadst\\_2013-09-30\\_neu.pdf](http://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/384/bilder/dateien/2_abb_emi-ausgew-luftschadst_2013-09-30_neu.pdf) (2013).
- 63) UKONMAANAHO, L. and STARR, M.: Major nutrients and acidity: budgets and trends at four remote boreal stands in Finland during the 1990s. *Science of the Total Environment* 297, 21-41 (2002).
- 64) ULRICH, B.: Interaction of forest canopies with atmospheric constituents: SO<sub>2</sub>, alkali and earth alkali cations and chloride. In: ULRICH, B. and PANKRATH, J. [Eds.]: *Effects of accumulation of air pollutants in forest ecosystems*. Reidel Publishing Company. Dordrecht-Boston-London, 33-45 (1983).
- 65) ULRICH, B.: Rechenweg zur Schätzung der Flüsse in Waldökosystemen. Identifizierung der sie bedingenden Prozesse. In: *Beiträge zur Methodik der Waldökosystemforschung*. Ber. Forsch. Waldökosysteme, Reihe B, Bd. 24, 204-210 (1991).
- 66) UN ECE: Manual on methodologies for Mapping Critical Loads/Levels and geographical areas where they are exceeded. Umweltbundesamt Texte 71/96, Berlin (1996)
- 67) UNECE ICP FORESTS: Manual on methods and criteria for harmonized sampling, assessment, monitoring and analysis of the effects of air pollution on forests. Part XIV-Sampling and Analysis of Deposition. <http://icp-forests.net/page/icp-forests-manual> (2010).
- 68) WILSON, E.J. and TILEY, C.: Foliar uptake of wet-deposited nitrogen by Norway spruce: an experiment using <sup>15</sup>N. *Atmospheric Environment* 33, 513-518 (1998).
- 69) ZHANG, L., MORAN, M.D., MAKAR, P.A., BROOK, J.R. and GONG, S.: Modelling gaseous dry deposition in AURAMS: a unified regional air-quality modelling system. *Atmospheric Environment* 36, 537-560 (2002).
- 70) ZIEGLER, A.D., GIAMBELLUCA, T.W., NULLET, M.A., SUTHERLAND, R.A., TANTASARIN, C., VOGLER, J.B. and NEGISHI, J.N.: Throughfall in an evergreen-dominated forest stand in northern Thailand: Comparison of mobile and stationary methods. *Agric. and Forest Meteorology* 149, 373-384 (2009).
- 71) ZIMMERMANN, F., PLESSOW, K., QUECK, R., BERNHOFER, C. and MATSCHULLAT, J.: Atmospheric N- and S-fluxes to a spruce forest – Comparison of inferential modelling and the throughfall method. *Atmospheric Environment*, 40, 4782-4796 (2006).



## Anhang

Tab. 1:	Jährliche Depositionsraten (keq/ha/a) im Freiland (Niederschlagsdeposition BD) und im Buchenbestand B1 (Kronendurchlass und Stammablauf TF+SF) sowie Mittelwerte und Standardabweichungen ( $\pm s$ ) für die Teilzeiträume 1993 - 2002 und 2003 - 2012. ....	40
Tab. 2:	Ergebnisse der Kronenraumbilanzierung für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) im Buchenbestand B1: Jahresraten für Rückhalt im Kronenraum CU, Trockendeposition DD und Gesamtdeposition TD (keq/ha/a) für den Zeitraum 1991 - 2012 (Modelle 1 und 2). ....	41
Tab. 2a:	Ergebnisse der Kronenraumbilanzierung für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) im Buchenbestand B1: Jahresraten für Rückhalt im Kronenraum CU, Trockendeposition DD und Gesamtdeposition TD (keq/ha/a) für den Zeitraum 2003 - 2012 (Modelle 3 und 4) ....	41
Tab. 3:	Jährliche Depositionsraten (keq/ha/a) im Freiland (Niederschlagsdeposition BD) und im Fichtenbestand F4 (Kronendurchlass TF) sowie Mittelwerte und Standardabweichungen ( $\pm s$ ) für die Jahre 2003 - 2012. ....	42
Tab. 3a:	Ergebnisse der Kronenraumbilanzierung für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) im Fichtenbestand F4: Jahresraten für Rückhalt im Kronenraum CU, Trockendeposition DD und Gesamtdeposition TD (keq/ha/a) für den Zeitraum 2003 - 2012. Grau hinterlegt: Ersatz negativer Werte durch Mittelwert. ....	42
Tab. 4:	Depositionsraten (keq/ha) im Freiland (Bulk Deposition BD, Nasse Deposition WD) und im Kronendurchlass des Fichtenbestands (TF) am Großen Falkenstein. ....	43
Tab. 5:	Depositionsraten (keq/ha) im Freiland (Bulk Deposition BD) und im Kronendurchlass des Fichtenbestands (TF) am Ruckwiesberg. ....	43
Tab. 6:	Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD, Bulk) und im Bestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON im Fichtenbestand am Ruckwiesberg. Oben: 10.07.-27.11.2012; unten: 07.05.-19.11.2013. ....	44
Tab. 7:	Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD, wet only) und im Fichtenbestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON am Großen Falkenstein. Oben: 2012, unten: 2013. ....	45
Tab. 7a:	Mittlere Depositionsraten (2013) im Freiland (BD, Bulk) und im Fichtenbestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ , $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON am Großen Falkenstein. ....	46

Tab. 1: Jährliche Depositionsraten (keq/ha/a) im Freiland (Niederschlagsdeposition BD, Bulk-Sammler) und im Buchenbestand B1 (Kronendurchlass und Stammablauf TF+SF) sowie Mittelwerte und Standardabweichungen ( $\pm s$ ) für die Teilzeiträume 1993 - 2002 und 2003 - 2012.

	Kronendurchlass und Stammablauf TF+SF									Niederschlagsdeposition BD								
	H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>
1991	0,32	0,11	0,26	0,26	0,09	0,31	0,15	0,39	0,60	0,29	0,08	0,03	0,16	0,03	0,49	0,10	0,39	0,48
1992	0,30	0,10	0,36	0,29	0,10	0,35	0,15	0,41	0,61	0,33	0,09	0,04	0,20	0,05	0,57	0,13	0,45	0,51
1993	0,34	0,14	0,18	0,21	0,08	0,29	0,13	0,39	0,52	0,44	0,12	0,03	0,15	0,05	0,41	0,09	0,39	0,46
1994	0,32	0,14	0,21	0,28	0,08	0,34	0,15	0,40	0,55	0,37	0,12	0,03	0,19	0,04	0,45	0,12	0,41	0,45
1995	0,24	0,16	0,29	0,29	0,11	0,34	0,17	0,43	0,62	0,36	0,13	0,04	0,20	0,04	0,44	0,15	0,46	0,52
1996	0,18	0,09	0,19	0,22	0,06	0,24	0,10	0,35	0,41	0,27	0,08	0,03	0,14	0,04	0,29	0,08	0,30	0,33
1997	0,20	0,14	0,19	0,26	0,06	0,28	0,14	0,38	0,41	0,29	0,13	0,03	0,18	0,04	0,35	0,12	0,37	0,36
1998	0,20	0,14	0,29	0,28	0,07	0,27	0,15	0,37	0,43	0,24	0,11	0,07	0,23	0,04	0,34	0,12	0,35	0,36
1999	0,15	0,15	0,22	0,20	0,06	0,23	0,15	0,37	0,30	0,22	0,15	0,05	0,17	0,04	0,26	0,14	0,35	0,27
2000	0,19	0,20	0,29	0,40	0,13	0,32	0,17	0,44	0,42	0,26	0,16	0,05	0,30	0,07	0,41	0,15	0,44	0,38
2001	0,11	0,21	0,29	0,24	0,08	0,26	0,14	0,32	0,28	0,23	0,20	0,04	0,18	0,05	0,32	0,13	0,31	0,25
2002	0,16	0,17	0,29	0,21	0,09	0,40	0,15	0,45	0,38	0,39	0,16	0,04	0,15	0,05	0,42	0,15	0,41	0,34
2003	0,15	0,14	0,39	0,18	0,09	0,38	0,11	0,32	0,26	0,24	0,12	0,05	0,10	0,03	0,32	0,09	0,27	0,22
2004	0,23	0,16	0,26	0,18	0,07	0,25	0,14	0,35	0,24	0,35	0,15	0,03	0,13	0,03	0,28	0,13	0,29	0,20
2005	0,22	0,19	0,20	0,26	0,07	0,40	0,14	0,51	0,33	0,31	0,17	0,04	0,19	0,03	0,37	0,12	0,40	0,29
2006	0,33	0,29	0,29	0,21	0,07	0,38	0,15	0,46	0,30	0,22	0,22	0,06	0,14	0,04	0,39	0,13	0,40	0,26
2007	0,27	0,21	0,25	0,22	0,08	0,30	0,21	0,43	0,32	0,13	0,19	0,06	0,13	0,04	0,41	0,20	0,38	0,30
2008	0,13	0,22	0,23	0,23	0,08	0,30	0,20	0,43	0,28	0,14	0,21	0,06	0,11	0,04	0,35	0,20	0,36	0,25
2009	0,11	0,23	0,39	0,18	0,08	0,33	0,17	0,40	0,26	0,12	0,22	0,06	0,11	0,03	0,33	0,19	0,34	0,23
2010	0,07	0,22	0,37	0,17	0,06	0,25	0,15	0,37	0,22	0,10	0,20	0,05	0,08	0,02	0,31	0,14	0,30	0,19
2011	0,08	0,22	0,33	0,15	0,08	0,23	0,16	0,31	0,19	0,10	0,16	0,06	0,06	0,02	0,28	0,14	0,29	0,17
2012	0,07	0,27	0,21	0,15	0,06	0,30	0,19	0,35	0,18	0,08	0,27	0,05	0,10	0,03	0,32	0,19	0,28	0,16
2003-2012	0,17	0,21	0,29	0,19	0,07	0,31	0,16	0,39	0,26	0,18	0,19	0,05	0,12	0,03	0,33	0,15	0,33	0,23
$\pm$	0,09	0,04	0,07	0,04	0,01	0,06	0,03	0,06	0,05	0,09	0,04	0,01	0,03	0,01	0,04	0,04	0,05	0,05
1993-2002	0,21	0,16	0,24	0,26	0,08	0,30	0,14	0,39	0,43	0,31	0,14	0,04	0,19	0,04	0,37	0,12	0,38	0,37
$\pm$	0,07	0,03	0,05	0,06	0,02	0,05	0,02	0,04	0,11	0,08	0,03	0,01	0,05	0,01	0,07	0,02	0,05	0,08

Tab. 2: Ergebnisse der Kronenraumbilanzierung für DIN ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) im Buchenbestand B1: Jahresraten für Rückhalt im Kronenraum CU, Trockendeposition DD und Gesamtdeposition TD (keq/ha/a) für den Zeitraum 1991 - 2012 (Modelle 1 und 2).

	Alle Modelle				Modell 2a (DEVRIES et al. 2003)						Modell 1a (ICP Forest Manual 2010)					
	DDF	LE	LE	LE	CU	CU	DD	DD	TD	TD	CU	CU	DD	DD	TD	TD
	Na	K	Ca	Mg	H	$\text{NH}_4$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	H	$\text{NH}_4$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$
1991	0,49	0,22	0,02	0,03	0,23	0,04	-0,14	0,00	0,35	0,39	0,23	0,04	-0,14	0,00	0,35	0,39
1992	0,09	0,32	0,07	0,04	0,37	0,07	-0,14	-0,04	0,43	0,41	0,26	0,05	-0,16	-0,04	0,41	0,41
1993	0,18	0,15	0,03	0,02	0,18	0,03	-0,10	0,00	0,31	0,39	0,27	0,04	-0,08	0,00	0,33	0,39
1994	0,20	0,17	0,05	0,04	0,23	0,04	-0,07	-0,02	0,38	0,40	0,21	0,04	-0,07	-0,02	0,38	0,40
1995	0,21	0,24	0,05	0,06	0,27	0,07	-0,03	-0,03	0,41	0,43	0,20	0,05	-0,05	-0,03	0,39	0,43
1996	0,15	0,16	0,06	0,02	0,19	0,04	-0,01	0,04	0,28	0,35	0,22	0,05	-0,01	0,04	0,29	0,35
1997	0,11	0,15	0,05	0,03	0,18	0,04	-0,02	0,01	0,33	0,38	0,17	0,04	-0,02	0,01	0,33	0,38
1998	0,22	0,20	0,00	0,03	0,19	0,04	-0,03	0,02	0,31	0,37	0,15	0,03	-0,04	0,02	0,30	0,37
1999	0,03	0,16	0,02	0,03	0,17	0,04	0,01	0,02	0,27	0,37	0,12	0,03	0,00	0,02	0,26	0,37
2000	0,31	0,22	0,01	0,03	0,20	0,06	-0,04	0,00	0,38	0,44	0,11	0,03	-0,06	0,00	0,35	0,44
2001	0,08	0,25	0,04	0,03	0,23	0,10	0,04	0,01	0,36	0,32	0,15	0,06	0,01	0,01	0,32	0,32
2002	0,04	0,25	0,06	0,03	0,24	0,10	0,08	0,04	0,50	0,45	0,23	0,10	0,08	0,04	0,50	0,45
2003	0,18	0,33	0,06	0,05	0,31	0,13	0,19	0,05	0,51	0,32	0,09	0,04	0,10	0,05	0,42	0,32
2004	0,11	0,22	0,04	0,03	0,25	0,04	0,01	0,06	0,29	0,35	0,22	0,04	0,01	0,06	0,29	0,35
2005	0,08	0,16	0,05	0,03	0,19	0,06	0,09	0,10	0,46	0,51	0,16	0,05	0,08	0,10	0,45	0,51
2006	0,30	0,22	0,04	0,03	0,24	0,04	0,04	0,06	0,42	0,46	-0,04	-0,01	-0,01	0,06	0,37	0,46
2007	0,16	0,17	0,06	0,03	0,22	0,04	-0,06	0,04	0,34	0,43	-0,02	0,00	-0,11	0,04	0,30	0,43
2008	0,09	0,17	0,11	0,04	0,23	0,09	0,04	0,07	0,39	0,43	0,10	0,04	0,00	0,07	0,34	0,43
2009	0,07	0,32	0,06	0,05	0,29	0,14	0,14	0,06	0,47	0,40	0,04	0,02	0,02	0,06	0,35	0,40
2010	0,08	0,32	0,08	0,04	0,27	0,17	0,12	0,07	0,43	0,37	0,11	0,07	0,01	0,07	0,32	0,37
2011	0,32	0,25	0,06	0,05	0,25	0,11	0,06	0,01	0,34	0,31	0,04	0,02	-0,04	0,01	0,24	0,31
2012	0,01	0,16	0,05	0,03	0,14	0,10	0,08	0,06	0,40	0,35	0,07	0,05	0,03	0,06	0,34	0,35
1993-2002	0,15	0,20	0,04	0,03	0,21	0,06	-0,02	0,01	0,35	0,39	0,18	0,05	-0,03	0,01	0,34	0,39
±	0,09	0,04	0,02	0,01	0,03	0,03	0,05	0,02	0,07	0,04	0,05	0,02	0,05	0,02	0,07	0,04
2003-2012	0,14	0,23	0,06	0,04	0,24	0,09	0,07	0,06	0,41	0,39	0,08	0,03	0,01	0,06	0,34	0,39
±	0,10	0,07	0,02	0,01	0,05	0,05	0,07	0,02	0,07	0,06	0,08	0,02	0,06	0,02	0,06	0,06

Tab. 2a: Ergebnisse der Kronenraumbilanzierung für DIN ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) im Buchenbestand B1: Jahresraten für Rückhalt im Kronenraum CU, Trockendeposition DD und Gesamtdeposition TD (keq/ha/a) für den Zeitraum 2003 - 2012 (Modelle 3 und 4)

	Modell 4 (KOPÁČEK et al. 2009)						Modell 3 (LANGUSCH et al. 2005)						
	CU	DD	DD	TD	TD	TD	CU	CU	DD	DD	TD	TD	TD
	$\text{NH}_4$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	DIN	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	$\text{NH}_4$	$\text{NO}_3$	DIN
2003	0,11	0,17	0,05	0,49	0,32	0,81	0,00	0,00	0,06	0,05	0,38	0,32	0,70
2004	0,07	0,04	0,06	0,32	0,35	0,67	0,06	-0,03	0,03	0,03	0,31	0,32	0,63
2005	0,11	0,14	0,10	0,51	0,51	1,02	0,00	-0,07	0,03	0,03	0,40	0,44	0,84
2006	0,11	0,10	0,06	0,49	0,46	0,94	0,12	0,06	0,12	0,12	0,50	0,52	1,02
2007	0,08	-0,02	0,04	0,39	0,43	0,81	0,17	0,02	0,07	0,06	0,47	0,44	0,92
2008	0,09	0,04	0,07	0,39	0,43	0,82	0,07	-0,04	0,03	0,03	0,38	0,39	0,77
2009	0,09	0,09	0,06	0,43	0,40	0,83	0,02	-0,04	0,02	0,02	0,36	0,37	0,72
2010	0,07	0,02	0,07	0,33	0,37	0,69	0,08	-0,04	0,02	0,02	0,33	0,32	0,66
2011	0,06	0,01	0,01	0,29	0,31	0,60	0,14	0,08	0,09	0,09	0,37	0,39	0,75
2012	0,08	0,07	0,06	0,38	0,35	0,73	0,02	-0,06	0,00	0,00	0,32	0,29	0,60
2003-2012	0,09	0,07	0,06	0,40	0,39	0,79	0,07	-0,01	0,05	0,05	0,38	0,38	0,76
±	0,02	0,06	0,02	0,08	0,06	0,13	0,06	0,05	0,03	0,04	0,06	0,07	0,13

Tab. 3: Jährliche Depositionsraten (keq/ha/a) im Freiland (Niederschlagsdeposition BD, Bulk-Sammler) und im Fichtenbestand F4 (Kronendurchlass TF) sowie Mittelwerte und Standardabweichungen ( $\pm s$ ) für die Jahre 2003 - 2012.

	Kronendurchlass TF									Niederschlagsdeposition BD								
	H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>
2003	0,17	0,12	0,45	0,26	0,12	0,37	0,22	0,31	0,27	0,24	0,12	0,05	0,10	0,03	0,32	0,09	0,27	0,22
2004	0,36	0,18	0,30	0,31	0,12	0,24	0,22	0,35	0,26	0,35	0,15	0,03	0,13	0,03	0,28	0,13	0,29	0,20
2005	0,24	0,22	0,49	0,41	0,15	0,15	0,29	0,38	0,32	0,31	0,17	0,04	0,19	0,03	0,37	0,12	0,40	0,29
2006	0,17	0,23	0,58	0,38	0,17	0,31	0,28	0,59	0,35	0,22	0,22	0,06	0,14	0,04	0,39	0,13	0,40	0,26
2007	0,09	0,27	0,54	0,37	0,18	0,25	0,32	0,52	0,29	0,13	0,19	0,06	0,13	0,04	0,41	0,20	0,38	0,30
2008	0,13	0,24	0,43	0,33	0,15	0,23	0,31	0,40	0,24	0,14	0,21	0,06	0,11	0,04	0,35	0,20	0,36	0,25
2009	0,11	0,23	0,58	0,35	0,17	0,27	0,30	0,49	0,22	0,12	0,22	0,06	0,11	0,03	0,33	0,19	0,34	0,23
2010	0,08	0,20	0,58	0,32	0,15	0,19	0,23	0,38	0,15	0,10	0,20	0,05	0,08	0,02	0,31	0,14	0,30	0,19
2011	0,06	0,19	0,60	0,29	0,13	0,22	0,25	0,40	0,14	0,10	0,16	0,06	0,06	0,02	0,28	0,14	0,29	0,17
2012	0,06	0,24	0,46	0,31	0,14	0,40	0,31	0,54	0,13	0,08	0,27	0,05	0,10	0,03	0,32	0,19	0,28	0,16
2003-2012	0,15	0,21	0,50	0,33	0,15	0,26	0,27	0,44	0,24	0,18	0,19	0,05	0,12	0,03	0,33	0,15	0,33	0,23
$\pm$	0,09	0,04	0,09	0,05	0,02	0,08	0,04	0,09	0,08	0,09	0,04	0,01	0,03	0,01	0,04	0,04	0,05	0,05

Tab. 3a: Ergebnisse der Kronenraumbilanzierung für DIN (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>) im Fichtenbestand F4: Jahresraten für Rückhalt im Kronenraum CU, Trockendeposition DD und Gesamtdeposition TD (keq/ha/a) für den Zeitraum 2003 - 2012 ((Modelle 1a und 2a). Grau hinterlegt: Ersatz negativer Werte durch Mittelwert.

	Alle Modelle				Modell 2a (DEVRIES et al. 2003)						Modell 1a (ICP Forest Manual 2010)					
	DDF	LE	LE	LE	CU	CU	DD	DD	TD	TD	CU	CU	DD	DD	TD	TD
	Na	K	Ca	Mg	H	NH <sub>4</sub>	NH <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	NH <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	H	NH <sub>4</sub>	NH <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>	NH <sub>4</sub>	NO <sub>3</sub>
2003	0,04	0,40	0,15	0,08	0,46	0,17	0,23	0,04	0,55	0,31	0,17	0,06	0,12	0,04	0,44	0,31
2004	0,25	0,26	0,15	0,07	0,43	0,05	0,01	0,06	0,29	0,35	0,21	0,02	-0,02	0,06	0,26	0,35
2005	0,27	0,44	0,17	0,11	0,66	0,07	-0,15	-0,02	0,22	0,38	0,41	0,04	-0,18	-0,02	0,19	0,38
2006	0,06	0,52	0,24	0,13	0,68	0,21	0,14	0,19	0,53	0,59	0,41	0,13	0,06	0,19	0,44	0,59
2007	0,46	0,45	0,17	0,11	0,51	0,22	0,07	0,14	0,47	0,52	0,20	0,09	-0,07	0,14	0,34	0,52
2008	0,18	0,36	0,19	0,11	0,51	0,16	0,05	0,05	0,39	0,40	0,18	0,06	-0,06	0,05	0,29	0,40
2009	0,08	0,52	0,23	0,14	0,63	0,26	0,20	0,15	0,53	0,49	0,21	0,09	0,03	0,15	0,36	0,49
2010	0,19	0,52	0,23	0,13	0,62	0,26	0,13	0,08	0,44	0,38	0,19	0,08	-0,04	0,08	0,26	0,38
2011	0,14	0,54	0,21	0,11	0,54	0,32	0,26	0,11	0,54	0,40	0,16	0,09	0,04	0,11	0,32	0,40
2012	0,19	0,41	0,20	0,10	0,33	0,37	0,45	0,25	0,77	0,54	0,15	0,16	0,25	0,25	0,56	0,54
2003-2012	0,19	0,44	0,19	0,11	0,54	0,21	0,14	0,10	0,47	0,44	0,23	0,08	0,01	0,10	0,35	0,44
$\pm$	0,12	0,09	0,03	0,02	0,11	0,10	0,16	0,08	0,15	0,09	0,10	0,04	0,12	0,08	0,11	0,09

Tab. 4: Depositionsraten (keq/ha) im Freiland (Bulk Deposition BD, Nasse Deposition WD) und im Kronendurchlass des Fichtenbestands (TF) am Großen Falkenstein.

TF	08.05. - 27.11.2012										07.05. - 19.11.2013									
	H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>		H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	
FS ST-a	0,18	0,24	0,46	0,40	0,13	0,47	0,23	0,66	0,28		0,27	0,25	0,49	0,48	0,15	0,36	0,21	0,75	0,33	
FS ST-b	0,19	0,22	0,29	0,74	0,11	0,38	0,18	0,54	0,25		0,23	0,16	0,28	0,36	0,11	0,22	0,15	0,49	0,22	
FS ST-c	0,18	0,45	0,73	0,67	0,19	0,65	0,36	1,07	0,45		0,29	0,48	0,92	0,95	0,26	0,47	0,38	1,39	0,62	
FS ST-d	0,04	0,12	0,06	0,08	0,02	0,17	0,07	0,16	0,10		0,04	0,09	0,07	0,05	0,01	0,10	0,05	0,12	0,07	
FS ST-e	0,14	0,21	0,38	0,29	0,10	0,29	0,18	0,32	0,16		0,15	0,14	0,34	0,22	0,09	0,15	0,12	0,21	0,13	
FS ST-f	0,07	0,13	0,30	0,30	0,06	0,20	0,13	0,27	0,12		0,07	0,14	0,29	0,14	0,06	0,12	0,11	0,20	0,10	
FS ST-g	0,06	0,17	0,41	0,19	0,07	0,32	0,17	0,41	0,17		0,07	0,16	0,41	0,17	0,06	0,22	0,14	0,33	0,15	
FS ST-h	0,08	0,19	0,44	0,30	0,09	0,42	0,20	0,55	0,22		0,08	0,21	0,41	0,25	0,08	0,26	0,16	0,43	0,18	
∅	0,12	0,22	0,38	0,37	0,10	0,36	0,19	0,50	0,22		0,15	0,20	0,40	0,33	0,10	0,24	0,17	0,49	0,23	
±	0,06	0,10	0,19	0,23	0,05	0,16	0,08	0,28	0,11		0,10	0,12	0,24	0,28	0,07	0,13	0,10	0,41	0,18	
WD	0,06	0,10	0,02	0,06	0,01	0,18	0,05	0,16	0,12		0,04	0,06	0,02	0,04	0,01	0,13	0,04	0,11	0,07	
BD	nicht gemessen										0,04	0,15	0,04	0,05	0,02	0,12	0,07	0,13	0,08	

Tab. 5: Depositionsraten (keq/ha) im Freiland (Bulk Deposition BD) und im Kronendurchlass des Fichtenbestands (TF) am Ruckwiesberg.

TF	10.07. - 27.11.2012										07.05. - 19.11.2013									
	H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>		H	Na	K	Ca	Mg	NH <sub>4</sub>	Cl	NO <sub>3</sub>	SO <sub>4</sub>	
HR-ST-k	0,02	0,13	0,16	0,10	0,03	0,21	0,10	0,23	0,09		0,05	0,12	0,24	0,14	0,05	0,22	0,11	0,31	0,13	
HR-ST-l	0,02	0,13	0,14	0,13	0,03	0,22	0,09	0,26	0,09		0,04	0,13	0,22	0,12	0,04	0,23	0,11	0,32	0,12	
HR-ST-m	0,02	0,12	0,21	0,11	0,04	0,26	0,12	0,33	0,10		0,05	0,15	0,33	0,16	0,05	0,30	0,14	0,44	0,14	
HR-ST-n	0,03	0,14	0,25	0,17	0,06	0,35	0,13	0,45	0,15		0,09	0,20	0,40	0,30	0,11	0,41	0,17	0,68	0,22	
HR-ST-o	0,02	0,12	0,22	0,14	0,05	0,30	0,13	0,36	0,11		0,03	0,13	0,39	0,21	0,08	0,34	0,14	0,46	0,15	
∅	0,02	0,13	0,20	0,13	0,04	0,27	0,11	0,33	0,11		0,05	0,15	0,32	0,18	0,07	0,30	0,14	0,44	0,15	
±	0,00	0,00	0,05	0,03	0,01	0,06	0,02	0,09	0,03		0,02	0,03	0,08	0,07	0,03	0,08	0,03	0,15	0,04	
BD	0,02	0,11	0,02	0,04	0,01	0,11	0,06	0,09	0,06		0,04	0,10	0,04	0,04	0,01	0,13	0,06	0,12	0,08	

Tab. 6: Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD, Bulk) und im Bestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON im Fichtenbestand am Ruckwiesberg. **Oben:** 10.07.-27.11.2012; **unten:** 07.05.-19.11.2013. Zur Berechnung von Trockendepositionsrate DD, Verbleib im Kronenraum CU und Gesamtd deposition TD siehe Methodenteil. Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) in keq/ha/a.

	TF		BD		LE	DDF	TF	BD	KDD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	BC	Na	DON		
<b>Messungen 2012</b>	0,27	0,33	0,11	0,09	0,29	0,20	0,09	0,00	0,08
	<i>0,06</i>	<i>0,09</i>			<i>0,08</i>	<i>0,04</i>	<i>0,02</i>		<i>0,25</i>
<b>Schätzverfahren</b>	DD		CU	TD			DD	CU	TD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$		DIN		
ICP Forest Manual 2010									
Modell 1a xH = 6	0,27	0,24	0,10	0,37	0,33		0,50	0,10	0,70
	<i>0,10</i>	<i>0,09</i>	<i>0,05</i>	<i>0,10</i>	<i>0,09</i>				
Modell 1b xH = 1	0,30	0,24	0,14	0,41	0,33		0,54	0,14	0,74
	<i>0,12</i>	<i>0,09</i>	<i>0,06</i>	<i>0,12</i>	<i>0,09</i>				
DeVRIES 2003									
Modell 2a xH = 6	0,36	0,24	0,20	0,47	0,33		0,60	0,20	0,80
	<i>0,12</i>	<i>0,09</i>	<i>0,06</i>	<i>0,12</i>	<i>0,09</i>				
Modell 2b xH = 1	0,43	0,24	0,27	0,54	0,33		0,67	0,27	0,87
	<i>0,14</i>	<i>0,09</i>	<i>0,08</i>	<i>0,14</i>	<i>0,09</i>				
KOPÁČEK et al. 2009									
Modell 4 $\text{TD}_{\text{NH}_4} = \text{TF}(+\text{SF})_{\text{NH}_4}/0,78$	0,24	0,24	0,08	0,34	0,33		0,47	0,08	0,67
	<i>0,08</i>	<i>0,09</i>	<i>0,02</i>	<i>0,08</i>	<i>0,09</i>				

	TF		BD		LE	DDF	TF	BD	KDD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	BC	Na	DON		
<b>Messungen 2013</b>	0,30	0,44	0,13	0,12	0,42	0,42	0,17	0,08	0,10
	<i>0,08</i>	<i>0,15</i>			<i>0,15</i>	<i>0,3</i>	<i>0,05</i>		<i>0,74</i>
<b>Schätzverfahren</b>	DD		CU	TD			DD	CU	TD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$		DIN		
ICP Forest Manual 2010									
Modell 1a xH = 6	0,30	0,32	0,13	0,43	0,44		0,62	0,13	0,87
	<i>0,12</i>	<i>0,15</i>	<i>0,05</i>	<i>0,12</i>	<i>0,15</i>				
Modell 1b xH = 1	0,38	0,32	0,21	0,52	0,44		0,70	0,21	0,96
	<i>0,16</i>	<i>0,15</i>	<i>0,08</i>	<i>0,16</i>	<i>0,15</i>				
DeVRIES 2003									
Modell 2a xH = 6	0,39	0,32	0,22	0,52	0,44		0,71	0,22	0,96
	<i>0,16</i>	<i>0,15</i>	<i>0,09</i>	<i>0,16</i>	<i>0,15</i>				
Modell 2b xH = 1	0,53	0,32	0,36	0,67	0,44		0,85	0,36	1,11
	<i>0,21</i>	<i>0,15</i>	<i>0,13</i>	<i>0,21</i>	<i>0,15</i>				
KOPÁČEK et al. 2009									
Modell 4 $\text{TD}_{\text{NH}_4} = \text{TF}(+\text{SF})_{\text{NH}_4}/0,78$	0,25	0,32	0,09	0,39	0,44		0,57	0,09	0,83
	<i>0,10</i>	<i>0,15</i>	<i>0,02</i>	<i>0,10</i>	<i>0,15</i>				

Tab. 7: Mittlere Depositionsraten im Freiland (BD, **Wet-only**) und im Fichtenbestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON am Großen Falkenstein. **Oben:** 08.05.-27.11.2012; **unten:** 07.05.-19.11.2013. Zur Berechnung von Trockendepositionsrate DD, Verbleib im Kronenraum CU und Gesamtd deposition TD siehe Methodenteil. Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) in keq/ha/a.

	TF		BD (wet-only)		LE	DDF	TF	BD	KDD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	BC	Na			
<b>Messungen 2012</b>	0,35	0,46	0,18	0,16	0,65	0,9	0,25	0,01	0,24
	0,10	0,15			0,16	0,4	0,05		0,64
<b>Schätzverfahren</b>	DD		CU	TD		DD	CU	TD	
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$				DIN
ICP Forest Manual 2010									
Modell 1a xH = 6	0,24	0,30	0,08	0,43	0,46		0,55	0,08	0,88
	0,13	0,15	0,05	0,13	0,15				
Modell 1b xH = 1	0,33	0,30	0,17	0,51	0,46		0,63	0,17	0,97
	0,17	0,15	0,08	0,17	0,15				
DeVRIES 2003									
Modell 2a xH = 6	0,39	0,30	0,22	0,57	0,46		0,69	0,22	1,02
	0,14	0,15	0,06	0,14	0,15				
Modell 2b xH = 1	0,65	0,30	0,48	0,83	0,46		0,95	0,48	1,29
	0,18	0,15	0,10	0,18	0,15				
KOPÁČEK et al. 2009									
Modell 4 $\text{TD}_{\text{NH}_4} = \text{TF} + (\text{SF})_{\text{NH}_4} / 0,78$	0,26	0,30	0,10	0,44	0,46		0,56	0,10	0,90
	0,13	0,15	0,03	0,13	0,15				

	TF		BD (wet-only)		LE	DDF	TF	BD	KDD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	BC	Na			
<b>Messungen 2013</b>	0,22	0,40	0,13	0,11	0,52	1,8	0,27	0,06	0,21
	0,09	0,21			0,16	0,7	0,04		0,60
<b>Schätzverfahren</b>	DD		CU	TD		DD	CU	TD	
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$				DIN
ICP Forest Manual 2010									
Modell 1a xH = 6	0,14	0,29	0,05	0,27	0,40		0,43	0,05	0,67
	0,12	0,21	0,03	0,12	0,21				
Modell 1b xH = 1	0,23	0,29	0,14	0,36	0,40		0,52	0,14	0,76
	0,17	0,21	0,08	0,17	0,21				
DeVRIES 2003									
Modell 2a xH = 6	0,20	0,29	0,11	0,33	0,40		0,50	0,11	0,74
	0,13	0,21	0,05	0,13	0,21				
Modell 2b xH = 1	0,41	0,29	0,31	0,53	0,40		0,70	0,31	0,94
	0,18	0,21	0,10	0,18	0,21				
KOPÁČEK et al. 2009									
Modell 4 $\text{TD}_{\text{NH}_4} = \text{TF} + (\text{SF})_{\text{NH}_4} / 0,78$	0,15	0,29	0,06	0,28	0,40		0,44	0,06	0,69
	0,11	0,21	0,02	0,11	0,21				

Tab. 7a: Mittlere Depositionsraten (2013) im Freiland (BD, **Bulk**) und im Fichtenbestand (TF) für DIN ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$ ) und DON, Leachingraten LE für basisch wirkende Kationen BC und Kronendachdifferenzen KDD für DON am Großen Falkenstein. Zur Berechnung von Trockendepositionsrate DD, Verbleib im Kronenraum CU und Gesamtd deposition TD siehe Methodenteil. Mittelwerte und Standardabweichung ( $\pm s$ ) in keq/ha/a.

	TF		BD (bulk)		LE	DDF	TF	BD	KDD
	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	BC	Na		DON	
<b>Messungen 2013</b>	0,22	0,40	0,12	0,13	0,59	0,33	0,27	0,06	0,21
	<i>0,09</i>	<i>0,21</i>		<i>0,25</i>	<i>0,20</i>	<i>0,23</i>	<i>0,04</i>		<i>0,60</i>
	DD		CU	TD			DD	CU	TD
<b>Schätzverfahren</b>	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NH}_4^+$	$\text{NO}_3^-$			DIN	
ICP Forest Manual 2010									
Modell 1a xH = 6	0,15	0,27	0,05	0,27	0,40		0,42	0,05	0,67
	<i>0,11</i>	<i>0,21</i>	<i>0,03</i>	<i>0,11</i>	<i>0,21</i>				
Modell 1b xH = 1	0,24	0,27	0,14	0,36	0,40		0,51	0,14	0,76
	<i>0,17</i>	<i>0,21</i>	<i>0,08</i>	<i>0,17</i>	<i>0,21</i>				
DeVRIES 2003									
Modell 2a xH = 6	0,23	0,27	0,13	0,35	0,40		0,50	0,13	0,76
	<i>0,14</i>	<i>0,21</i>	<i>0,06</i>	<i>0,14</i>	<i>0,21</i>				
Modell 2b xH = 1	0,46	0,27	0,36	0,58	0,40		0,73	0,36	0,98
	<i>0,21</i>	<i>0,21</i>	<i>0,12</i>	<i>0,21</i>	<i>0,21</i>				
KOPÁČEK et al. 2009									
Modell 4 $\text{TD}_{\text{NH}_4} = \text{TF}(\text{+SF})_{\text{NH}_4}/0,78$	0,16	0,27	0,06	0,28	0,40		0,43	0,06	0,69
	<i>0,11</i>	<i>0,21</i>	<i>0,02</i>	<i>0,11</i>	<i>0,21</i>				