# TEXTE

# 62/2014

**Modellierung und Kartierung** atmosphärischer Stoffeinträge und kritischer Belastungsschwellen zur kontinuierlichen Bewertung der ökosystemspezifischen Gefährdung der **Biodiversität in Deutschland -PINETI (Pollutant INput and EcosysTem Impact).** 

Teilbericht 3 Aufstockung des Vorhabens



TEXTE 62/2014

Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit

Forschungskennzahl 3710 63 246 UBA-FB 002007/3

Modellierung und Kartierung atmosphärischer Stoffeinträge und kritischer Belastungsschwellen zur kontinuierlichen Bewertung der ökosystemspezifischen Gefährdung der Biodiversität in Deutschland -PINETI (Pollutant INput and EcosysTem Impact)

# Teilbericht 3 Aufstockung des Vorhabens

von

Roy Wichink Kruit, Martijn Schaap, Arjo Segers, Dick Heslinga, Peter Builtjes Netherlands Organisation for Applied Scientific Research TNO, Utrecht, The Netherlands

Sabine Banzhaf Freie Universität Berlin, FB Geowissenschaften, Institut für Meteorologie, Berlin

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

#### Impressum

#### Herausgeber:

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

f /umweltbundesamt.de
/umweltbundesamt

#### Durchführung der Studie:

Netherlands Organisation for Applied Scientific Research TNO P.O.Box 80015 3508 TA Utrecht The Netherlands

#### Abschlussdatum:

2014

#### **Redaktion:**

Fachgebiet II 4.3 Luftreinhaltung und terrestrische Ökosysteme Dr. Jakob Frommer, Markus Geupel

Publikationen als pdf: http://www.umweltbundesamt.de/publikationen/modellierung-kartierung-atmosphaerischer-0

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, Dezember 2014

Das diesem Bericht zu Grunde liegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit unter der Forschungskennzahl 3710 63 246 gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autorinnen und Autoren.

#### Kurzbeschreibung

Die methodischen Unterschiede zwischen den Projekten MAPESI und PINETI führen zu Unterschieden in der berechneten Gesamtdeposition, welche in dieser Studie innerhalb des PINETI Projektes genauer untersucht wurden.

Der Vergleich der Ergebnisse der nassen Deposition aus den Vorhaben MAPESI und PINETI für das Jahr 2007 zeigt, dass die mittleren Frachten für oxidierte Schwefel- und Stickstoffverbindungen gut übereinstimmen, wohingegen für reduzierte Stickstoffverbindungen eine Abweichung von knapp 20% auftritt. Für die nasse Deposition von reaktivem Stickstoff ergibt sich deshalb im Mittel eine systematische Differenz zwischen der PINETI- und der MAPESI-Methodik von 0.9 kg N ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>. Kreuzvalidierungen und detailliertere Analysen im Bereich des bayerischen Waldes zeigen, dass die in PINETI weiterentwickelte Methode zu einer besseren Abbildung der räumlichen Verteilung der nassen Deposition führt.

Ein Vergleich der Felder der feuchten Deposition zwischen den Vorhaben PINETI und MAPESI zeigt, dass die räumliche Verteilung gut übereinstimmt, wohingegen die in PINETI ermittelte mittlere Fracht der feuchten Deposition verglichen mit der entsprechenden mittleren Fracht aus MAPESI deutlich kleiner ist.

Zusammenfassend zeigt sich daran anschließend, dass die methodischen Weiterentwicklungen etwa 50 % des Unterschieds zwischen der nassen Deposition für das Jahr 2007 (MAPESI) und der nassen Deposition für das Jahr 2008 (PINETI) ausmachen – der Rest ist auf meteorologische Unterschiede und veränderte Emissionen zurückzuführen.

#### Abstract

Methodological differences between the MAPESI and the PINETI project led to differences in the total deposition, which are investigated in more detail in this study within the PINETI project.

A comparison of the wet deposition from the MAPESI and PINETI projects for the year 2007 shows that the annual average deposition of oxidized sulphur and nitrogen are in good agreement, whereas the annual average deposition of reduced nitrogen shows a deviation of almost 20%. Therefore, the differences between the PINETI and the MAPESI method result in a systematic difference of approximately 0.9 kg N ha<sup>-1</sup> yr<sup>-1</sup>. Cross validation and more detailed analyzes in the region of the Bavarian Forest show that the method developed in PINETI leads to a better mapping of the spatial distribution of the wet deposition.

A comparison of the occult deposition from the MAPESI and PINETI projects shows that the spatial distributions are in good agreement, whereas the magnitude of the deposition is significantly smaller in PINETI.

In summary, the methodological changes in the assessment of the wet deposition are responsible for about 50% of the difference between the wet deposition for 2007 (MAPESI) and the wet deposition for the year 2008 (PINETI). The other 50% is due to meteorological differences and changes in emissions.

# Inhaltsverzeichnis

Ab	bildu	ngsverzeichnis	7
Tal	oeller	nverzeichnis	10
Zu	samn	nenfassung	11
1	Ein	leitung	12
2	Auf	gabe 1. Evaluierung der derzeit verwendeten Parametrisierung zur	
	Me	esswerten in Deutschland und einer Literaturrecherche	13
	2.1	Einleitung	13
	2.2	Darstellung der PINETI Methodik	15
	2.3	Evaluierung der PINETI Methodik	
	2.3	.1 Evaluierung des Nebel-/Wolkenwassereintrages	17
	2.3	8.2 Evaluierung der Konzentration	
	2.4	Neue Ansätze und Vergleich zur PINETI Methodik	
	2.5	Testläufe	
	2.6	Schlussfolgerung und Ausblick	
3	Auf	gabe 2. Analyse der räumlichen Variation der trockenen, feuchten und	
	na: MA	ssen Deposition des PINETI-Vorhabens und Vergleich mit Ergebnissen des APESI-Vorhabens	41
	3.1	Einleitung	
	3.2	Trockene Deposition	42
	3.3	Feuchte Deposition	
	3.4	Nasse Deposition	
	3.5	Schlussfolgerung	50
4	Auf dei dei	igabe 3. Vergleich der Ergebnisse der PINETI-Methode zur Modellierung r nassen Deposition für das Jahr 2007 (mit MAPESI-2007 Emissionen) mit n Ergebnissen der modellierten nassen Deposition aus MAPESI für das	
	Jah	nr 2007	51
	4.1	Introduction	
	4.2	Precipitation	51
	4.3	Spatial distributions	56
	4.4	Spatial correlation	
	4.5	Conclusions	69
5	Ref	erences	

# Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1 Akkı	ımulierter Flüssigwassergehalt der untersten Modellschicht des COSMO-EU Modells für das Jahr 2008	16
Abbildung 2. Anh	and der PINETI Methodik modelliertes Monatsmittel des Nebel-/Wolkenwassereintrages auf Nadelwald (=coniferous forest) von 2007-2009 an verschiedenen Höhenlagen	19
Abbildung 3. Anh	and der PINETI Methodik modelliertes Monatsmittel des Nebel-/Wolkenwassereintrages auf Nadelwald von 2007- 2009 am Waldstein und Messungen am Waldstein aus dem Jahr 2001/2002 (Klemm und Wrzesinsky, 2007)	20
Abbildung 4. Neb	el-/Wolkenwassereintrag auf Nadelwald berechnet anhand der PINETI Methodik für die Jahre 2007, 2008 und 2009	21
Abbildung 5. Verg	gleich von empirisch bestimmten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) zu Messungen an verschiedenen Höhenlagen	25
Abbildung 6. Verg	gleich von empirisch bestimmten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) zu Messungen am Großen Falkenstein aus FKZ 35101012/04	26
Abbildung 7. Verg	gleich von empirisch bestimmten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) zu Messungen am Großen Falkenstein aus FKZ 35101012/04 mit Unterteilung in "Wolke" und "Nebel" aus Beudert und Breit (2012)	26
Abbildung 8. Kon	zentrationen der Hauptionen in Wolken- (links) und Regenwasser (rechts) für die Jahre 1992-2006 am Whiteface Mountain (NY, US) (Aleksic et al., 2009)	27
Abbildung 9. Anh	and Katata et al (2008; 2011; linke Seite) und PINETI Methodik (rechte Seite) berechneter mittlerer Nebel-/ Wolkenwasserdepositionsfluss auf Nadelwald für die Jahre 2007-2009	29
Abbildung 10. An	hand Katata et al. (2008;2010) (links) und anhand der PINETI Methodik (rechts) modelliertes Monatsmittel des Nebel- /Wolkenwassereintrages auf Nadelwald von 2007-2009 an verschiedenen Höhenlagen	29
Abbildung 11. An	hand von Katata et al. (2008; 2011) modelliertes Monatsmittel des Nebel-/Wolkenwassereintrages auf Nadelwald von 2007-2009 am Waldstein und Messungen am Waldstein aus dem Jahr 2001/2002 (Klemm und Wrzesinsky, 2007)	30
Abbildung 12. An	reicherungsfaktoren für jede Komponente aufgetragen gegen die orographische Höhe der Messstelle für alle Studien (linke Seite) bzw. ausschließlich die Studien aus Bleeker et al. (2000) (rechte Seite)	33
Abbildung 13. Op	otion 1 (a), 2 (b), 3 (c) und 4 (d): NH <sub>x</sub> feuchte Deposition für das Jahr 2008	37

Abbildung 14. Opti J	on 5 (a) und Option 6 (b): NH <sub>x</sub> feuchte Deposition für das ahr 2008	37
Abbildung 15. Feuc a	chte Deposition von NOy für das Jahr 2007 berechnet anhand Option 5 (links) und Option 6 (rechts)	38
Abbildung 16. Wie	Abbildung 14 für 2008	38
Abbildung 17. Wie	Abbildung 14 für 2009	39
Abbildung 18 Anh V 2 r (i (i 1	and Katata et al (2008; 2011) berechneter mittlerer Nebel-/ Nolkenwasserdepositionsfluss auf Nadelwald für die Jahre 2007-2009 basierend auf Jahresmittel (Maximum: 285.7 kg n <sup>-2</sup> yr <sup>-1</sup> ; Mittel: 14.2 kg m <sup>-2</sup> yr <sup>-1</sup> ) (a) und stündlichen Maximum: 328.4 kg m <sup>-2</sup> yr <sup>-1</sup> ; Mittel: 10.4 kg m <sup>-2</sup> yr <sup>-1</sup> ) (b) der neteorologischen Inputparameter	40
Abbildung 19. Troc	kene Deposition von $SO_x$ , $NO_y$ and $NH_x$ in eq ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben für das Jahr 2008.	42
Abbildung 20. Feuc F M	chte Deposition von SO <sub>x</sub> , NO <sub>y</sub> and NH <sub>x</sub> eq ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben für das Jahr 2008 (links) und aus dem MAPESI-Vorhaben für das Jahr 2007 (rechts)	44
Abbildung 21 Scatt h F a M S	erplot der nassen Deposition von SO <sub>x</sub> , NO <sub>y</sub> und NH <sub>x</sub> in eq na <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> für das Jahr 2007 an vier Messstationen (Messung, PINETI-Vorhaben, MAPESI-Vorhaben ) und für das Jahr 2008 an sieben Messstationen (Messung, PINETI-Vorhaben, MAPESI-Daten für 2008 nicht verfügbar) in Südostdeutschland	47
Abbildung 22: Nass F M	se Deposition von SO <sub>x</sub> , NO <sub>y</sub> and NH <sub>x</sub> eq ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben für das Jahr 2008 (links) und aus dem MAPESI-Vorhaben für das Jahr 2007 (rechts)	48
Abbildung 23: Nass F	se Deposition von SO <sub>x</sub> , NO <sub>y</sub> and NH <sub>x</sub> eq ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben (links) und aus dem MAPESI-Vorhaben für las Jahr 2007 (rechts)	49
Abbildung 24. Distr	ribution of the annual precipitation amount over Germany n 2007	52
Abbildung 25. Exar C 2 F t c a	nple of stations used for the Kriging and derived concentration of NH4 <sup>+</sup> in precipitation distributions over Germany in 2005 MAPESI using observations only (left), 2007 PINETI using observations only (upper right) and 2007 PINETI using model and observations (lower right). Note that the units differ. Further note that the observations are on the y-axis in the MAPESI plots, while they are on the x- axis in the PINETI plots	53
Abbildung 26. Valio f M r r c	dation of derived annual concentration in precipitation ields with stations that were used for Kriging in 2005 MAPESI (left), 2007 PINETI only observations used (upper right) and 2007 PINETI model and observations used (lower right). Note that the axes of the MAPESI results (meq 1 <sup>-1</sup> ) are lifferent from the axes of the PINETI results.	55

Abbildung 27. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for SO <sub>x</sub> -nss5	58
Abbildung 28. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for NH <sub>x</sub> 5	59
Abbildung 29. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for NO <sub>y</sub> 6	50
Abbildung 30. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Na <sup>+</sup> 6	51
Abbildung 31. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Ca <sup>2+</sup> 6	52
Abbildung 32. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Mg <sup>2+</sup> 6	53
Abbildung 33. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for K <sup>+</sup> 6	54
Abbildung 34. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Ca <sup>2+</sup> -nss6	55
Abbildung 35. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Mg <sup>2+</sup> -nss6	56
Abbildung 36. Con	nparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for K <sup>+</sup> -nss6	57
Abbildung 37. Scat	tterplots of mapping results versus observations for 2005 in MAPESI [meq l <sup>-1</sup> ] (from Appendix XVI in Builtjes et al., 2011)6	58
Abbildung 38. Scat	tterplots of mapping results versus observations for 2007 in PINETI [mg l <sup>-1</sup> ]6	59

# Tabellenverzeichnis

Tabelle 1. Best-fit-Parameter a und b nach Bleeker et al., 2000	16
Tabelle 2. Auflistung betrachteter Höhenlagen	
Tabelle 3. Vergleich von empirisch bestimmten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) zu Messungen	24
Tabelle 4. Auflistung der verwendeten Studien zur Ermittlung der Anreicherungsfaktoren der Konzentration im Regen- und Nebel-/Wolkenwasser	32
Tabelle 5. Mittel der Anreicherungsfaktoren aller verfügbaren Studien zu "hill clouds"	
Tabelle 6. Nasse Deposition von SO <sub>x</sub> , NO <sub>y</sub> und NH <sub>x</sub> für das Jahr 2007 an vier Messstationen in Südostdeutschland (Messung, PINETI- Vorhaben und MAPESI-Vorhaben)	46
Tabelle 7. Nasse Deposition von SO <sub>x</sub> , NO <sub>y</sub> und NH <sub>x</sub> für das Jahr 2008 an sieben Messstationen in Südostdeutschland (Messung und PINETI- Vorhaben)	46
Tabelle 8. Overview table of the mean wet deposition over Germany in 2007 using the MAPESI and PINETI method	70

## Zusammenfassung

Die methodischen Unterschiede zwischen den Projekten MAPESI und PINETI führen zu Unterschieden in der berechneten Gesamtdeposition, welche in dieser Studie innerhalb des PINETI Projektes genauer untersucht wurden.

Der Vergleich der Ergebnisse der nassen Deposition aus den Vorhaben MAPESI und PINETI für das Jahr 2007 zeigt, dass die mittleren Frachten für oxidierte Schwefel- und Stickstoffverbindungen gut übereinstimmen, wohingegen für reduzierte Stickstoffverbindungen eine Abweichung von knapp 20% auftritt. Für die nasse Deposition von reaktivem Stickstoff ergibt sich deshalb im Mittel eine systematische Differenz zwischen der PINETI- und der MAPESI-Methodik von ca. 1 kg N ha<sup>-1</sup> a<sup>-1</sup>. Kreuzvalidierungen und detailliertere Analysen im Bereich des bayerischen Waldes zeigen, dass die in PINETI weiterentwickelte Methode zu einer besseren Abbildung der räumlichen Verteilung der nassen Deposition führt.

Ein Vergleich der Felder der feuchten Deposition zwischen den Vorhaben PINETI und MAPESI zeigt, dass die räumliche Verteilung gut übereinstimmt, wohingegen die in PINETI ermittelte mittlere Fracht der feuchten Deposition verglichen mit der entsprechenden mittleren Fracht aus MAPESI deutlich kleiner ist.

Um Möglichkeiten für eine Weiterentwicklung der Methode zur Ermittlung der feuchten Deposition zu evaluieren, wurden eine Literaturstudie durchgeführt und vorausgegangene Messkampagnen, u.a. aus dem Bayerischen Wald (Forellenbachgebiet; FKZ 35101088), analysiert. Die Ergebnisse bestätigen frühere Studien, welche die hohe räumliche und zeitliche Variabilität sowohl des Nebel-/Wolkenwassereintrages als auch der Konzentrationen von Spurenstoffen im Nebel-/Wolkenwasser hervorheben. Die Ergebnisse legen nahe, dass die Rekonstruktion der feuchten Deposition mit regionalen bzw. nationalen Modellen durch die sehr kleinräumige Variabilität zu erheblichen Schwierigkeiten führt. Für einen Großteil der betroffenen Flächen dürften die im PINETI-Vorhaben ermittelten Werte der feuchten Deposition im Allgemeinen eine brauchbare Schätzung liefern; der Eintrag in stark exponierte, räumlich sehr begrenzte Gebiete (Gipfel, Kammlagen) wird hingegen unterschätzt. Mögliche Verbesserungen des Berechnungsverfahrens werden diskutiert.

Außerdem wird mit einem detaillierten Vergleich für das Jahr 2007 analysiert, wie sich der Weiterentwicklung der Methode zur Verarbeitung der Messwerte zur nassen Deposition auf den Unterschied zwischen MAPESI und PINETI auswirkt. Die methodischen Fortschritte führen zu einem Rückgang von 0.9 kg/ha/yr. Zusammenfassend zeigt sich daran anschließend, dass die methodischen Weiterentwicklungen etwa 50 % des Unterschieds zwischen der nassen Deposition für das Jahr 2007 (MAPESI) und der nassen Deposition für das Jahr 2008 (PINETI) ausmachen – der Rest ist auf meteorologische Unterschiede und veränderte Emissionen zurückzuführen.

# 1 Einleitung

Während der Bearbeitung des laufenden Projektes "Modellierung und Kartierung atmosphärischer Stoffeinträge und kritischer Belastungsschwellen zur kontinuierlichen Bewertung der ökosystemspezifischen Gefährdung der Biodiversität in Deutschland -PINETI (Pollutant INput and EcosysTem Impact)" haben sich Fragenstellungen aufgetan, deren Klärung für die Fertigstellung des Projektes von Bedeutung ist. Die erste Fragestellung betrifft die Berechnung der feuchten Deposition. Die Methode, die in PINETI verwendet wird basiert auf Messungen aus den Jahren 1989 bis 1997 (Bleeker et al. 2000) und beschränkt sich auf Gebiete mit orographischer Höhe größer 250m. Die zweite Fragestellung bezieht sich auf die räumliche Variation der Deposition im Gebiet Bayrischer Wald. Hierfür stehen zusätzliche Messungen der nassen und feuchten Deposition zur Verfügung (FKZ 35101088). Die dritte Fragestellung bezieht sich auf den Vergleich der Ergebnisse der nassen Deposition resultierend aus der PINETI-Methodik und dem MAPESI-Vorhaben.

Es wurden daher die folgenden zusätzlichen Aufgaben durchgeführt:

1. Evaluierung der derzeit verwendeten Parametrisierung zur Berechnung der okkulten Deposition basierend auf vorhandenen Messwerten in Deutschland und einer Literaturrecherche.

2. Analyse der räumlichen Variation der trockenen, feuchten und nassen Deposition des PINETI-Vorhabens für das Jahr 2008 im Gebiet des bayerischen Waldes um den Forellenbach und Vergleich mit den dort verfügbaren Messwerten und Ergebnissen des MAPESI-Projektes für das Jahr 2007.

3.Vergleich der Ergebnisse der PINETI-Methode zur Modellierung der nassen Deposition für das Jahr 2007 (mit MAPESI-2007 Emissionen) mit den Ergebnissen der modellierten nassen Deposition aus MAPESI für das Jahr 2007.

Diese Aufgaben werden ausführlich in Kapitel 2 bis 4 diskutiert.

# 2 Aufgabe 1. Evaluierung der derzeit verwendeten Parametrisierung zur Berechnung der Feuchten Deposition basierend auf vorhandenen Messwerten in Deutschland und einer Literaturrecherche

## 2.1 Einleitung

Neben dem Schadstoffeintrag durch Niederschläge, trägt auch die Wolken- bzw. Nebelwasserinterzeption (= das Auskämmen von Wolken- oder Nebeltropfen) zum Schadstoffeintrag in Ökosysteme bei. Der Schadstoffeintrag durch Wolken- bzw. Nebelwasserinterzeption wird als okkulte oder feuchte Deposition bezeichnet. Die Literatur zu diesem Eintragspfad reicht weit zurück (u.a. Marloth, 1906; Grunow, 1954; Baumgartner, 1958, 1959). Im nationalen Mittel ist der Beitrag der feuchten Deposition zur Gesamtdeposition quantitativ häufig vernachlässigbar (nach den aktuellen Modellierungen ist die feuchte Deposition im Falle des Stickstoffs z.B. nur für etwa 5% des Gesamtstoffeintrages verantwortlich). Lokal kann der Eintrag jedoch standortsabhängig um ein vielfaches höher ausfallen (Klemm und Wrzesinsky, 2007). Der Typ der vorherrschenden Landnutzung (Grassfläche, Wald, etc.) beeinflusst die Höhe des Nebel-/Wolkenwassereintrages. Durch ihre Exponiertheit sind besonders Wälder, insbesondere in Höhenlagen, neben nasser und trockener Deposition zusätzlichen vom Eintrag durch Wolkenwasser/Nebel betroffen.

Die feuchte Deposition wird von zwei Größen bestimmt: 1) Der Menge der Flüssigwasserdeposition und 2) der Konzentration der im Wolken- bzw. Nebelwasser gelösten Spurenstoffe. Diese Größen sind jeweils von diversen Parametern abhängig.

Die Flüssigwasserdeposition ist u.a. vom Flüssigwassergehalt, der Nebel-/Wolkentropfengrößenverteilung, der Nebeldauer sowie von Turbulenz, Landnutzung und Orographie abhängig (Klemm und Wrzesinsky, 2007). Die Spurenstoff-/Ionenkonzentration ist das Resultat aus einem komplexen Zusammenspiel zwischen der Emission (lokal und nicht-lokal), der chemischen Umsetzung von Spurenstoffen in der Atmosphäre und atmosphärischen Prozessen auf der synoptischen, der regionalen und der lokalen Skala (Blas et al., 2010).

Die Schadstoffkonzentrationen sind in der Regel im Nebel-/Wolkenwasser höher als im Regenwasser (u.a. Collett et al. 1993; Pahl, 1996; Burkhard et al., 2003; Klemm and Wrzesinsky, 2007; Blas et al., 2010; Straub et al., 2012; Beudert und Breit, 2012). Die Anreicherungsfaktoren von Regenwasser zu Nebel-/Wolkenwasser variieren stark von Komponente zu Komponente aber auch für die einzelnen Komponenten innerhalb einer Untersuchung und zwischen den Untersuchungen an verschiedenen Standorten bzw. in verschiedenen Jahren. Klemm und Wrzesinsky (2007) fanden am Waldstein im Fichtelgebirge Anreicherungsfaktoren zwischen 6 und 18. Burkhard et al. (2003) fanden Anreicherungsfaktoren von 3 bis 66 für die verschiedenen untersuchten Komponenten in den Lägern in der Schweiz. Der Grund für die höhere Anreicherung im Nebel-/Wolkenwasser im Vergleich zu Regenwasser ist die geringere Verdünnung von Nebel-/Wolkenwasser, durch die fehlende Verfügbarkeit von kondensierbaren Wasserdampf und der, verglichen zu fallendem Regen und Schnee, effizientere Transfer von Emissionen am Erdboden in das Nebelwasser bzw. umgebenden Gasen in Wolkenwasser (Klemm und Wrzesinsky, 2007; Collett et al., 1993). Der Anreicherungsfaktor von Regenwasser zu Nebel-/Wolkenwasser der einzelnen Ionen gibt Aufschluss über die Distanz zu den

Emissionsquellen der Ionen bzw. ihrer Vorläufergase (Lövblad et al., 2004). Je näher die Emissionsquelle, desto höher der Anreicherungsfaktor (Klemm und Wrzesinsky, 2007).

Mit zunehmender orographischer Höhe erhöht sich der Wassereintrag durch Nebel/Wolken, während die Spurenstoffkonzentration abnimmt (z.B. durch Verdünnungseffekte) (Pahl, 1996). Mit Ausnahme von stark exponierten Gebieten (z.B. Gebirgsflanken oder Wälder in Höhenlagen/Gipfellagen), ist der Wassereintrag durch Nebel/Wolken im Jahresmittel geringer, als der Wassereintrag durch Niederschläge. Bei einer Messkampagne in den Vogesen (Herckes et al. 2002) lag der Jahreswassereintrag durch Nebel/Wolken bei 55.5 mm/Jahr und war damit vernachlässigbar klein gegen den Jahreswassereintrag durch Niederschläge von 1265mm/Jahr. Doch durch die höhere Konzentration der Schadstoffe im Nebel-/Wolkenwasser verglichen zu Regenwasser betrug der Anteil der feuchten Deposition an der gesamten nasse+feuchte Deposition 10%-28% für die Hauptionen. In einer Messkampagne am Waldstein (Klemm und Wrzesinsky, 2007) betrug der Jahreswassereintrag durch Nebel/Wolken 9.4% des Niederschlages. Der feuchte Depositionsfluss von Ionen lag jedoch in gleicher Größenordnung wie der nasse Depositionsfluss. In einer Untersuchung von Thalmann (2001) wurde die feuchte Deposition an einem Standort (Kerzersmoos, 435 m über Meeresniveau), an welchem die häufigste Nebelform Strahlungsnebel ist, mit der feuchten Deposition an einem Standort (Waldstein, 786 m über Meeresniveau), an welchem advektierte Wolken den größten Anteil der Nebelvorkommen ausmachen, verglichen. Während am Standort mit vorwiegend Strahlungsnebel der Anteil des feuchten Eintrages trotz der hohen Konzentrationen im Nebelwasser lediglich weniger als 4% des Anteils des nassen Eintrages betrug, waren am Standort mit vorwiegend advektierten Wolken die Anteile feuchter und nasse Deposition ungefähr gleich groß.

Der Wassereintrag durch Nebel/Wolken weist einen Jahresverlauf auf, mit einem Maximum in Herbst und Winter. Auch der Eintrag durch feuchte Deposition weist saisonale Schwankungen auf, welche jedoch nicht allein mit dem Jahresverlauf des Flüssigwassergehaltes erklärt werden können (Pahl, 1996). Auch die Emissionen der verschiedenen Schadstoffe, das Angebot an Oxidanten und die vertikale Durchmischung (Maximum im Sommer) weisen einen Jahreslauf auf. Zum Teil verlaufen die saisonalen Schwankungen gegenläufig (Blas et al., 2010).

Der Depositionsfluss durch Nebel/Wolkentropfen wird durch zwei Flüsse bestimmt: 1) dem turbulenten Fluss (Impaktion) und 2) dem gravitationsbedingten Fluss (Sedimentation). Der gravitationsbedingte Fluss spielt nur bei geringen Windgeschwindigkeiten eine wichtige Rolle und wird bei zunehmender Windgeschwindigkeit bzw. zunehmender Turbulenz gegenüber dem turbulenten Fluss vernachlässigbar klein (u.a. Klemm und Wrzesinsky, 2007; Blas, 2010). An dieser Stelle spielt auch die Landnutzung und die dadurch bedingte Rauhigkeitslänge eine wichtige Rolle. An Orten mit starker Kühlung durch Ausstrahlung und größerer Stabilität der Grenzschicht ist der gravitationsbedingte Fluss von größerer Bedeutung (Thalmann, 2001).

Die hohe zeitliche und räumliche Variabilität des Wassereintrages durch Nebel/Wolken und der Ionenkonzentration im Nebel-/Wolkenwasser bedingt durch die hohe Variabilität der Einflussparameter (u.a. Flüssigwassergehalt, Tropfengrößenverteilung, Nebeldauer, Turbulenz, Emission, Landnutzung) erschwert eine Quantifizierung des Stoffeintrages durch feuchte Deposition. Allein die Variationsbreite des Flüssigwassergehaltes kann innerhalb eines Wolkenereignisses fast 2 Größenordnungen betragen (Pahl, 1996). Dies führt Klemm und Wrzesinsky (2007) zu dem Schluss, dass eine Parametrisierung/Modellierung des Nebel-/Wolkenwassereintrages zu keinem Ergebnis

leeker et al.,

15

hoher Qualität führen kann. Letztere Aussage bezieht sich auch auf das eindimensionale Modell nach Lovett (1984) zur Bestimmung des Nebel-/Wolkenwassereintrages über Nadelwald, welches in vielen Studien (e.g. Mueller et al., 1991; Pahl, 1996; Herckes et al., 2002) verwendet wurde. Hierin werden die Windgeschwindigkeit über dem Baumbestand, der Flüssigwassergehalt, die Tropfengrößenverteilung und einige Vegetationsparameter als Eingangsparameter verwendet. Der Vorhersagefehler des Lovett Modells wird in Katata et al. (2008) mit 32% beziffert.

Innerhalb des PINETI Projektes wird der Nebel-/Wolkenwassereintrag nach der Methode von Bleeker et al. (2000) bestimmt. Hierbei wird die Depositionsgeschwindigkeit von Nebel-/Wolkentropfen mit der Depositionsgeschwindigkeit grober Partikel (>2.5µm) approximiert. Die in PINETI verwendete Methode zur Bestimmung der feuchten Deposition nach Berechnung des Nebel-/Wolkenwassereintrages basiert auf Anreicherungsfaktoren zwischen Regen- und Nebel-/Wolkenwasser die empirisch aus Untersuchungen mit Messungen aus den Jahren 1989 bis 1997 bestimmt wurden (Bleeker et al., 2000). Der Ansatz ist auf Gebiete mit orographischer Höhe über 350m beschränkt (wurde jedoch in PINETI auf Gebiete orographischer Höhe über 250m angewandt, um mit der Methodik des Vorgängervorhabens MAPESI konsistent zu bleiben).

Im Folgenden wird die in PINETI verwendete Methodik anhand aktuellerer Studien evaluiert. Auch alternative Ansätze werden vorgestellt und geprüft.

# 2.2 Darstellung der PINETI Methodik

Die in PINETI modellierte feuchte Deposition ist an sog. "hill clouds" gebunden. Bei "hill clouds" handelt es sich entweder um Nebel/Wolken, die durch Aufgleiten an Orographie entstanden sind oder um advektierte Wolken, die aufgrund der erhöhten Orographie auf Grund treffen. Die Berechnung der feuchten Deposition beruht auf dem Ansatz von Bleeker et al., 2000. Die feuchte Deposition kann mit dieser Methode nur für Gebiete in einer Höhenlage oberhalb von 350m berechnet und ausgewiesen werden, weil die gegebenen Funktionen für niedriger gelegene Gebiete ungültig sind. In PINETI wurde diese Methode jedoch auf Gebiete orographischer Höhe über 250m angewandt, um mit der Methodik des Vorgängervorhabens MAPESI konsistent zu bleiben. Weitere Details zur Verfahrensentwicklung und Anwendung sind ausführlich in Bleeker et al. (2000) beschrieben.

Die Berechnung der feuchten Deposition (nach Bleeker et al., 2000) lässt sich in den nachfolgenden Formeln beschreiben:

$$F_{cloud} = C_{cloud} \cdot \sum LWC(t) \cdot v_d(lu)$$

mit

 $C_{cloud} = a \cdot z^b \cdot C_{rain}$ 

• mit Koeffizienten a und b nach Bleeker et al., 2000 (Tabelle 1)

Formel 2

Formel 1

- und damit berechneter Konzentration in der Wolke  $C_{cloud}$  in mg l<sup>-1</sup>
- $\Sigma$ LWC(t) ist der kumulative Flüssigwassergehalt in kg<sub>water</sub> m<sup>-3</sup>
- $v_d$  (lu) ~  $1/R_a$ (lu) ist die Depositionsgeschwindigkeit in m s<sup>-1</sup>

Spezies	а	b
SO4	341	-0.64
NO3	912	-0.77
NH4	25.60	-0.24
Н	15.30	-0.24
Na	9.10E+05	-1.9
Mg	6.00E+07	-2.5
Са	1.30E+05	-1.6
K	2.20E+03	-0.99
Cl	3.00E+06	-2.09

Tabelle 1. Best-fit-Parameter a und b nach Bleeker et al., 2000

Die Depositionsgeschwindigkeit von Nebel-/Wolkentropfen mit der

Depositionsgeschwindigkeit grober Partikel (>2.5µm) approximiert. Der

Flüssigwassergehalt wird vom COSMO-EU Modell des Deutschen Wetterdienstes bezogen. Die horizontale Auflösung beträgt 7x7km<sup>2</sup> und es wird nur die unterste Modellschicht (ca. 10m über Grund) berücksichtigt. Abbildung 1 zeigt den akkumulierten

Flüssigwassergehalt der untersten Modellschicht für das Jahr 2008. Die feuchte Deposition wird in einer, der Modellberechnung nachgeschalteten Routine, für alle Gebiete oberhalb 250m über Meeresniveau berechnet.

Abbildung 1 Akkumulierter Flüssigwassergehalt der untersten Modellschicht des COSMO-EU Modells für das Jahr 2008



Es sei an dieser Stelle betont, dass Bleeker et al. (2000) eine leicht abgewandte Methode zur Berechnung der feuchten Deposition verwendet haben, da zu dieser Zeit der Flüssigwassergehalt noch nicht in der erforderten horizontalen und zeitlichen Auflösung zu Verfügung stand.

$$F_{cloud} = C_{cloud} \cdot LWC_{K \lim a} \cdot v_d \cdot (cloud \_occurence)_{K \lim a}$$
 Formel 3

mit:  $C_{cloud}$  in mg l<sup>-1</sup>

 $v_{d}$  (lu)  $\ \widetilde{}\ 1/R_{a}(lu)$  ist die Depositionsgeschwindigkeit in m s  $^{-1}$ 

LWC<sub>Klima</sub>= $0.15 \times 10^{-3}$  kg<sub>water</sub> m<sup>-3</sup>

 $(cloud\_occurence)_{Klima} = 1400$ 

steht für 1400 Stunden im Jahr mit Wolken/Nebel, was in Bleeker et al. (2000) aus Satellitendaten abgeleitet wurde.

Des Weiteren wird in Bleeker et al. (2000) betont, dass die chemischen Eigenschaften von Strahlungsnebel sich stark von denen der "hill clouds" unterscheiden. Die mittleren Konzentrationen im Nebelwasser sind für Strahlungsnebel höher als für "hill clouds" und stärker an lokale Emissionsquellen gekoppelt. Daher sind die Ergebnisse der Studie lediglich auf "hill clouds" anwendbar (Bleeker et al., 2000).

## 2.3 Evaluierung der PINETI Methodik

Im Folgenden wird die in PINETI verwendete Methodik anhand vorhandener vorausgegangener Studien evaluiert. Es standen leider ausschließlich Untersuchungen in Höhenlagen zur Verfügung.

Die feuchte Deposition wird vereinfacht aus dem Produkt des "Wassereintrags" und der "Konzentration im Nebelwasser" berechnet. Auch um die Unsicherheiten dieser beiden Bestandteile besser beurteilen zu können, werden der "Wassereintrag" und die "Konzentration im Nebelwasser" im Folgenden getrennt voneinander betrachtet.

### 2.3.1 Evaluierung des Nebel-/Wolkenwassereintrages

Abbildung 2 zeigt den mit der PINETI Methodik berechneten mittleren Jahresverlauf des Nebel-/Wolkenwassereintrag für die Jahre 2007-2009 in mm/Monat (= kg / m<sup>2</sup> / Monat) an sieben verschiedenen Höhenlagen in Deutschland. Gebiet, Bezeichnung, geographische Länge und Breite sowie Höhenangaben sind in Tabelle 2 zusammengefasst.

Alle Höhenlagen weisen ein Maximum in Herbst und Winter und ein Minimum in Frühjahr und Sommer auf. Dies entspricht den Ergebnissen vorausgegangener Untersuchungen (e.g. Blas, 1997; Klemm et al., 2005). Jedoch nicht alle Höhenlagen weisen das Maximum und Minimum im gleichen Monat auf. Hierfür sind regionalklimatische Bedingungen verantwortlich.

Höhenlage	Gebiet	geog. Länge	geog. Breite	Absolute Höhe über NN (m)	Abkürzung	
Brocken	Harz	51.80	10.62	1140	BR	
Feldberg	Schwarzwald	47.87	8.00	1480	FE	
Großer Arber	Bayrischer Wald	49.10	13.13	1440	GA	
Hohenpeißen- Alpenvorland berg		47.80	11.00	980	HP	
Kahler Asten	Sauerland	51.18	8.49	840	KA	
Wasserkuppe	Rhön	50.48	9.93	921	WK	
Waldstein	Fichtelgebirge	50.14	11.87	775	WS	

Tabelle 2. Auflistung betrachteter Höhenlagen

Oberhalb der Wolkenbasis nimmt der Flüssigwassergehalt mit steigender Höhe zu. Daher bestimmt die Höhe über der Wolkenbasis den Flüssigwassergehalt. Des Weiteren nimmt die Windgeschwindigkeit mit der Höhe zu. Daher ist ein Zusammenhang zwischen der Höhenlage eines Standortes und seines Nebel-/Wolkenwassereintrag zu erwarten. Hierbei spielt jedoch nicht die absolute Höhe über NN, sondern die relative Höhe zum Umland zu der sich auch die Wolkenuntergrenze ausrichtet die entscheidende Rolle (Pahl, 1996; Blas et al., 2010).

Der Brocken hat unter den hier gezeigten Höhenlagen den größten Nebel-/Wolkenwassereintrag, obwohl der Feldberg und der Große Arber eine größere Höhe aufweisen. Neben der Höhenlage sind die regionalklimatischen Bedingungen bestimmend für die Höhe des Nebel-/Wolkenwassereintrag. So führt das wolkenärmere Klima in der Rheintalebene zu geringeren Nebel-/Wolkenwassereinträgen auf dem Feldberg während der Harz die höchste Erhebung nach der norddeutschen Tiefebene ist und daher hier der Wassereintrag deutlich höher ausfällt (Pahl, 1996). Nach Pahl (1996) wurden im zehnjährigen Mittel (1985-1994) auf dem Brocken in 41% der Stunden Nebel gemessen, am Großen Arber in 37%, dem Feldberg in 33% und am Hohenpeißenberg in 14% der Stunden. Setzt man nun voraus, dass mit steigender Anzahl an Nebelstunden auch der Nebel-/Wolkenwassereintrag steigt, so wird diese Abstufung in dem anhand der PINETI Methodik berechneten Nebel-/Wolkenwassereintrag wie in Abbildung 2 ersichtlich wird, korrekt wiedergegeben.

Abbildung 2. Anhand der PINETI Methodik modelliertes Monatsmittel des Nebel-/Wolkenwassereintrages auf Nadelwald (=coniferous forest) von 2007-2009 an verschiedenen Höhenlagen.



Abbildung 3 zeigt erneut den anhand der PINETI Methodik berechneten mittleren Jahresverlauf des Nebel-/Wolkenwassereintrags für die Jahre 2007-2009 in mm/Monat ( = kg / m<sup>2</sup> / Monat) am Waldstein im Vergleich zu Messungen am Waldstein von April 2001 bis März 2002 (Klemm und Wrzesinsky, 2007). Anhand der Eddy Covariance Methode wurde der turbulente Fluss von Nebelwasser gemessen. Die Messvorrichtung befand sich hierbei 31m über der Geländeoberkante oberhalb eines Fichtenbestandes mit 19m Bestandshöhe. Der Sedimentationsfluss von Nebelwasser wurde anhand des Stokes Gesetzes bestimmt.

Die durchgezogene Linie (WS-mod) zeigt den nach der PINETI Methodik modellierten Nebel-/Wolkenwassereintrag (Mittel der Jahre 2007-2009), die gestrichelte Linie (WS-obs) den von Klemm und Wrzesinsky (2007) von April 2001 bis März 2002 gemessenen. Burkhard et al. (2002) hat für den selben Messaufbau am Waldstein einen Faktor d bestimmt, um den gemessenen turbulenten Wasserfluss in der Höhe z auf die Bestandshöhe  $h_c$  zu extrapolieren. Somit kann anhand des Faktors  $d=1/[1+0.116(z-h_c)]$  der Eintrag in den Bestand berechnet werden. Den resultierenden Nebel-/Wolkenwassereintrag zeigt die punkt-gestrichelte Linie (WS-obs-corr) in Abbildung 3. In einem weiteren Schritt kann der sogenannte "Edge-Effect" beachtet werden. In diesem wird beschrieben, dass an den Flanken des Bestandes der Eintrag höher ist, als innerhalb des Bestandes. Es wird angenommen, dass die Messvorrichtung durch ihre Exponiertheit den Eintrag an der Flanke des Bestandes repräsentiert. Nach Draaijers et al. (1994) kann diese Abnahme anhand einer exponentiellen Funktion von der Distanz zum Rand des Bestandes, x (in m), durch die Bestandshöhe,  $h_c$ , beschrieben werden:

 $Th_{eg}=Th_0 \cdot exp(-x/h_c)+Th_{int}$ 

wobei  $Th_{eg}$  der Nettofluss ist und  $Th_0$  und  $Th_{int}$  die Flüsse am Rand des Bestandes bzw. innerhalb des Bestandes sind. Nach Katata et al. (2011) kann für Nebeltropfen  $Th_0/Th_{int}=4$  angenommen werden. Die kreuz-gestrichelte Linie (WS-obs-corr-edge) zeigt die Messung unter Berücksichtigung des "Edge-Effects" für x=20m. Abbildung 3 zeigt, dass auch unter Berücksichtigung des "Edge-Effects" der anhand der PINETI Methodik modellierte und über die Jahre 2007-2009 gemittelte Nebel-/Wolkenwassereintrag am Standort Waldstein deutlich geringer als die Messung von April 2001 bis April 2002 ist. Die Differenz lässt sich nicht allein durch interannuelle Schwankungen erklären.

Abbildung 4 zeigt den nach der PINETI Methodik berechneten Nebel-/Wolkenwassereintrag auf Nadelwald in kg m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup> für die Jahre 2007, 2008 und 2009. Im Vergleich zeigt sich, dass der modellierte Nebel-/Wolkenwassereintrag für das Jahr 2009 deutlich geringer ist als für die Jahre 2007 und 2008 während die räumliche Verteilung der Eintrages für die Jahren 2007, 2008 und 2009 nur geringfügig variiert.

Es sei an dieser Stelle betont, dass die Berechnung des Wassereintrages am Waldstein nach der PINETI Methodik auf Basis des entsprechenden Gitterpunktwertes des Flüssigwassergehaltes und der Schubspannungsgeschwindigkeit durchgeführt wird. Die horizontale Auflösung der entsprechenden Modellfelder beträgt ca. 7x7km<sup>2</sup>. Mit dieser Auflösung kann die hohe räumliche Variabilität des Wassereintrages die z.B. von Baumgartner (1958) beschrieben ist und welche in komplexer Orographie besonders hoch ist, nicht erfasst werden.

Abbildung 3. Anhand der PINETI Methodik modelliertes Monatsmittel des Nebel-/Wolkenwassereintrages auf Nadelwald von 2007-2009 am Waldstein und Messungen am Waldstein aus dem Jahr 2001/2002 (Klemm und Wrzesinsky, 2007).



Abbildung 4. Nebel-/Wolkenwassereintrag auf Nadelwald berechnet anhand der PINETI Methodik für die Jahre 2007, 2008 und 2009.



#### 2.3.2 Evaluierung der Konzentration

Man kann nach Ahrens (2000) vier Nebelarten unterscheiden:

- 1. Orographischen Nebel
- 2. Strahlungsnebel
- 3. Advektionsnebel
- 4. Verdunstungsnebel

*Orographischer Nebel* entsteht durch das Aufgleiten einer feuchten Luftmasse an Orographie. Die damit verbundene adiabatische Abkühlung führt zur Tropfenbildung. *Strahlungsnebel* entsteht, wenn bodennahe Luftmassen durch Abstrahlung des Erdbodens abgekühlt werden und die Temperatur bis unter den Taupunkt fällt. *Advektionsnebel* entsteht, wenn eine milde, feuchte Luftmasse über eine kalte Bodenoberfläche gleitet, und damit die Temperatur unter den Taupunkt fällt. *Verdunstungsnebel* entsteht, wenn sich Luft durch Verdunstung abkühlt, wobei zugleich ihre Feuchte solange zunimmt, bis Wasserdampfsättigung eintritt und sich Tropfen bilden.

Die physikalischen Prozesse, die zur Nebelbildung führen unterscheiden sich grundlegend und damit auch die Zusammensetzung und Anreicherung von Spurenstoffen in den Nebeltropfen. Der Verdünnungseffekt führt bei wachsender Tropfengröße zu sinkenden Konzentrationen der Spurenstoffe im Tropfen. Die Tropfengröße wiederum hängt von den meteorologischen Bedingungen ab. Auch ist z.B. Strahlungsnebel, der meist mit stagnierenden Wetterlagen mit geringen Windgeschwindigkeiten verknüpft ist, stärker durch lokale Emissionen geprägt, als Advektionsnebel, bei dem bewegte Luftmassen beteiligt sind. In Höhenlagen handelt es sich bei "Nebel" in einem Großteil der Fälle um Advektion (=Herantransport) von Wolken (≠Advektionsnebel), die am Berg auf Grund stoßen und somit einen Großteil des Wassereintrages bedingen. Die physikalischen Prozesse, die zur Wolkenbildung führen und damit die Zusammensetzung und Anreicherung von Spurenstoffen in Wolkentropfen bestimmen, unterscheiden sich von denen bei der Nebelentstehung. Auch werden die Spurenstoffe in Wolkentropfen über weitere Strecken transportiert als in Nebeltropfen und sind auf entsprechend weit entfernte Emissionsquellen zurückzuführen. Der Nebeltyp bzw. die Art und Entfernung der Entstehung der Wolken spielt daher neben anderen Faktoren eine wichtige Rolle bei der empirischen Bestimmung der Anreicherungsfaktoren zwischen der Konzentration im Regenwasser und der Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser.

Die Methode zur Bestimmung der Konzentration im Nebel/Wolkenwasser, die in PINETI verwendet wird, basiert auf Messungen aus den Jahren 1989 bis 1997 (Bleeker et al. 2000). In der Veröffentlichung wird betont, dass die höhenabhängigen Anreicherungsfaktoren von Regenwasser zu Nebel/Wolkenwasser nur für sog. "hill clouds" verwendet werden können, da die Anreicherungsfaktoren auf Basis von Studien zu "hill clouds" ermittelt wurden. Bei "hill clouds" handelt es sich entweder um Nebel/Wolken, die durch Aufgleiten an Orographie entstanden sind oder um advektierte Wolken, die aufgrund der erhöhten Orographie auf Grund treffen.

Im Folgenden werden die nach Bleeker et al. (2000) bestimmten höhenabhängigen Anreicherungsfaktoren, die das Verhältnis zwischen der Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser und der Konzentration im Niederschlag wiedergeben, mit Anreicherungsfaktoren aktuellerer Studien, die nicht in Bleeker et al. (2000) enthalten sind, verglichen (Tabelle 3). Hierzu wurde in den Zusammenhang zwischen der Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser und der Konzentration im Regenwasser (Formel 2) die Höhe z des jeweiligen Untersuchungsortes eingesetzt. Wie in Tabelle 3 zu erkennen ist, handelt es sich beim dominanten Nebeltyp wie in Bleeker et al. (2000) fast ausschließlich um die weiter oben im Text definierten "hill clouds". Es überwiegen Studien mit Messungen in Höhenlagen > 600m. Es konnten nur zwei Untersuchungen zu Strahlungsnebel (=radiation fog) ausfindig gemacht werden. Die Ergebnisse aus Tabelle 3 sind in Abbildung 5 graphisch dargestellt. Es ist deutlich erkennbar, dass mit Ausnahme der Messungen in Straub et al. (2012), die Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) für alle Komponenten geringer ausfallen, als die Anreicherungsfaktoren der anderen Studien. Besonders deutlich wird dies für die Studien am Lägeren (Burkhard et al. 2003) und am Waldstein (Thalmann et al., 2002). Bleeker et al. (2000) verwendet eine Potenzfunktion zur Berechnung der Anreicherungsfaktoren, welche für kleine z zu sehr großen Anreicherungsfaktoren führt. In Bleeker et al. (2000) wird betont, dass Formel 2 nur für orographische Höhen größer 350m verwendet werden kann. Der Messstandort aus Straub et al. (2012) liegt mit 130m deutlich unterhalb der in Bleeker et al. (2000) angegebenen minimalen orographischen Höhe von 350m, weshalb sich mit Formel 2 stark erhöhte Anreicherungsfaktoren berechnen.

Innerhalb des FKZ 35101088 wurde im Forellenbachgebiet ein Messprogramm an einem Hochlagenstandort im Nationalpark Bayerischer Wald gestartet (Beudert und Breit, 2012). Neben dem klassischen Ansatz für das stoffliche Depositionsmonitoring im Wald mit Freiland- und Bestandsniederschlag wurde auch die Sammlung und Analyse von Nebelund Wolkenwasser durchgeführt. Beudert und Breit (2012) haben anhand der Sichtweite und der Niederschlagsmenge eine Unterscheidung der Nebelereignisse in "Nebel-" und "Wolkenereignis" vorgenommen. Anhand der als Wolke bzw. Nebel klassifizierten Ereignisse innerhalb der Messkampagne im Forellenbachgebiet werden die innerhalb der Bleeker et al. (2000) Methodik verwendeten Koeffizienten a und b (Tabelle 1), wie bereits für die Studien in Tabelle 3 für die feste Höhenlage am Messstandort evaluiert. Die Einteilung in "Wolke" und "Nebel" kann hierbei insofern aufschlussreich sein, als das Bleeker et al. (2000) betonen, dass die Koeffizienten a und b nur auf "hill clouds" anwendbar sind. Abbildung 6 zeigt zunächst den Vergleich der Anreicherungsfaktoren ohne Unterteilung in "Wolke" und "Nebel". Es zeigt sich wie im Vergleich mit den in Abbildung 4 gezeigten Studien, dass die mittels Formel 2 berechneten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) mit Ausnahme für H<sup>+</sup> deutlich niedriger sind als die innerhalb der Studie ermittelten Anreicherungsfaktoren. Abbildung 7 zeigt den Vergleich mit der von Beudert und Breit (2012) vorgenommenen Unterteilung in "Wolke" und "Nebel". Für die als "Wolke" definierten Fälle zeigt der Vergleich für 4 der 9 Komponenten, d.h. SO4-S, NH4-N, NO3-N und K, gute Übereinstimmungen zwischen den nach Bleeker et al. (2000) berechneten Anreicherungsfaktoren und den Ergebnissen der Studie nach Beudert und Breit (2012). Die als "Wolke" klassifizierten Fälle waren mit geringerer Sichtweite und damit mit größeren Tropfen verbunden. Durch den Verdünnungseffekt führt dies zu geringeren Konzentrationen. Es sei an dieser Stelle betont, dass es sich bei Beudert und Breit (2012) zunächst um 15 untersuchte Nebel-/Wolkenereignisse im Jahr 2011 handelt. Die Einbeziehung weiterer Messungen aus dem Jahr 2012, welche hier noch nicht umgesetzt werden konnte, wird an dieser Stelle empfohlen.

Author	Ort	Höbo(m)	Untersuchungs-	dominant type of for	AF	AF	AF	AF	AF	AF	AF	AF	AF
Aution	OIL	none(iii)	periode	dominant type of log	SO4	NO3	NH4	H+	Cl	Ca	К	Mg	Na
Thalmann et al. 2002	Waldstein (D)	786	27.0605.12.2000	advection of clouds	18,0	24,0	25,0	16,0	8,0	7,0	7,0	11,0	5,0
Bleeker et al. 2000		786		orographic fog (clouds)	4,8	5,4	5,2	3,1	2,7	3,0	3,0	3,5	2,9
Klemm et al., 2007	Waldstein (D)	775	17.04.2001-18.03.2002	advection of clouds	11,8	12,7	18,1	0,0	6,1	0,0	0,0	0,0	0,0
Bleeker et al. 2000		775		orographic fog (clouds)	4,8	5,4	5,2	0,0	2,7	0,0	0,0	0,0	0,0
Burkhard et al. 2003	Lägeren (CH)	690	21.09.2001-10.04.2002	radiation fog	35,0	54,0	66,0	11,0	7,0	11,0	0,0	0,0	7,0
Burkhard et al. 2004	Lägeren (CH)	690	21.09.2001-10.04.2002	atmos. instability fog	11,0	23,0	25,0	10,0	3,0	6,0	0,0	0,0	3,0
Bleeker et al. 2000		690		orographic fog (clouds)	5,2	5,9	5,3	3,2	3,5	3,7	0,0	0,0	3,7
Herckes et al. 2002	Strengbach, Vogesen (F)	1146	01.03.1998-31.07.1998	orographic fog (clouds)	7,0	5,0	4,5	51,0	8,0	8,0	9,5	6,0	10,0
Bleeker et al. 2000		1146		orographic fog (clouds)	3,8	4,0	4,7	2,8	1,2	1,7	2,1	1,3	1,4
Lange et al., 2003	Erzgebirge (D)	ca. 880	01.12.1997-01.06.1998	advection of clouds/fog	6,5	6,5	6,5	0,0	6,5	6,5	20,0	2,5	6,5
Bleeker et al. 2000		ca. 880		advection of clouds/fog	4,4	4,9	5,0	0,0	2,1	2,5	2,7	2,6	2,3
Skybova, 2006	Beskydy Mountain (CZ)	1324	01.05.2003-01.04.2004	orographic fog (clouds)	2,0	4,1	3,6	0,0	1,4	3,7	1,4	2,4	1,0
Bleeker et al. 2000		1324		orographic fog (clouds)	3,4	3,6	2,7	0,0	0,9	1,3	1,8	0.9	1,1
Straub et al. 2012	40.79N;76.88W (US)	ca. 130	2007-2010	radiation fog	3,9	3,1	16,0	0,0	13,0	13,0	32,0	6,1	0,0
Bleeker et al. 2000		ca. 130		orographic fog (clouds)	15,1	21,5	8,0	0,0	114,5	53,9	17,8	311,4	0,0
Igawa et al. 1998	Mt. Oyama (JP)	680	1995	advection of clouds/fog	9,0	27,0	50,0	14,0	8,0	3,0	8,0	5,0	4,0
Bleeker et al. 2000		680		orographic fog (clouds)	5,2	6,0	5,3	3,2	3,6	2,3	3,4	5,0	3,8

#### Tabelle 3. Vergleich von empirisch bestimmten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) zu Messungen.



Abbildung 5. Vergleich von empirisch bestimmten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) zu Messungen an verschiedenen Höhenlagen.

Klemm et al.

Bleeker et al.

Na

Herckes et al.

Bleeker et al.

Na

Skybova et al.

Bleekeretal.

Na

lgawa et al.

Bleekeretal.

Na

Mg

Mg

Mg

Mg



#### Abbildung 6. Vergleich von empirisch bestimmten Anreicherungsfaktoren nach Bleeker et al. (2000) zu Messungen am Großen Falkenstein aus FKZ 35101012/04.





Abbildung 8 zeigt die Konzentrationen der Ionen  $SO_4^{2^{-}}$ ,  $NO_3^{-}$ ,  $NH_4^{+}$  und  $H^{+}$  in Nebel-/Wolken- und Regenwasser für die Jahre 1992-2006 am Whiteface Mountain im US Bundesstaat New York (Aleksic et al., 2009). Die Messungen wurden auf einer Höhe von 1483m über NN durchgeführt. Anhand der Abbildung soll veranschaulicht werden, dass die interannuelle Variation der Konzentration sowohl im Niederschlag als auch im Nebel-/Wolkenwasser hoch ist. Des Weiteren verlaufen Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser und Konzentration im Niederschlag nicht in Phase. Eine Schlussfolgerung von Aleksic et al. (2009) ist daher, dass von der Niederschlagschemie an einem Standort nicht auf die dortige Nebel-/Wolkenchemie geschlossen werden kann.

Abbildung 8. Konzentrationen der Hauptionen in Wolken- (links) und Regenwasser (rechts) für die Jahre 1992-2006 am Whiteface Mountain (NY, US) (Aleksic et al., 2009).



#### 2.4 Neue Ansätze und Vergleich zur PINETI Methodik

Die bisherige Auswertung zeigte, dass die Nebeldeposition zwischen verschiedenen Standorten und zum Teil auch auf einer relativ kleinen räumlichen Skala sehr stark variieren kann. Ferner wurde gezeigt, dass die Nebeldeposition am Standort Waldstein (Klemm und Wrzesinsky, 2007) von der derzeit in PINETI verwendeten Parametrisierung deutlich unterschätzt wird. Daher soll zunächst ein alternativer Ansatz zur Berechnung der Nebel-/Wolkenwasserdeposition getestet werden. Während der Ansatz nach Bleeker et al. (2000) den vertikalen Fluss bei der Berechnung der Nebel-/Wolkenwasserdeposition betrachtet ( $v_d \sim R_a^{-1}$ ), wurde ein alternativer Ansatz gewählt, in welchem die horizontalen Komponente des Eintrages (insbesondere bei advektierten Wolken, die in Höhenlagen auf Grund/Wald treffen) berücksichtigt wird. In Katata et al. (2008) wird die Nebel-/Wolkendeposition auf die Vegetation anhand einer einfachen linearen Funktion, welche aus numerischen Experimenten mit einem komplexen mehrschichtigen Atmosphäre-Vegetation-Boden Modell (SOLVEG (Yamazawa and Nagai, 1997)) stammt, berechnet. In Katata et al. (2011) wird der Ansatz zur Berechnung der Nebel-/ *Wolkenwasserdepositiongelusses innerhalb* der metoerologischen Verberzegemedells WPE

Wolkenwasserdepositionsflusses innerhalb des meteorologischen Vorhersagemodells WRF eingesetzt. Eine Validierung in Katata et al. (2011) zeigte einen Vorhersagefehler der Menge des Nebel-/Wolkenwassereintrages von nur 13%.

Im Folgenden sollen der Ansatz der Modellierung des Nebel-/Wolkenwasserflusses nach Katata et al. (2008; 2011) vorgestellt und getestet werden und anschließend mit der PINETI Methodik verglichen werden.

Nach Katata et al. (2008) ist die Depositionsgeschwindigkeit:

$$v_d = A * u$$
 Formel 4

mit:  $A = 0.0164 \cdot \left(\frac{LAI}{h}\right)^{-0.5}$  für  $\frac{LAI}{h} > 0.2$  Formel 5

u: horizontale Windgeschwindigkeit über der Vegetation

A: von Vegetationscharakteristik abhängiger Faktor

LAI: Blattflächenindex (Leaf Area Index)

h: Canopy height

#### Nach Katata et al. (2011) folgt damit:

$F_{cloud} = F_{Katata} \cdot C_{cloud}$	Formel 6

Formel 7

 $F_{Katata} = v_d \cdot \rho_{air} \cdot \sum LWC(t) = A \cdot u \cdot \rho_{air} \cdot \sum LWC(t)$ mit:  $\rho_{air}$ : Dichte der Luft in kg m<sup>-3</sup>

 $\sum$ LWC(t): der kumulative Flüssigwassergehalt in kg<sub>water</sub> kg<sub>air</sub><sup>-1</sup>

Wie im Ansatz nach der PINETI Methodik wird zur Berechnung des Depositionsflusses der Flüssigwassergehalt der untersten Schicht des COSMO-EU Modells des DWD verwendet. Die horizontale Windgeschwindigkeit und die Dichte stammen aus Konsistenzgründen zur PINETI Methodik vom ECMWF (10m Modellwind und Dichte der untersten Modellschicht). Somit liegt der einzige Unterschied in der Verwendung einer anderen Depositionsgeschwindigkeit. Abbildung 9 zeigt den anhand Katata et al (2008; 2011) berechneten mittleren Nebel-/ Wolkenwasserdepositionsfluss für Nadelwald für die Jahre 2007-2009. Für Nadelwald wird im LOTOS-EUROS Modell eine Bestandshöhe von 20m und ein LAI von 6 angenommen. Diese Werte wurden für die Berechnung nach Katata et al. (2008; 2011) übernommen. Abbildung 9 zeigt auch den anhand der PINETI Methodik für den gleichen Zeitraum berechneten Nebel-/Wolkenwasserdepositionsfluss. Während die räumliche Verteilung zwischen den beiden Methoden nicht stark variiert, ist der Absolutwert des anhand der Katata Methodik berechneten Depositionsflusses im Vergleich zur PINETI Methodik um das ca. 3-4-fache erhöht.

Dies zeigt auch der Vergleich der Jahresverläufe des Nebel-/Wasserdepositionsflusses an verschiedenen Höhenlagen in Abbildung 10. Nach beiden Methoden weist der Depositionsfluss ein Maximum in Herbst und Winter und ein Minimum in Frühling und Sommer auf. Im Absolutwert jedoch ist der nach Katata et al. (2008; 2011) berechnete Nebel-/ Wasserdepositionsfluss höher als der nach der PINETI Methodik berechnete.

Abbildung 9. Anhand Katata et al (2008; 2011; linke Seite) und PINETI Methodik (rechte Seite) berechneter mittlerer Nebel-/ Wolkenwasserdepositionsfluss auf Nadelwald für die Jahre 2007-2009.



Abbildung 10. Anhand Katata et al. (2008;2010) (links) und anhand der PINETI Methodik (rechts) modelliertes Monatsmittel des Nebel-/Wolkenwassereintrages auf Nadelwald von 2007-2009 an verschiedenen Höhenlagen.



Abbildung 11 zeigt den Vergleich des anhand der Katata Methodik berechneten Nebel-/ Wasserdepositionsflusses zu Messungen, wie dies in Abbildung 3 bereits für den anhand der PINETI berechneten Fluss gezeigt wurde. Die Messungen wurden von März 2001 bis April 2002 durchgeführt, während der modellierte Fluss ein Mittel über die Jahre 2007-2009 darstellt. Nach Berücksichtigung des "Edge Effects" liegt der nach Katata et al. (2008; 2011) berechnete Fluss für die meisten Monate näher an den Messungen als der nach der PINETI Methode berechnete Fluss (→ Abbildung 3).

Abbildung 11. Anhand von Katata et al. (2008; 2011) modelliertes Monatsmittel des Nebel-/Wolkenwassereintrages auf Nadelwald von 2007-2009 am Waldstein und Messungen am Waldstein aus dem Jahr 2001/2002 (Klemm und Wrzesinsky, 2007).



Neben einem neuen Ansatz zur Berechnung der Nebel/Wolkenwasserdeposition sollen die von Bleeker et al. (2000) empirisch bestimmten höhenabhängigen Anreicherungsfaktoren durch Hinzunahme neuere Studien verfeinert werden. Tabelle 4 zeigt die gesammelten Studien inklusive jener, die Bleeker et al. (2000) zur Bestimmung der höhenabhängigen Anreicherungsfaktoren verwendet hat.

In Abbildung 12 sind die Anreicherungsfaktoren für jede Komponente für alle Studien (linke Seite) bzw. ausschließlich die Studien aus Bleeker et al. (2000) (rechte Seite) gegen die orographische Höhe des Messstelle aufgetragen. Hierbei wurden die beiden Strahlungsnebel Studien (Straub et al., 2012; Burkhard et al. 2003) ausgeschlossen, da die Konzentrationen in Strahlungsnebel sehr stark durch lokale Emissionen beeinflusst werden. Der Ausschluss dieser beiden Studien mag dazu führen, dass die empirisch ermittelten Anreicherungsfaktoren für Strahlungsnebel nicht repräsentativ sind. Da jedoch Strahlungsnebel meist mit stationären Wetterlagen mit geringen Windgeschwindigkeiten auftreten ist der Nebeldepositionsfluss bei Strahlungsnebel ohnehin gering (Blas et al., 2010: Lowland fog, with predominant radiation type of origin, relies on air mass stagnation. Under these low wind conditions the main path of fog droplets deposition is sedimentation by gravity, thus the efficiency of fog precipitation is very limited). An die in Abbildung 12 dargestellten gemessenen Anreicherungsfaktoren aus diversen Studien wurde sowohl ein Fit anhand einer Potenzfunktion (schwarz) wie in Bleeker et al. (2000) als auch ein Fit anhand einer exponentiellen Funktion (grün) erstellt. Die dazugehörige Funktion und das zugehörige Bestimmtheitsmaß ( $\mathbb{R}^2$ ) sind im jeweiligen Graph oben rechts angegeben. Das Bestimmtheitsmaß R<sup>2</sup> gibt den Anteil der Variation der Messungen der durch den Fit beschrieben wird wieder. Hierfür wurde die Potenz-Regressionsfunktion mit dem Logarithmus in eine guasilineare Regressionsgleichung überführt und die "Methode der kleinsten Quadrate" wurde auf diese quasilineare Gleichung angewendet. Der zusätzliche Fit anhand einer exponentiellen Funktion wurde gewählt, da der Fit anhand der Potenzfunktion für kleine Höhen z zu unrealistisch

großen Anreicherungsfaktoren führt. Anhand des exponentiellen Fit soll untersucht werden, ob die Methodik auf geringere Höhen als die in Bleeker et al. (2000) angegebene Grenzhöhe von 350m erweitert werden kann. Sowohl bei Berücksichtigung aller Studien als auch bei ausschließlicher Berücksichtigung der Studien aus Bleeker et al. (2000) unterscheidet sich das Bestimmtheitsmaß R<sup>2</sup> nur marginal zwischen Fit durch Potenzfunktion und Fit durch exponentielle Funktion. Vergleicht man allerdings das Bestimmtheitsmaß R<sup>2</sup>, welches sich bei Berücksichtigung aller Studien ergibt mit dem, welches sich bei ausschließlicher Berücksichtigung der Studien aus Bleeker et al. (2000) ergibt, wird deutlich, dass mit steigender Anzahl an Studien die Streuung stark zunimmt und R<sup>2</sup> sinkt. Die neu hinzugefügten Studien können nicht durch den in Bleeker et al. (2000) ermittelten Fit beschrieben werden. Die Streuung der Anreicherungsfaktoren im Wolken-/Nebelwasser zwischen den Studien bestätigt die starke Abhängigkeit von lokalen Charakteristiken (Orographie, Emission etc.). Die Variation der Konzentration im Wolken-/Nebelwasser ist zu groß um die durch den Verdünnungseffekt erwartete Höhenabhängigkeit der Konzentrationen anhand der vorhandenen Studien zufriedenstellend zu reproduzieren.

Quelle	Autor	Ort	Land	Höhe(m)	Untersuchungsperiode	dominanter Nebeltyn	AF SO4 💌	AF NO3 💌	AF NH4 💌	AF H+ 💌	AF Na 💌	AF Cl 💌	AF Mg 💌	AF Ca 💌	AF K 💌
Bleeker	Fowler et al. 1995	Dunclair Heights (UK)	UK	600	1993-1994	advection of clouds	5,40	7,00	7,50						
Bleeker	Fowler et al. 1995	Halladale (UK)	UK	337	1993	advection of clouds	8,00	12,80							
Bleeker	Fowler et al. 1995	Great Dun Fell (UK)	UK	847	1993	advection of clouds	5,00	13,80	5,10						
Bleeker	Inglis et al., 1995	Holme Moss (UK)	UK	600	1994	advection of clouds	4,60	6,60	4,20						
Bleeker	Crossley et al., 1992	Castleaw (UK)	UK	450	1986	advection of clouds	12,00	7,60	10,50						
Bleeker	Reynolds et al., 1996	Llyn Brianne (UK)	UK	520	1989-1990	advection of clouds	7,50	7,50	8,50	3,50	11,00	11,00	11,00	5,00	6,50
Bleeker	Brantner et al., 1994	Mt. Sonnblick (A)	A	3106	1991	orographic fog (clouds)	3,00	2,00	5,00	3,00					
Bleeker	Collett et al., 1993	Mt. Rigi (CH)	СН	1325	1990-1991	orographic fog (clouds)	2,30	2,60	2,70						
Bleeker	Bormann et al., 1989	Douglas Island (US)	US	800	1984-1985	advection of clouds	5,60	7,00	3,50	3,00	4,80	6,30	5,50	5,00	5,30
Bleeker	Bormann et al., 1989	Marys Peak (US)	US	1245	1984-1986	orographic fog (clouds)	2,70	3,40	4,60	2,00	0,90	0,70	0,90	1,40	1,20
Bleeker	Miller et al., 1993	Whiteface Mountain (US)	US	1050	1986-1989	advection of clouds	3,30	2,70	5,10	2,60	2,10	2,20	1,50	1,30	2,50
Bleeker	Vong et al., 1997	Cheeka Peak (US)	US	460	1993	advection of clouds	6,50	5,60	3,00	5,70	6,90	7,70			3,00
Bleeker	Schemenauer et al., 1995	Mont Tremblant (CAN)	CAN	610	1985-1991	advection of clouds	4,00	3,90	5,90	2,60	2,10	2,20	3,50	3,80	3,20
Weitere	Zier et al., 1992	Erzgebirge (D)	D	877	1987	advection of clouds	8,50	11,00	18,50						
Weitere	Dasch et al 1988	Clingmans Peak (US)	US	2025	1986	orographic fog (clouds)	13,00	13,00	14,00						
Weitere	Thalmann et al. 2002	Waldstein (D)	D	786	27.0605.12.2000	advection of clouds	18,00	24,00	25,00	16,00	5,00	8,00	11,00	7,00	7,00
Weitere	Klemm et al., 2007	Waldstein (D)	D	775	17.04.2001-18.03.2002	advection of clouds	11,80	12,70	18,10			6,10			
Weitere	Burkhard et al. 2003	Lägeren (CH)	СН	690	21.09.2001-10.04.2002	radiation fog	35,00	54,00	66,00	11,00	7,00	7,00		11,00	
Weitere	Burkhard et al. 2003	Lägeren (CH)	СН	690	21.09.2001-10.04.2002	atmos. instability fog	11,00	23,00	25,00	10,00	3,00	3,00		6,00	
Weitere	Herckes et al. 2002	Strengbach, Vogesen (F)	F	1146	01.03.1998-31.07.1998	orographic fog (clouds)	7,00	5,00	4,50	51,00	10,00	8,00	6,00	8,00	9,50
Weitere	Lange et al., 2003	Erzgebirge (D)	D	880	01.12.1997-01.06.1998	advection of clouds/fog	6,50	6,50	6,50		6,50	6,50	2,50	6,50	20,00
Weitere	Skybova, 2006	Beskydy Mountain (CZ)	CZ	1324	01.05.2003-01.04.2004	orographic fog (clouds)	2,00	4,10	3,60		1,00	1,40	2,40	3,70	1,40
Weitere	Beudert et al., 2012	Großer Falkenberg (D)	D	1314	01.0905.12.2011	advection of clouds/fog	13,72	16,15	18,20	2,42	7,11	4,30	7,63	6,33	2,53
Weitere	Straub et al. 2012	40.79N;76.88W (US)	US	130	2007-2010	radiation fog	3,90	3,10	16,00			13,00	6,10	13,00	32,00
Weitere	Aleksic et al. 2009	Whiteface Mountain (US)	US	1483	1993-2006	advection of clouds/fog	6,50	5,40	9,50	5,00	3,80	4,30	6,70	6,40	5,30
Weitere	lgawa et al. 1998	Mt. Oyama (JP)	JP	680	1995	advection of clouds/fog	9,00	27,00	50,00	14,00	4,00	8,00	5,00	3,00	8,00
Weitere	Zapletal et al. 2007	Cervenohorske (CZ)	CZ	1013	1999-2002	advection of clouds/fog	1,46	4,50	4,30	1,26	1,97	1,00		7,92	2,27
Weitere	Acker et al., 1998	Mt. Brocken	D	1142	1993-1996	advection of clouds/fog	4,88	7,63	8,10	3,66	3,71	2,92	4,03	2,90	1,85

Tabelle 4. Auflistung der verwendeten Studien zur Ermittlung der Anreicherungsfaktoren der Konzentration im Regen- und Nebel-/Wolkenwasser.



Abbildung 12. Anreicherungsfaktoren für jede Komponente aufgetragen gegen die orographische Höhe der Messstelle für alle Studien (linke Seite) bzw. ausschlieβlich die Studien aus Bleeker et al. (2000) (rechte Seite).





## 2.5 Testläufe

Unter Einbezug der in den vorausgegangenen Kapiteln gewonnenen Erkenntnisse wurden für die Landnutzungsklasse Nadelwald für das Jahr 2008 folgende Modellläufe durchgeführt:

- 1. Basislauf aus PINETI
- 2. PINETI Nebel-/Wolkenwassereintrag mit Nebel-/Wolkenwasserkonzentration bestimmt anhand eines exponentiellen Fit an die Studien aus Bleeker et al. (2000)
- 3. PINETI Nebel-/Wolkenwassereintrag mit Nebel-/Wolkenwasserkonzentration bestimmt anhand eines exponentiellen Fit an alle verfügbaren Studien
- 4. PINETI Nebel-/Wolkenwassereintrag mit Nebel-/Wolkenwasserkonzentration ohne Höhenabhängigkeit bestimmt aus dem Mittel aller verfügbaren Studien
- 5. Nebel-/Wolkenwassereintrag nach Katata et al. (2008;2011) mit Nebel-/Wolkenwasserkonzentration bestimmt anhand eines exponentiellen Fit an alle verfügbaren Studien
- 6. Nebel-/Wolkenwassereintrag nach Katata et al. (2008;2011) mit Nebel-/Wolkenwasserkonzentration ohne Höhenabhängigkeit bestimmt aus dem Mittel aller verfügbaren Studien zu "hill clouds" (→
- 7.
- 8. Tabelle 5)

Um die Möglichkeit der Modellierung der feuchten Deposition auch unterhalb von 350m zu untersuchen wurden die Testläufe ohne Grenzhöhe für ganz Deutschland durchgeführt. In den Abbildung 13 bis Abbildung 14 sind die feuchten Depositionen für die unterschiedlichen Optionen am Beispiel von NH<sub>x</sub> für das Jahr 2008 dargestellt. Der Vergleich zwischen Abbildung 13a und Abbildung 13b zeigt, dass unter Verwendung eines exponentiellen Fit (Abbildung 13b) an die Anreicherungsfaktoren die feuchte Deposition in Gebieten unter 250m deutlich geringer ist, als unter Verwendung eines Fit anhand einer Potenzfunktion (Abbildung 13a), welche für kleine Höhen z zu unrealistisch hohen Anreicherungsfaktoren führt. Durch hohe NH<sub>3</sub>-Emissionen in Nordwestdeutschland steigt die modellierte feuchte Deposition hier auf ähnlich hohe Werte wie im höher gelegenen Südosten des Landes, wo der erhöhte Eintrag durch feuchte Deposition durch den erhöhten Wassereintrag in dieser Region bedingt ist. Die Berücksichtigung aller Studien (Abbildung 13c) führt für NH<sub>x</sub> im Vergleich zur ausschließlichen Berücksichtigung der Studien aus Bleeker et al. (2000) (Abbildung 13b) zu geringfügig höheren Flüssen der feuchten Deposition in den Höhenlagen (z.B. im Harz). In Abbildung 13d ist der Depositionsfluss in Höhenlagen im Vergleich zu den Abbildung 13a bis Abbildung 13c deutlich erhöht, da innerhalb dieser Modelloption die Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser nicht mit der Höhe abnimmt. Wie aus bisherigen Ergebnissen zu erwarten war, ist der anhand von Option 5 und Option 6 berechnete Depositionsfluss (Abbildung 14) deutlich höher als die nach Option 1-4 berechneten Flüsse, da der Nebel-/Wolkenwassereintrag berechnet nach Katata et al. (2008;2011) um das ca. 4-fache höher ist als der nach der PINETI Methodik berechnete Eintrag. Die räumliche Verteilung des feuchten Depositionsflusses ist dabei nur marginal unterschiedlich zwischen den Modellläufen. Auch in Abbildung 14 ist ein durch die hohen NH<sub>3</sub>-Emissionen bedingter erhöhter feuchter Depositionsfluss in Nordwestdeutschland sichtbar, welcher jedoch trotz der hohen Emissionen geringer ausfällt, als der Fluss im höher gelegenen Südosten des Landes, welcher durch den hohen Wassereintrag bedingt ist (siehe Abbildung 9).

Spezies	Mittlerer Anreicherungsfaktor
SO4 <sup>2-</sup>	7,05
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	9,33
$NH_4^+$	10,84
H⁺	7,75
Na⁺	4,77
Mg <sup>2+</sup>	5,19
Ca <sup>2+</sup>	4,81
K⁺	5,67
CI	4,78

Tabelle 5. Mittel der Anreicherungsfaktoren aller verfügbaren Studien zu "hill clouds".


Abbildung 13. Option 1 (a), 2 (b), 3 (c) und 4 (d):  $NH_x$  feuchte Deposition für das Jahr 2008.

Abbildung 14. Option 5 (a) und Option 6 (b):  $NH_{x}$  feuchte Deposition für das Jahr 2008.



Abbildung 15 bis Abbildung 17 zeigen die Ergebnisse des Modelllaufs nach Option 5 für NOy für die Jahre 2007 bis 2009 (linke Seite). Wie die Abbildungen zeigen, ist interannuelle Variabilität sowohl der Quantität als auch der räumlichen Verteilung groß. Der Nebel-/Wolkenwassereintrag des Jahres 2009 ist deutlich geringer als der der Jahre 2007 und 2008. Während im Jahr 2007 ein Gebiet erhöhten Depositionsflusses in Westbayern aufgrund des in diesem Jahr dort hohen Wassereintrages zu erkennen ist, ist dieses Gebiet in den Jahren 2008 und 2009 nicht so flächendeckend erhöht. Auf der rechten Seite ist jeweils der anhand Katata et al. (2008;2011) jedoch mit Konzentrationen ohne Höhenabhängigkeit bestimmt aus dem Mittel aller verfügbaren Studien berechnete feuchte Depositionsfluss dargestellt. Der Vergleich der unterschiedlichen Jahre zueinander im Verhältnis zum Vergleich zwischen der jeweiligen linken und rechten Abbildung zeigen, dass die interannuelle Variabilität des Eintrages deutlich größer ist, als die Variation resultierend aus den unterschiedlichen Methoden zur Bestimmung der Konzentrationen im Nebel-/Wolkenwasser.

Abbildung 15. Feuchte Deposition von NOy für das Jahr 2007 berechnet anhand Option 5 (links) und Option 6 (rechts).



Abbildung 16. Wie Abbildung 14 für 2008.



#### Abbildung 17. Wie Abbildung 14 für 2009.



#### 2.6 Schlussfolgerung und Ausblick

Die Methodik zur Berechnung der feuchten Deposition innerhalb des PINETI Projektes wurde anhand einer Literaturstudie und anhand von vorausgegangenen Messkampagnen evaluiert. Hierzu standen ausschließlich Untersuchungen in Höhenlagen (meist an exponierten Standorten) zur Verfügung. Die Ergebnisse der Untersuchung bestätigen frühere Studien, welche die hohe räumliche und zeitliche Variabilität sowohl des Nebel-/Wolkenwassereintrages als auch der Konzentrationen von Spurenstoffen im Nebel-/Wolkenwasser hervorheben (z.B. Klemm und Wrzesinsky, 2007: Due to the high variability of the contributing factors and processes, it is very difficult to generalize the results). Ein Vergleich mit einer verfügbaren Messung am Waldstein (Klemm und Wrzesinsky, 2007) hat gezeigt, dass der nach der PINETI Methodik berechnete Nebel-/Wolkenwassereintrag am betrachteten Standort zu gering ist. Anhand eines Ansatzes nach Katata et al. (2008; 2011) konnte die Modellierung des Nebel-/Wolkenwassereintrages am Standort Waldstein verbessert werden. Eine erweiterte Evaluierung der neuen Methodik, insbesondere auf für weniger exponierte Standorte, wäre wünschenswert, ist jedoch zurzeit aufgrund fehlender Messungen aus aktuellen Messkampagnen nicht möglich.

Des Weiteren hat die Untersuchung ergeben, dass die von Bleeker et al. (2000) ermittelten Funktionen zur Bestimmung der Anreicherungsfaktoren zwischen der Konzentration im Niederschlag und der Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser die Messungen aktuellerer Studien nicht zufriedenstellend beschreiben können. Aufgrund starker Streuung wurde die Bestimmung eines höhenabhängigen Zusammenhangs zwischen der Konzentration im Niederschlag und der Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser erschwert.

Eine Reihe von Testläufen hat jedoch ergeben, dass die Wahl des Ansatzes zur Bestimmung der Konzentration im Nebel-/Wolkenwasser zu deutlich weniger Variabilität im Ergebnis des feuchten Depositionsflusses führt, als die interannuelle Variabilität des Nebel-/Wolkenwassereintrages.

In der von Bleeker et al. (2000) und in PINETI verwendeten Methodik werden zur Bestimmung des Nebel-/Wolkenwassereintrages über das Jahr gemittelte Parameter verwendet (Flüssigwassergehalt, Depositionsgeschwindigkeit etc.). Aus Konsistenzgründen wurde auch in der Methodik nach Katata et al. (2008;2011) die Berechnung anhand von Jahresmittelwerten durchgeführt. Da die Parameter sich jedoch nicht linear zueinander verhalten, führt eine Berechnung anhand von Jahresmittelwerten zu einem anderen Ergebnis, als die genauere Berechnung anhand stündlicher Werte. Abbildung 18a zeigt den nach Katata et al. (2008; 2011) anhand von Jahresmitteln berechneten Nebel-/Wolkenwassereintrag auf Nadelwald und Abbildung 18b den aus stündlichen Werten berechneten Eintrag. Die Abbildungen weisen Unterschiede sowohl im Absolutwert als auch in der räumlichen Verteilung auf. Durch die Berechnung auf stündlicher Basis steigt der Maximalwert im Vergleich zur Berechnung auf Jahresbasis, während der Mittelwert über die gesamte Domäne sinkt. Da der zusätzliche Rechenaufwand durch eine Berechnung anhand stündlicher Werte sich in Grenzen hält, wird eine Berechnung auf stündlicher Basis empfohlen.

Es besteht die Möglichkeit, die Berechnung der feuchten Deposition in das LOTOS-EUROS Modell zu integrieren und nicht wie bisher als "post-process", d.h. nach Abschluss der Modellberechnung der nassen und trockenen Deposition, durchzuführen. Dies ist von großer Wichtigkeit um die Erhaltung der Massenbilanz zu gewährleisten. Der Einbau der Berechnung der feuchten Deposition in das LOTOS-EUROS Modell birgt auch die Möglichkeit, die im Modell bestimmten Stoffkonzentrationen im Nebel-/Wolkenwasser zu verwenden. Somit wäre man nicht mehr auf die Verwendung des Ansatzes nach Bleeker et al. (2000) zur Bestimmung der Konzentrationen im Nebel-/Wolkenwasser aus den Konzentrationen im Niederschlag angewiesen. Hierbei muss jedoch beachtet werden, dass die derzeitige Auflösung des Modells (7x7km<sup>2</sup>) die hohe räumliche Variabilität des Eintrages durch feuchte Deposition nicht abbilden kann. Da bedingt durch ihre Exponiertheit besonders Wälder in Höhenlagen durch advektierte Wolken von relevanten Einträgen durch feuchte Deposition betroffen sind, ist eine ausschließliche Betrachtung dieser relevanten Gebiete für den feuchten Eintrag eine weitere Möglichkeit, die geprüft werden sollte.

Abbildung 18 Anhand Katata et al (2008; 2011) berechneter mittlerer Nebel-/ Wolkenwasserdepositionsfluss auf Nadelwald für die Jahre 2007-2009 basierend auf Jahresmittel (Maximum: 285.7 kg m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>; Mittel: 14.2 kg m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>) (a) und stündlichen (Maximum: 328.4 kg m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>; Mittel: 10.4 kg m<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>) (b) der meteorologischen Inputparameter



# 3 Aufgabe 2. Analyse der räumlichen Variation der trockenen, feuchten und nassen Deposition des PINETI-Vorhabens und Vergleich mit Ergebnissen des MAPESI-Vorhabens

### 3.1 Einleitung

In dieser Studie wird die räumlichen Variation der trockenen, feuchten und nassen Deposition des PINETI-Vorhabens für das Jahr 2007 im Gebiet des bayerischen Waldes um den Forellenbach untersucht und mit den dort verfügbaren Messwerten und Ergebnissen des MAPESI-Projektes verglichen.

Innerhalb des PINETI-Vorhabens wird zur Berechnung der trockenen Deposition das LOTOS-EUROS Modell verwendet. Bei der Modellierung der feuchten und nassen Deposition gehen neben LOTOS-EUROS Modelldaten auch die Messungen der nassen Deposition ein. Die Berechnung findet zunächst auf einem Gitter von ca. 7 x 7 km<sup>2</sup> statt. Anhand eines nachgelagerten Verfahrens (post-processing) wird die Auflösung anschließend auf 1 x 1 km<sup>2</sup> reduziert. Die Methodik, die innerhalb des PINETI Projektes angewendet wurde, ist ausführlich im Teilbericht 1 des Projektes beschrieben.

Während bei der PINETI-Methodik für die Modellierung der nassen und feuchten Deposition auch LOTOS-EUROS Modelldaten verwendet werden, basierte die Berechnung innerhalb des MAPESI Projektes allein auf Messungen der nassen Deposition. Die Methodik, die innerhalb des MAPESI Projektes verwendet wurde ist in Gauger et al. (1997, 2000, 2002, 2005, 2008) beschrieben.

Im Bereich des bayerischen Waldes – insbesondere im Forellenbachgebiet – stehen eine Reihe von Messungen der nassen bzw. bulk Deposition zur Verfügung. Das Gebiet selbst ist orographisch sehr stark gegliedert, was die Abbildung der mittleren Deposition pro Gitterzelle mit Modellen zusätzlich erschwert. Im Rahmen des MAPESI-Vorhabens wurde festgestellt, dass es im Forellenbachgebiet zu einigen relativ deutlichen Abweichungen zwischen den gemessenen und den modellierten Werten kam. Ziel dieses Arbeit war es daher anhand der dort verfügbaren detaillierten Depositions-Monitoringdaten die räumliche Variation der nassen Deposition zu analysieren und mit der räumlichen Variation der modellierten Deposition aus den Vorhaben MAPESI und PINETI für das Jahr 2007 (vgl. Aufgabe 3) zu vergleichen.

Der Vergleich zwischen PINETI- und MAPESI-Vorhaben kann für die feuchte Deposition nur auf Basis unterschiedlicher Jahre (PINETI: 2008 und MAPESI: 2007) stattfinden, da innerhalb des PINETI-Projektes keine Karten der feuchten Deposition für das Jahr 2007 erstellt wurden. Hingegen wurden für die nasse Deposition innerhalb der Aufstockung des PINETI Projektes Karten erstellt, um den Einfluss des Methodikwechsels zu untersuchen (→ siehe dieser Bericht Aufgabe 3). Daher kann die nasse Deposition aus beiden Vorhaben für das Jahr 2007 verglichen werden. Des Weiteren stehen, anders als für die trockene und feuchte Deposition, für die nasse Deposition Messungen zum Vergleich im Forellenbachgebiet zur Verfügung.

#### 3.2 Trockene Deposition

Abbildung 19 zeigt die trockene Deposition von SO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub> und NH<sub>x</sub> aus dem PINETI Vorhaben für das Jahr 2008 für das Forellenbachgebiet (Zoomplot: 48.3N-49.2N; 12.5E-13.5E). Das LOTOS-EUROS Modell wurde zur Berechnung der trockenen Deposition verwendet. Die Karten basieren auf einer von 7x7km<sup>2</sup> auf 1x1km<sup>2</sup> interpolierten Mosaik-Landnutzungskarte. Der Eintrag der trockenen Deposition ist stark von der räumlichen Variabilität der Landnutzung und der Emission abhängig. Abbildung 19 zeigt für SO<sub>x</sub> und NO<sub>y</sub> hohe trockene Einträge für Gebiete, in welchen Nadelwald die vorherrschende Landnutzungsklasse ist, wie z.B. im Forellenbachgebiet, was zu einer hohen Depositionsgeschwindigkeit führt. Für NH<sub>x</sub> sind die höchsten Einträge in landwirtschaftlich genutzten Gebieten zu verzeichnen, da Ammoniak eine geringe Verweilzeit in der Atmosphäre aufweist und nahe der Emissionsquelle wieder deponiert. Anders als beim Eintrag durch nasse oder feuchte Deposition ist der Einfluss räumlicher und zeitlicher Variabilität meteorologischer Parameter auf die trockene Deposition gering.







Abbildung 19. Trockene Deposition von  $SO_x$ ,  $NO_y$  and  $NH_x$  in eq ha<sup>-1</sup> yr<sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben für das Jahr 2008.

## 3.3 Feuchte Deposition

Abbildung 20 zeigt die feuchte Deposition von SO<sub>x</sub>, NO<sub>v</sub> und NH<sub>x</sub> aus dem PINETI Vorhaben für das Jahr 2008 (links) und aus dem MAPESI Vorhaben für das Jahr 2007 (rechts) für das Forellenbachgebiet (Zoomplot: 48.3N-49.2N; 12.5E-13.5E). Grundlage für die gezeigten Karten aus PINETI sind Karten der nassen Deposition im  $1 \ge 1 \text{ km}^2$ -Raster. Die Karten wurden durch ein Kriging-Verfahren (Auflösung 1 x 1 km<sup>2</sup>) erzeugt, mit welchem die verfügbaren Messwerte der Konzentration im Niederschlag durch Informationen aus dem LOTOS-EUROS-Modell interpoliert wurden; diese Karten der Konzentration wurden anschließend mit Niederschlagskarten verschnitten. Ferner sind zur Berechnung der feuchten Deposition Informationen zum Flüssigwassergehalt und die landnutzungsabhängigen Depositionsgeschwindigkeiten der gröberen Schwebstaubfraktion (>2,5 µm) erforderlich. Die Depositionsgeschwindigkeiten stammen auf dem LOTOS-EUROS-Modell und liegen mit einer Auflösung von 7 x 7 km<sup>2</sup> vor. Die Methode innerhalb von MAPESI war ähnlich (vgl. dazu die oben zitierten Berichte). Die hier gezeigte Auflösung ist allerdings für die PINETI-Daten schlechter, da dafür die Deposition für das Landnutzungsklassen-Mosaik in eine 7 x 7 km<sup>2</sup>-Zelle verwendet wurde, und diese Werte dann wieder bilinear auf ein 1 x 1 km<sup>2</sup>-Raster interpoliert wurden.

In beiden Vorhaben wurde die feuchte Deposition anhand der Methodik nach Bleeker et al. (2000) berechnet. Hierzu wurde die Konzentration im Nebelwasser anhand der Konzentration im Niederschlag bestimmt. Zur Berechnung des Nebeleintrages wurde der Flüssigwassergehalt der untersten Modellschicht des COSMO-EU Modells verwendet. Wie für die trockene Deposition wurden die Karten innerhalb des PINETI Projektes von TNO und innerhalb des MAPESI Projektes vom Institut für Navigation der Universität Stuttgart (INS) erstellt.

Abbildung 20 zeigt, dass der feuchte Eintrag für alle Komponenten innerhalb des MAPESI-Vorhabens für das Jahr 2007 im Forellenbachgebiet deutlich höher ausfällt als innerhalb des PINETI-Vorhabens für das Jahr 2008. Im Mittel ist der feuchte Eintrag innerhalb des MAPESI Projektes für alle Komponenten um ca. einen Faktor 10 größer. Die räumliche Verteilung der feuchten Deposition variiert in beiden Projekten (MAPESI und PINETI) zwischen SO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub> und NH<sub>x</sub> nur sehr geringfügig. Der Grund hierfür ist, dass der Wassereintrag, welcher vom akkumulierten Flüssigwassergehalt abhängt (siehe dieser Bericht, Aufgabe 1), die räumliche Verteilung des feuchten Eintrages bestimmt. Daher ist der feuchte Eintrag in Hochlagen im Vergleich zum Umland erhöht. Dies ist in den Karten beider Vorhaben (MAPESI und PINETI) sichtbar.

Der Flüssigwassergehalt weist eine starke jährliche Variabilität auf (siehe auch dieser Bericht, Aufgabe 1). Das COSMO-EU Modell weist für die unterste Modellschicht in der Summe für das Jahr 2007 einen höheren Flüssigwassergehalt auf, als für das Jahr 2008. Der deutliche Unterschied zwischen PINETI- und MAPESI-Vorhaben für alle Komponenten kann allein dadurch jedoch nicht erklärt werden. Ein weiterer Grund für den höheren feuchten Eintrag im und um das Forellenbachgebiet innerhalb des MAPESI-Vorhabens ist eine höhere Konzentration im Niederschlag für alle Komponenten im Vergleich zum PINETI-Vorhaben (siehe hierzu auch Abschnitt 4), welche auch zu einer höheren Konzentration im Nebelwasser führt und damit zu einem höheren Eintrag durch feuchte Deposition. Hierzu folgt im nächsten Abschnitt ein Vergleich der nassen Deposition aus beiden Vorhaben zu Messungen im Forellenbachgebiet.

Innerhalb der Aufstockung des PINETI Projektes wurde die innerhalb von PINETI verwendete Methodik zur Bestimmung der feuchten Deposition ausführlich evaluiert (siehe dieser Bericht, Aufgabe 1). Eines der Ergebnisse ist, dass der modellierte Wassereintrag zumindest für exponierte Lagen unterschätzt wird. Die Modellierung des feuchten Depositionsflusses anhand einer verbesserten Modellierung des Wassereintrages innerhalb der Aufstockung des PINETI Projektes führte jedoch weiterhin zu deutlich geringeren Werten als innerhalb des MAPESI-Vorhabens. Diese Abweichungen sollten noch weiter untersucht werden.

Abbildung 20. Feuchte Deposition von SO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub> and NH<sub>x</sub> eq ha<sup>-1</sup> yr<sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben für das Jahr 2008 (links) und aus dem MAPESI-Vorhaben für das Jahr 2007 (rechts).









.0 30.0 60.0 90.0 120.0 150.0 180.0 210.0 240.0 270.0 300.0





0.0 30.0 60.0 90.0 120.0 150.0 180.0 210.0 240.0 270.0 300.0





### 3.4 Nasse Deposition

Wie in der Einleitung beschrieben basiert die Modellierung der nassen Deposition in PINETI auf einer Kombination aus Messungen und LOTOS-EUROS Modelldaten. Das verwendete sogenannte Kriging-Verfahren ist im Teilbericht 1 des Projektes ausführlich beschrieben. Innerhalb des MAPESI Projektes basierte die Modellierung der nassen Deposition ausschließlich auf einer geostatistischen Interpolation der Messungen (Gauger et al., 1997; 2000; 2002; 2005; 2008), ohne die Hinzunahme von Modellinformationen.

Anders als für die trockene und die feuchte Deposition kann für die nasse Deposition das Jahr 2007 aus beiden Vorhaben, PINETI und MAPESI, verglichen werden. Des Weiteren liegen Messungen aus dem Forellenbachgebiet zum Vergleich vor. Tabelle 6 und Tabelle 7 zeigen den modellierten nassen Depositionsfluss aus PINETI und MAPESI für SO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub> und NH<sub>x</sub> an verfügbaren Messstationen im Forellenbachgebiet für die Jahre 2007 und 2008. Abbildung 21 zeigt zum Vergleich zwischen Modellierung und Messung die zugehörigen Scatterplots für SO<sub>x</sub>,  $NO_{y}$  und  $NH_{x}$ . Die Steigung der linearen Regressionsgerade ist in der jeweiligen Abbildung angegeben. Man sieht, dass der geringere Niederschlag im Jahr 2008 verglichen zum Jahr 2007 auch zu geringeren nassen Einträgen geführt hat (Abbildung 22). Der Vergleich für das Jahr 2007 zeigt für die nassen Depositionen von SO<sub>x</sub> und NO<sub>y</sub> niedrigere Werte für das PINETI Vorhaben als für das MAPESI Vorhaben an den Stationen Forellenbach und Bayerischer Wald (Freifläche). Der Vergleich zu Messungen zeigt für beide Vorhaben zufriedenstellende Ergebnisse. Die modellierten NH<sub>x</sub> Einträge des MAPESI-Vorhabens liegen jedoch an den Stationen Forellenbach und Bayerischer Wald (Freifläche) deutlich über den vor Ort gemessenen Werten. Die Überschätzung der nassen NH<sub>x</sub> Einträge am Forellenbach in MAPESI werden auch in Abbildung 23 ersichtlich. Die Abbildung zeigt die nasse Deposition von  $SO_x$ , NO<sub>v</sub> und NH<sub>x</sub> des PINETI Vorhabens (links) und des MAPESI Vorhabens für das Jahr 2007 (rechts) für das Forellenbachgebiet (Zoomplot: 48.3N-49.2N; 12.5E-13.5E) als Flächenplot und die vor Ort gemessenen Einträge in den farblich unterlegten kleinen Kreisen. An der Station Donau-Gräuboden werden die nassen NH<sub>x</sub>-Einträge in beiden Vorhaben unterschätzt. Letzteres könnte daran liegen, dass die Station ggf. stark durch lokale Einflüsse geprägt ist.

Tabelle 6. Nasse Deposition von  $SO_x$ ,  $NO_y$  und  $NH_x$  für das Jahr 2007 an vier Messstationen in Südostdeutschland (Messung, PINETI-Vorhaben und MAPESI-Vorhaben).

2007	station name	latitude	longitude	altitude	SOx - OBS	SOx - PINETI	SOx - MAPESI	NOy - OBS	NOy -PINETI	NOy - MAPESI	NHx - OBS	NHx - PINETI	NHx - MAPESI
units		degrees	degrees	m	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1
DEUB046	Forellenbach	13,421	48,948	858,000	298,960	284,931	313,000	348,660	389,096	425,000	394,631	462,780	795,000
DEBY155	Donau- Gräuboden	12,590	48,853	339,000	198,498	173,462	166,000	205,749	241,384	230,000	578,474	308,188	435,000
DEBY164	Bayrischer Wald Freifläche	13,428	48,960	980,000	318,657	319,400	352,000	483,695	439,824	478,000	601,044	519,412	887,000

Tabelle 7. Nasse Deposition von SO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub> und NH<sub>x</sub> für das Jahr 2008 an sieben Messstationen in Südostdeutschland (Messung und PINETI-Vorhaben).

2008	station name	latitude	longitude	altitude	SOx - OBS	SOx - PINETI	NOy - OBS	NOy - PINETI	NHx - OBS	NHx - PINETI
units		degrees	degrees	m	Eq ha-1 yr-1	Eq ha-1 yr-1				
DEUB046	Forellenbach	13,421	48,948	858,000	201,523	187,321	269,978	313,688	341,741	396,820
DEBY135	Neusling	12,875	48,694	345,000	133,451	122,458	221,672	233,674	410,060	353,581
DEBY141	Reith	13,190	48,400	360,000	102,655	118,608	158,091	242,150	319,513	359,543
DEBY155	Donau- Gräuboden	12,590	48,853	339,000	133,856	141,825	194,621	213,285	430,471	339,936
DEBY164	Bayrischer Wald Freifläche	13,428	48,960	980,000	248,593	212,170	428,211	355,821	586,186	445,943





# Abbildung 22: Nasse Deposition von SO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub> and NH<sub>x</sub> eq ha<sup>-1</sup> yr<sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben für das Jahr 2008 (links) und aus dem MAPESI-Vorhaben für das Jahr 2007 (rechts)



# Abbildung 23: Nasse Deposition von SO<sub>x</sub>, NO<sub>y</sub> and NH<sub>x</sub> eq ha<sup>-1</sup> yr<sup>-1</sup> aus dem PINETI-Vorhaben (links) und aus dem MAPESI-Vorhaben für das Jahr 2007 (rechts)



# 3.5 Schlussfolgerung

Die räumliche Variation der Einträge unterscheidet sich erwartungsgemäß relativ wenig zwischen den Ergebnissen des PINETI und des MAPESI Vorhabens. Der Vergleich der modellierten nassen Einträge des MAPESI Vorhabens mit Messungen im Forellenbachgebiet für das Jahr 2007 zeigt, dass die nassen NH<sub>x</sub> Einträge des MAPESI Vorhabens an den Stationen Forellenbach und Bayerischer Wald (Freifläche) deutlich über den vor Ort gemessenen Werten liegen. Innerhalb des PINETI Vorhabens wurden die nassen Einträge an den Stationen Forellenbach und Bayerischer Wald (Freifläche) zufriedenstellend modelliert. Zumindest in diesem Gebiet scheint die Hinzunahme von Modellinformationen zu einer Verbesserung der Interpolationsergebnisse zu führen.

Da die Modellierung der feuchten und der nassen Deposition eng miteinander verbunden sind (Ableitung der Konzentration im Nebelwasser aus der Konzentration im Niederschlagswasser) liegen auch die im PINETI-Vorhaben ermittelten feuchten Einträge deutlich unter denen, die innerhalb von MAPESI ermittelt wurden. Hier stehen allerdings für 2007 keine Messungen zum Vergleich zur Verfügung (vgl. Aufgabe 1).

4 Aufgabe 3. Vergleich der Ergebnisse der PINETI-Methode zur Modellierung der nassen Deposition für das Jahr 2007 (mit MAPESI-2007 Emissionen) mit den Ergebnissen der modellierten nassen Deposition aus MAPESI für das Jahr 2007.

#### 4.1 Introduction

The average deposition to Germany calculated within the MAPESI project (e.g., for N: 22 kg N/ha/yr) for the years 2005-2007 and the PINETI project (e.g., for N: 18 kg N/ha/yr) for the years 2008 and 2009 differ. This difference may be attributed to different emissions in Germany, different meteorological conditions (e.g., we have seen that the precipitation amounts in 2008 and 2009 are significantly lower than the precipitation amounts in 2007) as well as to changes in the methodology used.

The dry deposition modeling does not differ between PINETI and MAPESI; hence the differences in the dry deposition (MAPESI(2005-2007): 11 kg N/ha/yr; PINETI(2008 and 2009): 9.7 kg N/ha/yr) are mainly caused by changes in the emissions and the meteorology.

However, the method to calculate the wet deposition in PINETI is different from the method that was used in MAPESI. To further investigate the reason for the difference in wet deposition between PINETI (2008: 7.8 kg N/ha/yr) and MAPESI (2007: 9.6 kg N/ha/yr) it was decided to compare the MAPESI results for 2007 and the PINETI results for 2007 using the same meteorology and emissions, such that only the applied methods differ. In this way, an objective comparison between the methods used within MAPESI and PINETI can be made.

# 4.2 Precipitation

The following figure shows the spatial distribution of the precipitation amount over Germany on a 1 x 1 km<sup>2</sup> grid size resolution in the year 2007. The precipitation data are obtained from DWD (www.dwd.de) and determine the spatial distribution of the wet deposition to a large extend. In the comparison between the MAPESI 2007 and PINETI 2007 results, the precipitation cannot be an explanation for differences between the two studies, as the same precipitation map is used in both studies. As the emissions of MAPESI 2007 are also used in the PINETI 2007 results, differences between MAPESI 2007 and PINETI 2007 can only occur through differences in the methods to calculate the concentration in precipitation fields. The method that is applied in the PINETI project is described in Teilbericht 1 of the project. The method that is used in MAPESI is described in Gauger et al., 1997, 2000, 2002, 2005, 2008. The main difference between the two methods is that in PINETI, the modeled concentration in precipitation fields are combined with the observations, while in MAPESI the concentration in precipitation fields are only based on the observations. Abbildung 24. Distribution of the annual precipitation amount over Germany in 2007.



Abbildung 25. Example of stations used for the Kriging and derived concentration of NH<sub>4</sub><sup>+</sup> in precipitation distributions over Germany in 2005 MAPESI using observations only (left), 2007 PINETI using observations only (upper right) and 2007 PINETI using model and observations (lower right). Note that the units differ. Further note that the observations are on the y-axis in the MAPESI plots, while they are on the x-axis in the PINETI plots.



Abbildung 25 shows an example of stations that are used for the Kriging of the concentration in precipitation fields over Germany in 2005 within MAPESI using observations only (left), 2007 within PINETI using observations only (upper right) and 2007 within PINETI using model and observations (lower right).

Abbildung 25 clearly shows that if only observations are used for the Kriging, the obtained concentration in precipitation fields are rather smooth, e.g., left and upper right figures. When the modeled field is also used in the Kriging, much more spatial information is added in the field of concentrations in precipitation and the obtained field seems to better represent the observations. The figure also shows that the set of measurement stations used as input for the Kriging procedures is similar but not identical in the two studies.

This is also observable in the scatter plots (Abbildung 26), in which the values obtained after Kriging are compared with the observations that enter the procedure. Abbildung 26 indicates that the spatial correlation between the modeled and measured concentrations for MAPESI 2005 is similar to the spatial correlation between modeled and measured concentrations in precipitation for PINETI 2007 if only observations are used for Kriging (upper right figure). The lower right figure in Abbildung 26 shows that the correlation increases if apart from the measurements also modeled concentrations in precipitation are used as input for the Kriging procedure.

Abbildung 26. Validation of derived annual concentration in precipitation fields with stations that were used for Kriging in 2005 MAPESI (left), 2007 PINETI only observations used (upper right) and 2007 PINETI model and observations used (lower right). Note that the axes of the MAPESI results (meq I<sup>-1</sup>) are different from the axes of the PINETI results.



# 4.3 Spatial distributions

In the following figures a comparison is made between the MAPESI wet deposition results (upper left figures) and the PINETI wet deposition results for the year 2007 (upper right figures). The MAPESI results are based on measurement only, while the PINETI results for  $NH_x$ ,  $SO_x$  and  $NO_y$  are based on measurements and model results. The wet deposition of the other components is based on measurements only in both, PINETI and MAPESI. The lower left figures show the ratio between PINETI 2007 and MAPESI 2007, while the lower right figures show the absolute difference between PINETI 2007 and MAPESI 2007. Results are presented per component.

Differences occur because different observation networks are used in both studies. For example, the station near Anklam (northeastern Germany) did not seem to be present in the MAPESI project (

Abbildung 25; left figure) and seems to have a large effect for especially the  $NH_x$  deposition in this area. Besides, we have seen in Abbildung 26 (lower right figure) that spatial information from the model results is added and leads to differences (in  $SO_x$ -nss,  $NH_x$  and  $NO_y$ ), which can be seen for example in the wet deposition of  $NH_x$  in Niedersachsen. Also the 'hot spots' in the wet deposition of  $SO_x$ -nss in Eastern Germany are a result from the use of model data as input for the Kriging. The enhanced wet deposition around these local sources is realistic as concentrations around these sources can be quite high. Nevertheless, the uncertainty of the wet deposition around the 'hot spots' is also large as wet deposition scavenging ratios are not derived for these 'hot spots' in particular.



Abbildung 27. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for SO<sub>x</sub>-nss.

SO<sub>x</sub>-nss



Abbildung 28. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for NH<sub>x</sub>.

NH<sub>x</sub>



Abbildung 29. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for NO<sub>y</sub>.



Abbildung 30. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Na<sup>+</sup>.

# Na⁺



Abbildung 31. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Ca<sup>2+</sup>.

# Ca<sup>2+</sup>



Abbildung 32. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Mg<sup>2+</sup>.

63

### Mg<sup>2+</sup>



Abbildung 33. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for K<sup>+</sup>.

Ca<sup>2+</sup>-nss



Abbildung 34. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Ca<sup>2+</sup>-nss.

Mg<sup>2+</sup>-nss



Abbildung 35. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for Mg<sup>2+</sup>-nss.

In the case of  $Mg^{2+}$  the average uncorrected deposition load does not differ between the MAPESI and the PINETI results (Abbildung 32; 1.0). However, the derived sea-salt-corrected data (Abbildung 35; 1.4) show a significant difference. This difference is caused by the use of different correction factors: while a Magnesium-to-Sodium ratio in sea salt of 0.278 (Eq  $Mg^{2+}/Eq$   $Na^+$ ) was used within MAPESI (cf. Table 3 in Annex 16 of the MAPESI report), we used a ratio of 0.230 (Eq  $Mg^{2+}/Eq$   $Na^+$ ) as given in the international mapping manual (UNECE (2004); Table 2.1).



Abbildung 36. Comparison of MAPESI 2007 (upper left) and PINETI 2007 (upper right), relative difference (lower left) and absolute difference (lower right) for K\*-nss.

#### K⁺-nss

# 4.4 Spatial correlation

After the comparison of the spatial distributions, a comparison of the spatial correlations is presented by means of scatterplots of modeled versus measured concentration in precipitation (Abbildung 37 and Abbildung 38). In MAPESI the scatterplots are only available for 2005 (obtained from Appendix XVI of the MAPESI report; Builtjes et al., 2011).







Abbildung 38. Scatterplots of mapping results versus observations for 2007 in PINETI [mg I<sup>1</sup>].

#### 4.5 Conclusions

Significant differences are found between the MAPESI 2007 and PINETI 2007 results for the different components (Tabelle 8). For  $SO_x$ -nss,  $NH_x$  and  $NO_y$ , these differences are caused by differences in the observations that are used for the Kriging and by including model results in the Kriging (see also Figure 20 in Teilbericht 1 of the project), while for the other components the differences are only due to differences in the observations that are used for the Kriging. In general, the PINETI method gives similar or better results than the MAPESI method, especially for the components in which the model results are included.

	MAPESI 2007	PINETI 2007	relative difference	difference
	[Eq ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> ]	[Eq ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> ]	[-]	[Eq ha <sup>-1</sup> yr <sup>-1</sup> ]
SO <sub>x</sub> -nss	237.63	226.00	0.95	-11.63
NH <sub>x</sub>	416.46	346.28	0.83	-70.18
NO <sub>y</sub>	268.55	275.53	1.03	6.98
Na⁺	252.86	266.66	1.05	13.79
Ca <sup>2+</sup>	115.25	92.59	0.80	-22.66
Mg <sup>2+</sup>	69.87	70.06	1.00	0.18
K⁺	37.18	27.92	0.75	-9.26
Ca <sup>2+</sup> -nss	104.12	81.27	0.78	-22.85
Mg <sup>2+</sup> -nss **	8.91	12.65	1.42	3.74
K⁺-nss	31.87	22.27	0.70	-9.60

Tabelle 8. Overview table of the mean wet deposition over Germany in 2007 using the MAPESI and PINETI method.

\*\* mean value for Mg2+-nss is based on non-zero values only

For nitrogen the analysis indicates a systematic difference between the average wet deposition calculated within MAPESI (9.6 kg N/ha/yr) and PINETI (8.7 kg N/ha/yr) of about 0.9 kg N/ha/yr. This difference is mainly caused by the difference in the wet NH<sub>x</sub> deposition. In the PINETI results for 2008 the wet N-deposition was 7.8 kg N/ha/yr and the observed difference compared to the MAPESI results 1.8 kg N/ha/yr. This means that about 50% of the difference between the 2007 N-deposition (MAPESI) and the 2008 N-deposition (PINETI) are caused by methodological changes, while the remaining 50% result from changed meteorology and/or emissions.

### **5** References

- Acker, K., Moller, D., Marquardt, W., Bruggemann, E., Wieprecht, W., Auel, R., Kalaß, D., 1998. Atmospheric research program for studying changing emission patterns after German unification. Atmos Environ 1998; Vol 32, No. 20, pp. 3435 –3443.
- Ahrens, C. D., 2000. Meteorology Today: An Introduction to Weather, Climate, and the Environment. Pacific Grove. Brooks/Cole.
- Aleksic, N., Roy, K., Sistla, G., Dukett, J., Houck, N., Casson, P., 2009. Analysis of cloud and precipitation chemistry at Whiteface Mountain, NY. Atmospheric Environment, Volume: 43, Issue: 17.
- Baumgartner, A., 1958. Nebel und Niederschlag als Standortfaktor am Großen Falkenstein (Bayrischer Wald) Forstwiss. Centralblatt 13, 257–272.
- Baumgartner, A., 1959. Das Wasserangebot aus Regen und Nebel sowie die Schneeerteilung in den Wäldern am Großen Falkenstein (Bayrischer Wald). Wald und Wasser 3, 45-54.
- Beudert, B. und Breit, W., 2012. Horizontaler Niederschlag, nasse und feuchte Deposition im Inneren Bayerischen Wald. Integrated Monitoring Programm an der Messstelle Forellenbach im Nationalpark Bayerischer Wald. Umweltbundesamt Förderkennzeichen 351 01 012/04.
- Blas, M., 1997. Experimental measurement of cloud liquid water content (LWC) in summer and winter conditions. Acta Universitatis Wratislaviensis., Prace Instytutu Geograficznego, Meteorologia i Klimatologia IV, pp. 147–154.
- Blas, M., Polkowska, Z., Sobik, M., Klimaszewska, K., Nowinski, K., Namiesnik, J., 2010. Fog water chemical composition in different geographic regions of Poland, Atmos. Res. 95(4), 455–469.
- Bleeker, A., Draaijers, G.P. J., Klap, J. M. and Van Jaarsveld, J. A., 2000. Deposition of Acidifying Components and Base Cations in the Period 1987-1995 in Germany. Study on Behalf and for the Account of Umweltbundesamt, Berlin (FE. Nr. 108 03 081). National Institute of Public Health and the Environment (RIVM). Bilthoven. Report No. 722108027.
- Bormann, B.T., R.F. Tarrant, M.H. McClellan and T. Savage, 1989. Chemistry of rainwater and cloud water at remote sites in Alaska and Oregon. Journal of Environmental Quality, 18, 149-152.
- Brantner, B., H. Fierlinger and H. Puxbaum (1994), Cloud water chemistry in the subcooled droplet regime at Mount Sonnblick. Water, Air and Soil Pollution, 74, 363-384.
- Builtjes, P.J.H., Hendriks, E., Koenen, M., Schaap, M., Banzhaf, S., Kerschbaumer, A., Gauger, T., Nagel, H.-D., Scheuschner, T., Schlutow, A., 2011. Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeintraegen und ihren Wirkungen in Deutschland (in German). MAPESI-Project: Modeling of Air Pollutants and Ecosystem Impact. UBA Bericht zu BMU/UBA FE-Nr. 3707 64 200; Texte 38/2011; ISSN 1862-4804; Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, 2011.
- Burkard, R., Eugster, W., Wrzesinsky, T. and Klemm, O. 2002. Vertical divergences of fogwater fluxes above a spruce forest. Atmos. Res. 64, 133–145.
- Burkard, R., Butzberger, P., Eugster, W., 2003. Vertical fogwater flux measurements above an elevated forest canopy at the Lageren research site, Switzerland. Atmospheric Environment 37, 2979-2990.

- Collet, J., B. Oberholzer and J. Staehelin, 1993. Cloud chemistry at Mt. Rigi, Switzerland: dependence on drop size and relationship to precipitation chemistry. Atmospheric Environment, 27a, 33-42.
- Crossley, A., D.B. Wilson and R. Milne, 1992. Pollution in the upland environment. Environmental Pollution, 75, 81-87
- Dasch, J.M., 1988. Hydrological and chemical inputs to fir trees from rain and clouds during a 1-month study at Clingmans Peak, NC. Atmospheric Environment Vol. 22, No. 10, 2255–2262.
- Draaijers, G. P. J., R.Van Ek, and W. Bleuten, 1994. Atmospheric deposition in complex forest landscapes, Boundary Layer Meteorol., 69, 343–366, doi:10.1007/BF00718124.
- Fowler, D., I.D. Leith, J. Binnie, A. Crossley, D.W.F. Inglis, T.W. Choulartan, J.W.S. Longhurst and D.E. Colan, 1995: Orographic enhancement of wet deposition in the United Kingdom: continuous monitoring. Water, Air and Soil Pollution, 85, 2107-2112.
- Gauger Th, Köble R, Smiatek G (1997) Kartierung kritischer Belastungskonzentrationen und raten für empfindliche Ökosysteme in der Bundesrepublik Deutschland und anderen ECE-Ländern. Endbericht zum Forschungsvorhaben 106 01 061 im Auftrag des Umweltbundesamtes. Institut für Navigation der Universität Stuttgart. Teil 1: Deposition Loads. 126 p. Teil 2: Critical Levels. 75 p. Teil 3: Informationssystem CANDIS. 27 p.
- Gauger Th, Köble R, Anshelm F (2000) Kritische Luftschadstoff-Konzentrationen und Eintragsraten sowie ihre Überschreitung für Wald- und Agrarökosysteme sowie naturnahe waldfreie Ökosysteme. Teil 1: Deposition Loads. Teil 2: Critical Levels. Forschungsvorhaben im Auftrag des BMU/UBA, FENr. 297 85 079. Institut für Navigation, Universität Stuttgart. [http://www.nav.uni-

stuttgart.de/navigation/forschung/critical\_loads/INS\_UBA29785079\_1.pdf]

- Gauger Th, Anshelm F, Schuster H, Erisman JW, Vermeulen AT, Draaijers GPJ, Bleeker A, Nagel HD (2002) Mapping of ecosystem specific long-term trends in deposition loads and concentrations of air pollutants in Germany and their comparison with Critical Loads and Critical Levels. Final Report on behalf of Federal Environmental Agency (Umweltbundesamt), Berlin. BMU/UBA FE-Nr. 299 42 210. [http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical\_loads/EB\_29942210\_T1.pdf]
- Gauger Th (2005) Nationale Luftreinhaltestrategie Umsetzung von EU Anforderungen;
  Teilvorhaben 02: Aufbereitung, Nutzung und Weiterentwicklung nationaler,
  hochauflösender Datensätze zu Konzentrationen und Depositionen von Luftschadstoffen.
  Forschungsvorhaben im Auftrag des Umweltbundesamtes BMU/UBA 203 43 257/02.
  [http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical\_loads/EB\_20343257\_02.PDF]
- Gauger Th, Haenel HD, Rösemann C, Dämmgen U, Bleeker A, Erisman JW, Vermeulen AT, Schaap M, Timmermanns RMA, Builtjes PJH, Duyzer JH (2008) National Implementation of the UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution (Effects) / Nationale Umsetzung UNECELuftreinhaltekonvention (Wirkungen): Part 1: Deposition Loads: Methods, modelling and mapping results, trends. BMU/UBA FE-Nr. 204 63 252. UBA-Texte 38/08 (1). ISSN 1862-4804 . Teil 2: Wirkungen und Risiokoabschätzungen: Critical Loads, Biodiversität, Dynamische Modellierung, Critical Levels Überschreitungen, Materialkorrosion. BMU/UBA 204 63 252. UBA-Texte 38/08 (2). ISSN 1862-4804.
  [http://www.umweltdaten.de/publikationen/fpdf-l/3646.pdf & http://www.umweltdaten.de/publikationen/fpdf-l/3647.pdf ]
Grunow, J., 1954. Bedeutung und Erfassung des Nebelniederschlags. IAHS Info 36, 402-415.

- Herckes, P., Mirabel, P. and Wortham, H. 2002. Cloud water deposition at a high-elevation site in the Vosges Mountains (France). Sci. Total Environ. 296, 59–75.
- Igawa, M., Tsutsumi, Y.,Mori, T. and Okochi, H. 1998. Fogwater chemistry at a mountainside forest and the estimation of the air pollutant deposition via fog droplets on the atmospheric quality at the mountainbase. Environ. Sci. Technol. 32, 1566–1572.
- Inglis, D.W.F., T.W. Choularton, A.J. Wicks, D. Fowler, I.D. Leith, B. Werkman and J. Binnie, 1995. Orographic enhancement of wet deposition in the United Kingdom: case studies and modelling. Water, Air and Soil Pollution, 85, 2119-2124.
- Katata, G., H. Nagai, T. Wrzesinsky, O. Klemm, W. Eugster, and R. Burkard, 2008. Development of a land surface model including cloud water deposition on vegetation, J. Appl. Meteorol. Climatol., 47, 2129–2146, doi:10.1175/2008JAMC1758.1.
- Katata, G., Kajino, M., Hiraki, T., Aikawa, M., Kobayashi, T., Nagai, H., 2011. A method for simple and accurate estimation of fog deposition in a mountain forest using a meteorological model. Journal of Geophysical Research , Vol. 116, No. D20, doi:10.1029/2010JD015552.
- Klemm, O., Wrzesinsky, T. and Scheer, C. 2005. Fog water flux at a canopy top: Direct measurement versus one-dimensional model. Atmos. Environ. 39, 5375–5386.
- Klemm, O. and Wrzesinsky, T., 2007. Fog deposition fluxes of water and ions to a mountainous site in Central Europe. Tellus B (59), 705–714.
- Lange, C. A., Matschullat, J., Zimmermann, F., Stertig, G. and Wienhaus, O., 2003. Fog chemistry and chemical composition of fog water—a relevant contribution to atmospheric deposition in the eastern Erzgebirge, Germany. Atmos. Environ. 37, 3731–3739.
- Lovett, G. M. 1984. Rates and mechanisms of cloud water deposition to subalpine Balsam Fir forest. Atmos. Environ. 18, 361–371.
- Lövblad, G., Tarrasón, L., Tørseth, K. and Dutchak, S. (Eds.), 2004. EMEP Assessment Part I European Perspective. http://www.emep.int/index assessment.html
- Marloth, H., 1906. Über die Wassermengen, welche Sträucher und Bäume aus treibendem Nebel und Wolken auffangen. Meteorologische Zeitung, 23, 547-553.
- Miller, E.K., J.A. Panek, A.J. Friedland, J. Kadlecek and V.A. Mohnen, 1993. Atmospheric deposition to a high-elevation forest at Whiteface Mountain, New York, USA. Tellus, 45b, 209-227.
- Mueller, S., 1991. Estimating cloud water deposition to subalpine spruce-fir forests I. Modifications to an existing model. Atmospheric Environment 25A, 1093–1104.
- Pahl, S. 1996. Feuchte Deposition auf Nadelwälder in den Hochlagen der Mittelgebirge. Berichte des Deutschen Wetterdienstes 198, 137 pp.
- Reynolds, B., D. Fowler and S. Thomas, 1996. Chemistry of cloud water at an upland site in mid-Wales. The Science of the Total Environment, 188, 115-125.
- Schemenauer, R. S., Banic, C. M. and Urquizo, N. 1995. High-elevation fog and precipitation chemistry in Southern Quebec, Canada. Atmos. Environ. 29, 2235–2252.
- Skybova M., 2006. Chemical composition of fog/cloud and rain water in the Beskydy mountains-Czech Republic. Fresenius Environmental Bulletin, 15: 448–451.

- Straub, D.J., Lee, T., Collett Jr., J.L., 2007. Chemical composition of marine stratocumulus clouds over the eastern Pacific Ocean. Journal of Geophysical Research 112 D04307.
- Thalmann, E. 2001. Comparison of Wet and Occult Deposition. Diplomarbeit an der Philosophisch-naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Bern.
- Thalmann, E., Burkard, R., Wrzesinsky, T., Eugster, W. and Klemm, O. 2002. Ion fluxes from fog and rain to an agricultural and a forest ecosystem in Europe. Atmos. Res. 64, 147–158.
- UNECE, 2004. Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping critical loads and levels and air pollution effects, risks and trends. (www.icpmapping.org)

Vong, R.J., B.M. Baker, F.J. Brechtel, R.T. Collier, J.C. Harris, A.S. Kowalski, N.C. McDonals and L.M. McInnes, 1997. Ionic and trace element composition of cloud water collected on the olimpic peninsula of Washington State. Atmospheric Environment, 31, 1991-2001.

Yamazawa, H., and H. Nagai, 1997. Development of a one-dimensional atmosphere-bare soil model. Japan Atomic Energy Research Institute Rep. 97–041, 56 pp.

Zapletal, M., Ku the Cervenohorske sedlo (Hruby Jesenik Mountains, Czech Republic). Water, Air & Soil Pollution, Vol. 186, No.1, 85–96.

Zier, M., 1992. Über die Variabilität der Spurenstoffkonzentration im Nebelwasser im Verlaufe einzelner Nebelereignisse auf dem Kamm des Erzgebirges. Meteorologische Zeitschrift 1, 221–228.