

Aus dem Institut für Agrarökologie

Ulrich Dämmgen
Karsten Mohr
Henning Meesenburg

Die Bestimmung von Flüssen reaktiver Stickstoff-Spezies in hoch mit Stickstoff belasteten Waldökosystemen : methodische Grundlagen, Randbedingungen und Konzept der Messungen und Modellierungen im ANSWER- Projekt

Veröffentlicht in: Landbauforschung Völkenrode Sonderheft 279, S. 9-16

Braunschweig
Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft (FAL)
2005

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

U. Dämmgen¹, K. Mohr², H. Meesenburg³

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

Wälder stehen einerseits als halboffene Ökosysteme in enger stofflicher und energetischer Beziehung zur Umwelt, andererseits verfügen sie auf verschiedenen funktionalen und räumlichen Ebenen über diverse interne Stoffkreisläufe und -depots. Diese Eigenschaft vermittelt ihnen ein relativ stabiles ökologisches Gefüge gegenüber äußeren Einflüssen. Veränderungen des Stoffhaushaltes, insbesondere der Flüsse der gleichzeitig als Makronährstoffe fungierenden reduzierten und oxidierten Stickstoff-Spezies (NH_x und NO_y), lassen sich dadurch jedoch nur mit großen Unsicherheiten nachweisen.

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

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

2.2.1 Dosis-Wirkung-Beziehungen

Der Einfluss von Umweltfaktoren auf Ökosysteme wird über entsprechende Dosis-Wirkung-Beziehungen beschrieben. Diese setzen eigentlich voraus, dass sowohl die wirksame Dosis eines Stressors (z.B. eines Schadstoffes) als auch die Wirkung quantifizierbar sind.

"Klassische" Dosis-Wirkung-Modelle wie das Agonist-Rezeptor-Modell der Toxikologie (z.B. KURZ

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

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

Auch die Wirkung äußert sich in veränderten Stoffflüssen. Denkbar ist, dass die Wirkung etwa erhöhter N-Flüsse zur Folge hat, dass einzelne Kompartimente gegenüber dem Normalfall mit erhöhten Stoffumsätzen und erhöhten Austrägen reagieren. So scheinen erhöhte Kohlenstoffdioxid-Konzentrationen über Ackerflächen die Umsatzraten für Kohlenstoffhaltige Spezies im Boden zu erhöhen, ohne dass sich signifikante Änderungen der Vorratsgrößen ergeben. Ähnliches lässt sich auch aus den N-Bilanzgliedern von N-reichen Wäldern ableiten: PAPEN *et al.* (1999) beobachteten an belasteten Standorten in der Schorfheide, dass das Teilsystem "durchwurzelter Boden"

¹ Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft, Institut für Agrarökologie, Bundesallee 50, 38116 Braunschweig, ulrich.daemmgen@fal.de

² Landwirtschaftskammer Weser-Ems, Mars-la-Tor-Str. 9-13, 26121 Oldenburg

³ Niedersächsische Forstliche Versuchsanstalt, Grätzelstr. 2, 37079 Göttingen

offenbar in der Lage ist, durch Erhöhung der N-Umsatzraten "überschüssiges" N durch Emission N-haltiger Spurengase wirksam aus dem System zu entfernen. In diesem Falle wären Stoffflussmessungen etwa an N_2O ein geeignetes Mittel oder zumindest eine Hilfsgröße zur Quantifizierung von Wirkungen. In anderen Waldökosystemen sind dagegen signifikante N-Vorratsänderungen im Boden beobachtet worden, die ohne erhöhte N-Depositionen nicht zu erklären wären (MEIWES *et al.* 2002).

2.2.2 Stickstoff-Flüsse und -bilanzen in Wäldern

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

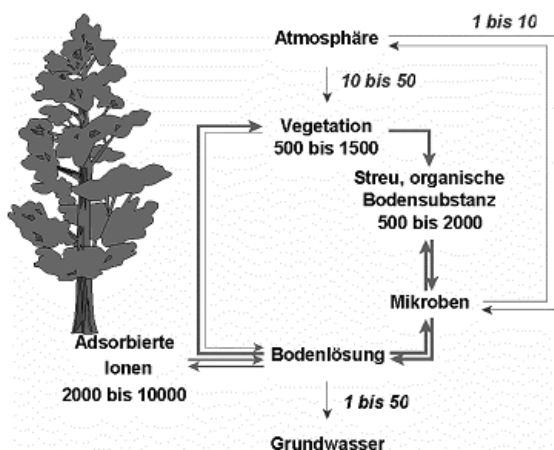


Abbildung 2.1: Größenordnungen von Stickstoff-Flüssen im Wald (steil: Vorräte in $kg\ ha^{-1}\ N$; kursiv: Flüsse in $kg\ ha^{-1}\ a^{-1}\ N$), nach OVERTON (1962), ABER & MELLILO (1991) und VAN MIEGROET *et al.* (1992), MARQUES *et al.* (2001) in Anlehnung an ZIMMERLING & DÄMMGEN (2000)

Die, die potenziellen Dosen und Wirkungen quantifizierenden, Flüsse müssen möglichst direkt bestimmt werden. Die Gesamtflüsse zwischen der Atmosphäre und dem Bestand lassen sich nur oberhalb des Bestandes als Nettoflüsse experimentell bestimmen (vgl. DÄMMGEN *et al.* 1997). Diese Messungen lassen sich nicht gleichzeitig für alle relevanten N-

Spezies durchführen; sie müssen aus meteorologischen wie praktischen Gründen für sedimentierende und nicht-sedimentierende Spezies getrennt bearbeitet werden. Während für die zuerst genannten Spezies Surrogatflächentechniken erfolgreich eingesetzt werden können, müssen die letzteren im Prinzip mit Hilfe sog. mikrometeorologischer Verfahren über den betrachteten Rezeptorsystemen durchgeführt werden (DÄMMGEN *et al.* 2005, ERISMAN *et al.* 2005).

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

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

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

Mit Hilfe geeigneter Kammern lässt sich ein Teil derjenigen Gase bestimmen, die den Boden als Stoffwechselprodukte verlassen (BRUMME *et al.* 1999, BUTTERBACH-BAHL *et al.* 2002).

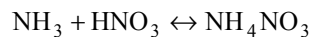
Wir gehen davon aus, dass im Wald in erster Näherung zwei durch eutrophierendes N beeinflusste Wirkräume existieren, für die Stoffflüsse bestimmt werden müssen: der Kronenraum und der durchwurzelte Boden einschließlich der Krautschicht (**Abbildung 2.1**):

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

Nicht metabolisiertes Ammonium- (NH_4) -N steht im Zellinneren mit gasförmigem NH_3 im Gleichgewicht (vgl. z.B. SCHJØERRING 1991). Es bildet sich stets ein NH_3 -Dampfdruck aus, der – je nach der NH_3 -

Konzentration in der die Blätter umgebenden Atmosphäre – zur Emission von NH_3 führen kann. Dieser Prozess wurde bisher vor allem bei landwirtschaftlichen Nutzpflanzen beobachtet und beschrieben (vgl. SUTTON *et al.* 1998 und dort zit. Lit.). Die NH_3 -Gleichgewichtskonzentration in den Stomata (sog. Kompensationspunkt, vgl. CONRAD & DENTENER 1999) wird dabei als Funktion des NH_4 -Gehaltes im Apoplasten und seines pH-Wertes angesehen (MATTSON & SCHJOERRING 2003).

Die NH_3 -Konzentration in der Umgebung der Blätter wird von der NH_3 -Konzentration der Atmosphäre über dem Kronenraum (Umgebungsluft) beeinflusst, aber auch durch die Thermolyse von Ammoniumnitrat (NH_4NO_3), die auf den äußeren Oberfläche der Krone – d.h. auf den Blättern – stattfindet: NH_4NO_3 , das mit Schwebstäuben auf den Blättern abgeschieden wurde oder das sich an den Oberflächen bei Überschreiten des "Löslichkeitsproduktes" bei niedrigen Temperaturen und hohen Luftfeuchten aus gasförmigem NH_3 und Salpetersäure (HNO_3) durch Kokondensation gemäß



bildet, gehorcht der Beziehung

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

mit ρ Partialdichte
 K_p Sättigungsprodukt

Dabei ist K_p eine Funktion der Temperatur, der relativen Luftfeuchte und des Partikeldurchmessers (MOZURKEWICH 1993). NH_4NO_3 , das sich so bei niedrigen Temperaturen und hohen Luftfeuchten gebildet hat, zersetzt sich unter Umkehrung der Gleichung bei höheren Temperaturen und geringeren Luftfeuchten.

Die feuchte Blattoberfläche wirkt als temporärer Speicher für NH_3 , der sich je nach der Verfügbarkeit von Wasser und den herrschenden NH_3 -Konzentrationen in der Atmosphäre im Kronenbereich belädt oder entlädt.

Die für den Stoffaustausch maßgeblichen Konzentrationen von NH_3 in unmittelbarer Blattnähe sind also gleichzeitig von den Konzentrationen der "freien" Atmosphäre über dem Kronenraum, den Quelle- und Senkeneigenschaften der Blätter, der Feuchte und der jeweiligen Gleichgewichtspartialdichte von NH_3 im Hinblick auf die Bildung oder Thermolyse von NH_4NO_3 abhängig.

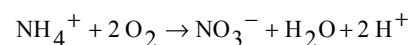
Für die N-Gesamtbilanz von Wald-Ökosystemen sind ferner die Flüsse von Bedeutung, die als Austrag aus dem System zu verstehen sind. Dazu sind der Austrag mit dem Sickerwasser, der Austrag mit der Biomasse im Zuge von Erntemaßnahmen und der

Austrag gasförmiger N-Spezies zu zählen. Von Bedeutung sind auch interne N-Flüsse, die u.a. mit Veränderungen der Bindungsform verbunden sind: die N-Aufnahme der Vegetation und die Mineralisation der N-haltigen organischen Substanz.

2.2.3 Relevante Spezies (Versauerung und Eutrophierung)

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

Die Wurzel Aufnahme und die mikrobielle Oxidation (Nitrifikation) von NH_4 -Stickstoff im Boden setzen Protonen frei (BINKLEY & RICHTER 1987):



Mit der Dissoziation von NH_3 zu NH_4^+ und der Nitrat- (NO_3)-aufnahme über die Wurzel geht wiederum ein äquivalenter Protonen-Verbrauch einher. Ein Protonen-Überschuss entsteht deshalb erst, wenn es durch eine räumliche Trennung der Protonenkonzentrierenden und -produzierenden Prozesse zu einer Entkoppelung des N-Kreislaufes (vgl. ULRICH *et al.* 1981) kommt. Er tritt z.B. dann ein, wenn die NO_3 -Aufnahme über die Pflanzenwurzeln mit dem atmosphärischen N-Eintrag nicht Schritt hält.

Distickstoff (N_2) wird mikrobiell fixiert und kann gleichzeitig Produkt der Denitrifikation sein. Der Austausch erfolgt ausschließlich zwischen Boden und Atmosphäre. N_2O und NO sind Nebenprodukte der Nitrifikation und der Denitrifikation im Boden. Die Bestimmung von Flüssen dieser drei Gase ist nicht Gegenstand dieser Arbeit.

NH_3 wird sowohl über die inneren Oberflächen der Pflanzen (Stomata) als auch von äußeren Oberflächen (Cuticula, Bodenoberfläche etc.) aufgenommen, solange der Partialdruck über den betrachteten Senkenflächen niedriger ist als der Partialdruck in der freien Atmosphäre. Im umgekehrten Fall kommt es zu NH_3 -Emission (aus den Stomata). Sowohl im Boden und in der Streu als auch in der Vegetation laufen Prozesse ab, bei denen NH_4 gebildet und NH_3 freigesetzt wird.

NO_2 wird fast ausschließlich durch Deposition über die Stomata von der Vegetation aufgenommen. Die geringe Reaktivität und Wasserlöslichkeit bedingen vergleichsweise niedrige Depositionen bei gegebenen Konzentrationen, d.h. niedrige Depositionsgeschwindigkeiten.

HNO_2 ist hinsichtlich seiner Reaktivität mit SO_2 vergleichbar. Wie dieses wird es an den inneren und äußeren Oberflächen der Ökosysteme abgelagert. HNO_2 hat einen merklichen Dampfdruck; es kann aus Lösungen emittiert werden.

HNO₃ ist ein sehr reaktives Gas und wird fast ausschließlich durch Reaktion mit äußeren Oberflächen in Ökosysteme eingetragen.

NH₄⁺ und NO₃⁻ in Partikeln werden ausschließlich auf Oberflächen abgeschieden. Der Mechanismus der Abscheidung ist eine Funktion der Partikelgröße. NH₄NO₃ ist thermisch labil. Deponiertes NH₄NO₃ kann durch Thermolyse eine Quelle von NH₃ und HNO₃ werden.

Die Konzentrationen von NO₂⁻-N in der Bulk-Deposition bewegt sich bei 2 bis 4 % der NO₃⁻-Konzentrationen und damit in deren Fehlerbereich (eigene Messungen). Es wird daher in der Regel vernachlässigt.

Organische reduzierte und oxidierte Spezies treten in der Umgebungsluft in Konzentrationen auf, die keine bilanzrelevanten Flüsse erwarten lassen: Messungen ergaben, dass organische Nitrate Konzentrationen $\rho < 10 \text{ ng m}^{-3}$ aufweisen (NIELSEN *et al.* 1995, KASTLER *et al.* 1998, FLOCKE *et al.* 1998). Entsprechendes gilt für Alkylamine und Aminosäuren (MOPPER & ZIKA, 1987, SCHADE & CRUTZEN 1995).

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

Flüsse mit Gasen

Distickstoff (N ₂):	Deposition und Emission
Ammoniak (NH ₃):	Deposition und Emission
organischer reduzierter Stickstoff (R-NH _x):	Deposition
Distickstoffoxid (N ₂ O):	Emission
Stickstoffmonoxid (NO):	Deposition und Emission
Stickstoffdioxid (NO ₂):	Deposition
salpetrige Säure (HNO ₂):	Deposition und Emission
Salpetersäure (HNO ₃):	Deposition
organischer oxidiertes Stickstoff (R-NO _x):	Deposition

Flüsse mit nicht-sedimentierenden und sedimentierenden Partikeln

Ammonium (NH ₄ ⁺):	Deposition
organischer reduzierter Stickstoff:	Deposition
Nitrat (NO ₃ ⁻):	Deposition
organischer oxidiertes Stickstoff:	Deposition

Mengenmäßig bedeutende Flüsse von S-Spezies sind

Flüsse mit Gasen

Schwefeldioxid (SO ₂)	Deposition
-----------------------------------	------------

Flüsse mit nicht-sedimentierenden und sedimentierenden Partikeln

Sulfat (SO ₄ ²⁻)	Deposition
Schwefelsäure (H ₂ SO ₄)	Deposition

Dabei wird SO₂ an allen inneren und äußeren Oberflächen des Systems adsorbiert bzw. von den Oberflächenfilmen absorbiert, solange der pH-Wert des Oberflächenfilms bzw. der Dampfdruck der dort entstehenden Lösung geringer ist als der Partialdruck in der Atmosphäre.

SO₄²⁻ in Salzen oder in H₂SO₄-Aerosolen wird ausschließlich auf den äußeren Oberflächen des Systems abgeschieden. Wie bei NH₄⁺ und NO₃⁻ ist der Mechanismus wesentlich von der Größe der Partikel abhängig.

2.3 Randbedingungen der Messungen

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

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

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

Als weitere Randbedingungen mussten berücksichtigt werden:

- Für die für Flüsse relevanten N-Spezies lassen sich Konzentrationen mit hoher zeitlicher Auflösung nicht bestimmen. Die Turbulenzmessungen mussten daher ohnehin mit zeitlichen Mitteln der Konzentrationen verknüpft werden.
- HNO₂ und HNO₃ bilden typische Tagesgänge der Konzentrationen aus. Messungen von Tages- und Nachtkonzentrationen erschienen deshalb notwendig.
- Konzentrationen *über* einem Wald sollten im Mittel nicht kleinräumig variieren. Die Messungen von Konzentrationen und Austauschparametern sollten daher in gewissem Umfang räumlich voneinander trennbar sein.
- Die Durchführung einer zeitlich dichten Beprobung zur nasschemischen Analyse der Luftinhaltsstoffe war wegen der Entfernung zwi-

schen Probenentnahmeort und Labor (300 km) nahezu unmöglich.

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

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

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

2.4 Einfluss der Bestandesstruktur

Der Einfluss von bestandesstrukturellen Eigenschaften von Waldbeständen auf Prozesse der atmosphären Deposition ist nicht hinreichend geklärt. Dies ist jedoch eine Voraussetzung für eine Schätzung der Höhe der N-Einträge und ihre Beeinflussung durch forstliche Maßnahmen. Verschiedene Untersuchungen haben gezeigt, dass immergrüne Nadelbaumbestände im Vergleich zu sommergrünen Laubbaumbeständen höhere Depositionsraten, Altbestände höhere als Jungbestände oder exponierte Kammlagen höhere als geschützte Tallagen erwarten lassen (MEESENBURG *et al.* 1995, ROTHE *et al.* 2002). Bestandesspezifische Parameter, die die Höhe der atmosphären Einträge möglicherweise beeinflussen, sind die Baumart, die Bestandeshöhe, die Bestandesdichte, die Rauigkeit und die Ernährungssituation der Bestände. Weiterhin dürften die atmosphären Bedingungen und die Struktur der Umgebung von Beständen eine wichtige Rolle spielen. Ziel der Arbeit war es daher, bestandesstrukturelle Parameter hinsichtlich ihrer Effekte auf die N-Deposition in Wäldern zu bewerten. Dazu sollten atmosphären Stoffeinträge in Waldbestände unterschiedlicher Struktur in einem eng begrenzten Raum unter möglichst homogenen atmosphären Randbedingungen erfasst werden. Es wurden 13 Bestände unterschiedlicher Strukturphasen der Baumarten Kiefer, Fichte, Douglasie und Eiche ausgewählt. Fichte und Douglasie wurden zu einer Baumartengruppe zusammengefasst, da die morphologische Struktur dieser Baumarten sehr ähnlich ist. Innerhalb einer Baumartengruppe wurden jeweils Bestände ausgewählt, die ein möglichst weites Spektrum an Struktureigenschaften (z.B. Alter, Bestandeshöhe, Grundfläche) erfassen. Geeignete Kiefern- und Fichten-/Douglasienbestände wurden im Revier Augustendorf, die Eichenbestände in einem etwa 35 km entfernten Revier (Herrenholz, s.u.) des Niedersächsischen Forstamtes Ahlhorn gefunden.

Die Bestimmung der Stoffeinträge beschränkte sich auf die klassische Methode der Bestandesniederschlagsmessung. Mit Hilfe von Kronenraumbilanz-

modellen können aus den Ergebnissen von Bestandesniederschlagsmessungen und Freilandmessungen Teilflüsse der trockenen Deposition geschätzt werden (ULRICH 1994, DRAAIJERS & ERISMAN 1995). Es wird dabei eine akzeptorunabhängige nasse Deposition, die der Freilanddeposition entspricht, und eine akzeptorabhängige trockene Deposition, die sich wiederum in eine partikuläre und eine gasförmige Komponente differenzieren lässt, unterschieden. Darüber hinaus können für die N-Spezies, Protonen und mineralische Nährstoffe Austauschraten mit dem Kronenraum geschätzt werden.

Das Kronenraumbilanzmodell nach ULRICH (1994) (Ulrich-Modell) stellt in jedem Fall eine Unterschätzung der Gesamtdosition der N-Komponenten dar, da gasförmige Deposition und Aufnahme in den Bestand zusammen als Netto-Fluss berechnet werden. Beide Prozesse können gleichzeitig wirksam sein, gehen aber mit unterschiedlichem Vorzeichen in die Bilanzierung der Gesamtdosition ein. Im Draaijers-Modell (DRAAIJERS & ERISMAN 1995) wird die Aufnahme von NH_4^+ und H^+ in den Bestand als Kationen-Austausch gegen Nährstoff-Kationen beschrieben. Die Verteilung der Aufnahme zwischen NH_4^+ und H^+ wird mit einem empirisch ermittelten Faktor berechnet. Da dieser Faktor (Draaijers-Faktor) bisher nur an einem Bestand in den Niederlanden ermittelt wurde, war es ebenfalls Ziel dieser Studie, die Gültigkeit für verschiedene bestandesstrukturelle Einheiten zu untersuchen.

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

2.5 Literatur

- Binkley D, Richter D (1987) Nutrient Cycles and H^+ Budgets of Forest Ecosystems. *Adv Ecological Res* 16:1-51.
- Brumme R., Borken W, Finke S (1999) Hierarchical control of nitrous oxide emission in forest ecosystems. *Global Biogeochem Cycles* 13:1137-1148.
- Butterbach-Bahl K, Breuer L, Gasche R, Willibald G, Papen H (2002) Exchange of trace gases between soils and the atmosphere in Scots pine forest ecosystems of the northeastern German lowlands. 1.

- Fluxes of N₂O, NO/NO₂ and CH₄ from forest sites with different N-deposition. *Forest Ecol Managem* 167:123-134.
- Cape JN, Dunster A, Crossley A, Sheppard LJ, Harvey FJ (2001) Through-fall chemistry in a sitka spruce plantation in response to six different simulated polluted mist treatments. *Water Air Soil Pollut* 130:619-624.
- Conrad R, Dentener, FJ (1999) The application of compensation point concepts in scaling of fluxes. In: Bouwman AF (Hrsg.): *Approaches to scaling trace gas fluxes in ecosystems*. Amsterdam, Elsevier. S. 205-216.
- Dämmgen U, Erisman JW, Cape JN, Grünhage L, Fowler D (2005) Practical considerations for addressing uncertainties in monitoring bulk deposition. *Environ Pollut* 134:535-548.
- Dämmgen U, Grünhage L, Jäger H-J (1997) Description, assessment and meaning of vertical flux densities of matter within ecotopes: A systematic consideration. *Environ Pollut* 96:249-260.
- Dämmgen U, Grünhage L (1998) Response of a grassland ecosystem to air pollutants. V. A toxicological model for the assessment of dose-response relationships for air pollutants and ecosystems. *Environ Pollut* 101:375-380.
- Dämmgen U, Grünhage L, Haenel H-D, Jäger H-J (1993) Climate and stress in ecotoxicology – a coherent system of definitions and terms. *Environ Pollut* 96:249-260.
- Dämmgen U, Grünhage L, Hartwig-Hanitz B, Jäger H-J (1989) Auswirkungen luftgetragener Stoffe auf Vegetation und Boden von Grünlandökosystemen. III. Die Ermittlung der vertikaler Flüsse von Gasen und Schwebstäuben in Agrarökosystemen mit Hilfe von Gradientenmodellen. *Landbauforsch Völkenrode* 39:202-216.
- Döhler H, Eurich-Menden B, Dämmgen U, Lüttich M, Osterburg B (2002) BMVEL/UBA-Ammoniak-Emissionsinventar der deutschen Landwirtschaft und Minderungsszenarien bis zum Jahr 2010. UBA-Texte 05/02. Umweltbundesamt, Berlin.
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water Air Soil Pollut* 85:2253-2258.
- Erisman JW, Vermeulen A, Hensen A, Flechard C, Dämmgen U, Fowler D, Sutton M, Grünhage L, Tuovinen J-P (2005) Monitoring and modelling of biosphere/atmosphere exchange of gases and aerosols. *Environ Pollut* 133:403-413.
- Flocke F, Volz-Thomas A, Buers H-J, Pätz W, Garthe H-J, Kley D (1998) Long-term measurements of alkyl nitrates in southern Germany. I. General behavior and seasonal and diurnal variation. *J Geophys Res* 103:5729-5746.
- Gundersen P, Emmett BA, Kjønås OJ, Koopmans CJ, Tietema A (1998) Impact of nitrogen deposition on nitrogen cycling in forests: a synthesis of NITREX data. *Forest Ecol Managem* 101:37-55.
- Kastler J, Fischer RG, Ballschmiter K (1997) Organonitrate als atmosphärische Spurenstoffe. *Nachr Chem Tech Lab* 45, 979-984.
- Kurz H, Neumann H-G, Wollenberg P, Forth W, Henschler D, Rummel W (1987) Allgemeine Pharmakologie. In: Forth W, Henschler D, Rummel W (Hrsg.) *Allgemeine und spezielle Pharmakologie und Toxikologie*. Mannheim, BI Wissenschaftsverlag. S. 1-97.
- Langford AO, Fehsenfeld FC (1992) Natural Vegetation as a Source or Sink for Atmospheric Ammonia: A Case Study. *Science* 255:581-583.
- Marques MC, Gravenhorst G, Ibrom A (2001) Input of atmospheric particles into forest stands by dry deposition. *Water Air Soil Pollut* 130:571-576.
- Mattson M, Schjoerring K (2003): Senescence-induced changes in apoplastic and bulk tissue ammonia concentrations of ryegrass. *New Phytol* 160:489-499.
- Meesenburg H, Meiwes KJ, Rademacher P (1995) Long-term trends in atmospheric deposition and seepage output in northwest German forest ecosystems. *Water Air Soil Pollut* 85:611-616.
- Mopper K, Zika RG (1987) Free amino acids in marine rain: evidence for oxidation and potential role in nitrogen cycling. *Nature* 325:246-249.
- Mozurkewich M (1993) The dissociation constant of ammonium nitrate and its dependence on temperature, relative humidity and particle size. *Atmos Environ* 27A:261-270.
- Nielsen Z, Egeløv AH, Granby K, Skov H (1995) Observations on particulate organic nitrates and unidentified components of NO_y. *Atmos Environ* 29, 1757-1769.
- Ovington JD (1962) Quantitative Ecology and the Woodland Ecosystem Concept. In: Cragg JB (Hrsg.) *Adv Ecol Res* 1, 103-192.
- Papen H, Butterbach-Bahl K, Gasche R, Breuer I, Zumbusch E, Willibald G, Böß A (1999) Vergleichende Untersuchungen zur Emission von N₂O, NO und NO₂ aus zwei unterschiedlich N-belasteten Kiefernwald-Ökosystemen des Nordostdeutschen Tieflandes. Abschlußbericht für das Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF). Förderkennzeichen 0339628. Garmisch-Partenkirchen, Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung. 90 S.
- Rodrigo A, Àvila A (2002) Dry deposition to the forest canopy and surrogate surfaces in two Mediterranean holm oak forests in Montseny (NE Spain). *Water Air Soil Pollut* 136:269-288.
- Rothe A, Huber C, Kreuzer K, Weis W (2002) Deposition and soil leaching in stands of Norway

- spruce and European beech. Results from the Höglwald research in comparison with other European case studies. *Plant Soil* 240:1-14.
- Schade GW, Crutzen PJ (1995) Emission of aliphatic amines from animal husbandry and their reactions: Potential source of N₂O and HCN. *J Atmos Chem* 22:319-346.
- Schjøerring JK (1991) Ammonia Emission from the Foliage of Plants. In: Sharkey TD, Holland EA, Mooney HA (Hrsg.) *Trace Gas Emissions by Plants*. San Diego, Academic Press. S. 267-292.
- Sutton MA, Burkhardt JK, Guerin D, Nemitz E, Fowler D (1998) Development of resistance models to describe measurements of bi-directional ammonia surface-atmosphere exchange. *Atmos Environ* 32:473-480.
- Tamm CO (1991) Nitrogen in terrestrial ecosystems. *Ecol Studies* 81:1-115.
- Ulrich B (1994) Nutrient and acid/base budget of central European forest ecosystems. In: Hüttermann A, Godbold DL (Hrsg.) *Effects of acid rain on forest processes*. New York, Wiley, S. 1-50.
- Ulrich B, Mayer R, Khanna P K (1981) Deposition von Luftverunreinigungen und ihre Auswirkungen in Waldökosystemen im Solling. *Schr Forstl Fak Univ Göttingen und der Nieders Forstl Versuchsanstalt* 58:1-291.

