

Einträge atmosphärischer Spurenstoffe
in Waldgebiete des Sauerlandes
(Abschlußbericht)

Wilhelm Kuttler

Arbeitsgruppe Klimageographie,
Geographisches Institut der Ruhr - Universität Bochum

Im Auftrag des Instituts für Meteorologie und Geophysik der Universität Frankfurt / M.
und des Umweltbundesamts, Pilotstation Frankfurt / M.

September 1985

	Inhaltsverzeichnis	Spurenstoffdepositionen	Seite
1.	Einleitung		1
2.	Ergebnisse der Messungen im Sauerland		2
2.1	Spurenstoffkonzentrationen der 'bulk'- Niederschläge		2
2.1.1	Häufigkeitsverteilungen der Spurenstoffkonzentrationen		12
2.2	Spurenstoffdepositionen der 'bulk'- Niederschläge		17
2.3	Immissionsraten	Messungen an der Meßstelle	23
2.3.1	Räumliche Differenzierung der Immissionsraten		24
2.3.2	Zeitliche Differenzierung der Immissionsraten	Konzentrationen	28
2.3.3	Kumulative Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten		41
2.3.4	Beeinflussung der Immissionsraten durch die unmittelbare Standortumgebung		44
2.3.5	Zusammenhang zwischen Standorthöhenlage und Ablagerungsverhalten der Spurenstoffe		46
2.4	Spurenstoffkonzentrationen der 'wet-only' - Niederschläge (Meßstelle: Kahler Asten)		50
2.5	Spurenstoffdepositionen der 'wet-only' - Niederschläge		63

2.5.1	Episoden feuchter Spurenstoffdepositionen	65
2.6	Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feucht- und Trockenperioden	68
2.7	Windrichtungsabhängige Spurenstoff- einträge	69
2.8	Aerosolkonzentrationen	83
2.9	Gesamtablagerung trockener und nasser Spurenstoffe	86
3.	Ergebnisse der Messungen an der Meßstelle Bochum	89
3.1	Niederschläge und Spurenstoffkonzentrationen	89
3.2	Spurenstoffdepositionen der 'wet-only' - Niederschläge	94
3.2.1	Episoden nasser Spurenstoffdepositionen	97
3.3	Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feucht- und Trockenperioden	99
3.4	Gesamtablagerung trockener und nasser Spurenstoffe	100

	Seite
4.	Vergleich der Spurenstoffeinträge in unterschiedlich belastete Gebiete (Meßstelle Bochum ./ . Meßstelle Kahler Asten) 104
4.1	Häufigkeitsverteilungen der Spurenstoffkonzentrationen 104
4.2	Episoden hoher Spurenstoffkonzentrationen 111
4.3	Mittlere tägliche Dauer an Niederschlags-episoden 113
4.4	Repräsentativität der Niederschlagssummen 114
4.5	Kumulative Niederschlagssummen und Spurenstoffdepositionen 114
4.6	Abhängigkeit der Gesamtdeposition von der Trocken- und Feuchtdeposition 122
4.7	Vergleich der gesamten Spurenstoffab-lagerung 126
4.8	Anteile der Ionen am Säuregehalt der Niederschläge 128
5.	Diskussion der Ergebnisse 132
5.1	'bulk' - Niederschläge und Immissionsraten 132

5.2	'wet - only' - Niederschläge und trockene Depositionen	139
6.	Sammel-, Analysen- und Berechnungsmethoden	151
6.1	Sammelmethoden	151
6.1.1	Niederschlagswasser- und Staubauffanggeräte	151
6.1.1.1	'bulk' - Sammler	151
6.1.1.2	Trocken-/Naßsammler	151
6.1.1.3	SAM - Stationen	154
6.2	Analysenmethoden	155
6.3	Berechnungsmethoden	156
7.	Danksagung	159
8.	Literaturverzeichnis	161

Tab. 1	Gewichtete und arithmetische "Gebietsmittelwerte" der Spurenstoffkonzentrationen, (in $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$) des pH-Werts und der elektrischen Leitfähigkeit (in $\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$) im Sauerland und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)	5
Tab. 2	"Gebietsmittelwerte" der Spurenstoffdepositionen im Sauerland und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983) (in $\text{mg}/\text{m}^2 \cdot \text{d}$)	18
Tab. 3	"Gebietsmittelwerte" der Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland (12/1982 - 12/1983) (in $\text{mg}/\text{m}^2 \cdot \text{d}$)	23
Tab. 4	Korrelationskoeffizienten, Regressionsformeln und Bestimmtheitsmaße für den Zusammenhang zwischen "Gebietsmittelwert" (x) und Stationsmittelwert (y) der Schwefel-Immissionsraten im Sauerland	29
Tab. 5	Jahreszeitenmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983) (in $\text{mg}/\text{m}^2 \cdot \text{d}$)	30
Tab. 6	Korrelationskoeffizienten, Regressionsformeln und Bestimmtheitsmaße für den Zusammenhang zwischen Gebietsmittelwert (x) und Stationsmittelwert (y) der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland	37
Tab. 7	Jahreszeitenmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)	39
Tab. 8	Mittelwerte der "wet-only" - Spurenstoffkonzentrationen (in $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$), pH-Werte und elektrische Leitfähigkeit (in $\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	51
Tab. 9	Gewichtete Mittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffkonzentrationen (in $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$), pH-Werten und elektrischen Leitfähigkeiten (in $\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	52
Tab. 10	Mittelwerte der "wet-only" - Spurenstoffdepositionen (in $\text{mg}/\text{m}^2 \cdot \text{d}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	63

Tab. 11	Anzahl der für die windrichtungsabhängigen Auswertungen verfügbaren Einzel- daten (Kahler Asten, 11/1982 - 11/1984)	70
Tab. 12	Mittelwerte der Aerosolkonzentrationen SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N und Cl^- an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$)	83
Tab. 13	Gewichtete Mittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffkonzentra- tionen, des pH-Wertes und der elektrischen Leitfähigkeit an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)	90
Tab. 14	Mittelwerte, Maxima und Minima von "wet-only" - Spurenstoffdepositionen an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984; in $\text{mg}/\text{m}^2 \cdot \text{d}$)	95
Tab. 15	Vergleich der prozentualen täglichen Dauer an Niederschlagsperioden zwischen den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)	113
Tab. 16	Gesamtdeposition und prozentualer Anteil der trockenen Deposition der Spuren- stoffe SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N und Cl^- an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)	127
Tab. 17	Prozentuale Anteile der Anionenäquivalente im Niederschlagswasser an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)	128
Tab. 18	Mittlere gewichtete "wet-only" - Konzentrationen im Niederschlagswasser an verschiedenen Stationen (Werte 1 - 6 nach GEORGII et al. 1982)	142

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1	Lage der Meßstationen im Untersuchungsgebiet (Sauerland)	3
Abb. 2	Mittelwerte, Minima und Maxima der pH-Werte an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)	7
Abb. 3	Mittelwerte, Minima und Maxima der elektrischen Leitfähigkeit an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)	7
Abb. 4	Mittelwerte, Minima und Maxima der SO_4^{2-} - S - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)	9
Abb. 5	Mittelwerte, Minima und Maxima der NO_3^- - N - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)	9
Abb. 6	Mittelwerte, Minima und Maxima der Cl^- - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)	10
Abb. 7	Mittelwerte, Minima und Maxima der F^- - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)	11
Abb. 8	Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der pH-Werte an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)	13
Abb. 9	Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der elektrischen Leitfähigkeit an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)	13
Abb. 10	Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der SO_4^{2-} - S - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)	14

- Abb. 11 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der NO_3^- - N - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983) 15
- Abb. 12 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der Cl^- - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983) 15
- Abb. 13 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der F^- - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983) 16
- Abb. 14 Mittelwerte, Minima und Maxima der SO_4^{2-} - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983) 20
- Abb. 15 Mittelwerte, Minima und Maxima der NO_3^- - N - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983) 20
- Abb. 16 Mittelwerte, Minima und Maxima der Cl^- - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983) 21
- Abb. 17 Mittelwerte, Minima und Maxima der F^- - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983) 22
- Abb. 18 Stationsmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983) 25
- Abb. 19 Stationsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983) 25
- Abb. 20 Zusammenhang zwischen den Stationsmittelwerten der Schwefel-Immissionsraten und denen der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland (12/1982 - 12/1983) 27

Abb. 21	Jahreszeitenmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)	29
Abb. 22	Monatliche Gebietsmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten mit ihren Standardabweichungen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)	32
Abb. 23	Monatswerte der Schwefel-Immissionsraten an den Stationen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)	33
Abb. 24	Differenzen der Stationsmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten ($\bar{X}_{12/82 \text{ bis } 12/83} - \bar{X}_{12/82 \text{ bis } 12/83 \text{ ohne } 2/83}$) im Sauerland in Abhängigkeit von der Stationshöhenlage	35
Abb. 25	Jahreszeitenmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)	37
Abb. 26	Monatliche Gebietsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten mit ihren Standardabweichungen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)	39
Abb. 27	Monatswerte der Stickstoff-Immissionsraten an den Stationen im Sauerland (1/1983 - 12/1983)	40
Abb. 28	Kumulative Schwefel-Immissionsraten für Stationsgruppen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)	43
Abb. 29	Kumulative Stickstoff-Immissionsraten für Stationsgruppen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)	43
Abb. 30	Änderung der Schwefel-Immissionsrate nach Verlegung der Station 10 (Freifläche: 12/1982 - 4/1983; Waldbestand: 5/1983 - 12/1984)	45

Abb. 31	Änderung der Stickstoff-Immissionsrate nach Verlegung der Station 10 (Freifläche: 12/1982 - 4/1983; Waldbestand: 5/1983 - 12/1983)	45
Abb. 32	Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den SO_4^{2-} -S-"bulk"-Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)	46
Abb. 33	Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den NO_3^- -N-"bulk"-Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)	47
Abb. 34	Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen Cl^- - "bulk" - Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)	47
Abb. 35	Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den F^- - "bulk" - Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)	48
Abb. 36	Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den Schwefel-Immissionsraten und den Stationshöhenlagen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)	48
Abb. 37	Regressionsanalysen der Beziehungen zwischen den Stickstoff-Immissionsraten und den Stationshöhenlagen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)	49
Abb. 38	Häufigkeitsverteilung der Niederschlagssummen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	54
Abb. 39	Häufigkeitsverteilungen der pH-Werte von "wet-only"-Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	54
Abb. 40	Häufigkeitsverteilung der elektrischen Leitfähigkeit an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	55
Abb 41	Häufigkeitsverteilung der SO_4^{2-} -S - Konzentrationen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	55

Abb. 42	Häufigkeitsverteilungen der NO_3^- - N - Konzentrationen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	56
Abb. 43	Häufigkeitsverteilungen der NH_4^+ - N - Konzentrationen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	56
Abb. 44	Häufigkeitsverteilungen der Cl^- - Konzentrationen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	58
Abb. 45	Häufigkeitsverteilungen der Ca^{2+} - Konzentrationen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	58
Abb. 46	Häufigkeitsverteilungen der Pb^{2+} - Konzentrationen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	59
Abb. 47	Gewichtete Monatsmittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffkonzentrationen (in $\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	61
Abb. 48	Monatsmittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffdepositionen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	64
Abb. 49	Maximaler täglicher Anteil der SO_4^{2-} - S - Depositionen an der monatlichen "wet-only" - Gesamtdeposition an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	67
Abb. 50	Monatlicher prozentualer Anteil der SO_4^{2-} - S - Deposition an der "wet-only" - Gesamtdeposition des Meßzeitraumes 11/1982 - 11/1984 an der Station Kahler Asten	67
Abb. 51	Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feuchtperioden an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	68
Abb. 52	Windrichtungsabhängige Verteilung der Niederschlagsmengen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)	72

- Abb. 53 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Niederschlagswasser - pH-
Werte an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 72
- Abb. 54 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Mittelwerte der
elektrischen Leitfähigkeiten (in $\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$) an der Station Kahler
Asten (11/1982 - 11/1984) 74
- Abb. 55 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen
 SO_4^{2-} - S und Cl^- an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 74
- Abb. 56 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen
 NO_3^- - N an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 76
- Abb. 57 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen
 NH_4^+ - N an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 76
- Abb. 58 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen
 Ca^{2+} an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 77
- Abb. 59 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen SO_4^{2-} - S und
 Cl^- an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 77
- Abb. 60 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen Ca^{2+} an der
Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 78
- Abb. 61 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen NO_3^- - N
an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 78
- Abb. 62 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen NH_4^+ - N
an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 79

- Abb. 63 Windrichtungsabhängige Niederschlagssummen (Nd) und Spurenstoffdepositionen (SO_4^{2-} - S, Cl^- , Ca^{2+} , NO_3^- - N, NH_4^+ - N) in Prozenten der Gesamtniederschlags-
summe bzw. der Gesamtdeposition des Meßzeitraumes (11/1982 - 11/1984) an
der Station Kahler Asten 81/82
- Abb. 64 Monatsmittelwerte der Aerosolkonzentrationen (SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N und Cl^-)
an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 85
- Abb. 65 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N und Cl^- (Aerosol
plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition
an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) 87/88
- Abb. 66 Gewichtete Monatsmittelwerte von "wet-only" Spurenstoffkonzentrationen an
der Station Bochum (1/1983 - 2/1984) 91
- Abb. 67 Monatsmittelwerte von "wet-only"-Spurenstoffdepositionen an der Station Bochum
(1/1983 - 2/1984) 96
- Abb. 68 Monatlicher prozentualer Anteil der SO_4^{2-} - S - Deposition an der "wet-only"-
Gesamtdeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984) 98
- Abb. 69 Maximale tägliche SO_4^{2-} - S - Deposition in Prozenten der monatlichen
"wet-only" - Gesamtdeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984) 98
- Abb. 70 Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feuchtperioden an der Station Bochum
(1/1983 - 2/1984) 99
- Abb. 71 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an SO_4^{2-} - S (Aerosolsulfat plus "wet-only")
sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Bochum
(1/1983 - 2/1984) 101
- Abb. 72 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an NO_3^- - N (Aerosolnitrat plus "wet-only")
sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Bochum
(1/1983 - 2/1984) 103

- Abb. 73 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an Cl^- (Aerosolchlorid plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984) 103
- Abb. 74 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der pH-Werte an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 105
- Abb. 75 Kumulative Häufigkeitsverteilungen der elektrischen Leitfähigkeiten an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 105
- Abb. 76 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der SO_4^{2-} - S - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 107
- Abb. 77 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der NO_3^- - N - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 107
- Abb. 78 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der NH_4^+ - N - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 108
- Abb. 79 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der Cl^- - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 110
- Abb. 80 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der Ca^{2+} - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 110
- Abb. 81 Verhältniswerte zwischen den SO_4^{2-} - S - Konzentrationen täglicher Niederschlagswasserproben (C) und den darauf berechneten Mittelwerten (\bar{C}) der Meßstationen Bochum und Kahler Asten in Summenprozenten (1/1983 - 2/1984) 112
- Abb. 82 Kumulative Niederschlagssummen und Spurenstoffdepositionen (SO_4^{2-} - S) an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984) 115

- Abb. 83 Kumulative Spurenstoffdepositionen ($\text{NO}_3^- - \text{N}$, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, Cl^-) an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984) 116
- Abb. 84 Langjährige Monatsmittelwerte der Niederschläge an den Stationen Bochum und Kahler Asten 118
- Abb. 85 Zusammenhang zwischen der monatlichen Niederschlagsdifferenz (Kahler Asten minus Bochum) und der $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ - Deposition an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984) 121
- Abb. 86 Abhängigkeit der Gesamtdeposition von der Trocken- und Feuchtdeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984) 123
- Abb. 87 Abhängigkeit der Gesamtdeposition von der Trocken- und Feuchtdeposition an der Station KahlerAsten (11/1982 - 11/1984) 125
- Abb. 88 Anteile der Anionenäquivalente im Niederschlagswasser an den Stationen Bochum und Kahler Asten nach Jahreszeiten (1/1983 - 2/1984) 130

Kurzfassung:

Im Sauerland wurden mit Hilfe modifizierter BERGERHOFF-GERÄTE die 'bulk'- Niederschläge und die Immissionsraten (SAM-Geräte) an 16 Stationen in der Zeit von Dezember 1982 bis Dezember 1983 gemessen. Darüber hinaus wurden Messungen mit zwei Trocken-/Naßsammlern durchgeführt, von denen der eine auf dem Kahlen Asten (845 m Ü. NN), der andere im Botanischen Garten der Ruhr-Universität Bochum stand.

Neben den Tagesproben an Niederschlagswasser und Wochenproben an trockenen Depositionen konnten mit dem Gerät auf dem Kahlen Asten ferner die Aerosolkonzentrationen (SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N, Cl^-) bestimmt werden. Aus den 'bulk'- Niederschlägen wurden SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N, F^- und Cl^- analysiert sowie der pH-Wert und die elektrische Leitfähigkeit bestimmt.

Aus den 'wet-only'- Proben wurden ebenfalls pH-Wert, elektr. Leitfähigkeit, SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N und Cl^- darüber hinaus Ca^{2+} und Pb^{2+} ermittelt.

Der Trocken-/Naßsammler in Bochum war von Januar 1982 bis Februar 1983, derjenige auf dem Kahlen Asten von November 1982 bis November 1984 in Betrieb.

1. Einleitung

Zur Erfassung der raum-zeitlichen Immissions- und Depositionsstruktur atmosphärischer Spurenstoffe in waldreichen Reinluftgebieten wurde wegen bislang fehlender Untersuchungen im sauerländischen Teil des rechtsrheinischen Schiefergebirges im Jahre 1982 ein aus 16 Stationen bestehendes Meßnetz eingerichtet.

Bei den Meßstellen handelt es sich um modifizierte BERGERHOFF-Geräte, mit denen sowohl die Immissionsraten (SAM nach RUMPEL, UBA 7/84) von Schwefel und Stickstoff gemessen wurden als auch 'bulk'- Niederschläge aufgefangen werden konnten. Darüber hinaus war auf dem 845 m ü.NN gelegenen Kahlen Asten ein automatisch arbeitender Trocken-/Naßsammler errichtet worden, der von November 1982 bis November 1984 Tagesniederschlagswasserproben, trockene Depositionen sowie Aerosolkonzentrationen erfaßte. Ein weiterer Trocken-/Naßsammler befand sich zu Vergleichszwecken an der Klimastation des Geographischen Instituts im Botanischen Garten der Ruhruniversität Bochum im mittleren Ruhrgebiet. Mit diesem Gerät konnten jedoch keine Aerosolkonzentrationen bestimmt werden.

In dem im Jahre 1983 veröffentlichten Zwischenbericht über dieses Forschungsprojekt wurden für den Zeitraum Dezember 1982 bis Mai 1983 erste Ergebnisse der 'bulk'- Niederschlagswasseranalysen sowie der Bestimmungen der Immissionsraten zusammengefaßt (KUTTLER 1983 a). Der nunmehr vorliegende Abschlußbericht enthält die Ergebnisse der 'bulk'- Niederschlagswasser- und Immissionsratenmessungen für den Zeitraum Dezember 1982 bis Dezember 1983 sowie das Datenmaterial, das aus den

Messungen mit dem Trocken-/Naßsammler am Kahlen Asten von November 1982 bis November 1984 resultiert.

Um Vergleiche zwischen den Werten eines "Reinluftgebietes" und eines Industriegebietes zu erhalten, wurden die im Sauerland gewonnenen Daten den im gleichen Zeitraum an der Meßstelle Bochum (Industriegebiet) ermittelten Ergebnissen gegenübergestellt.

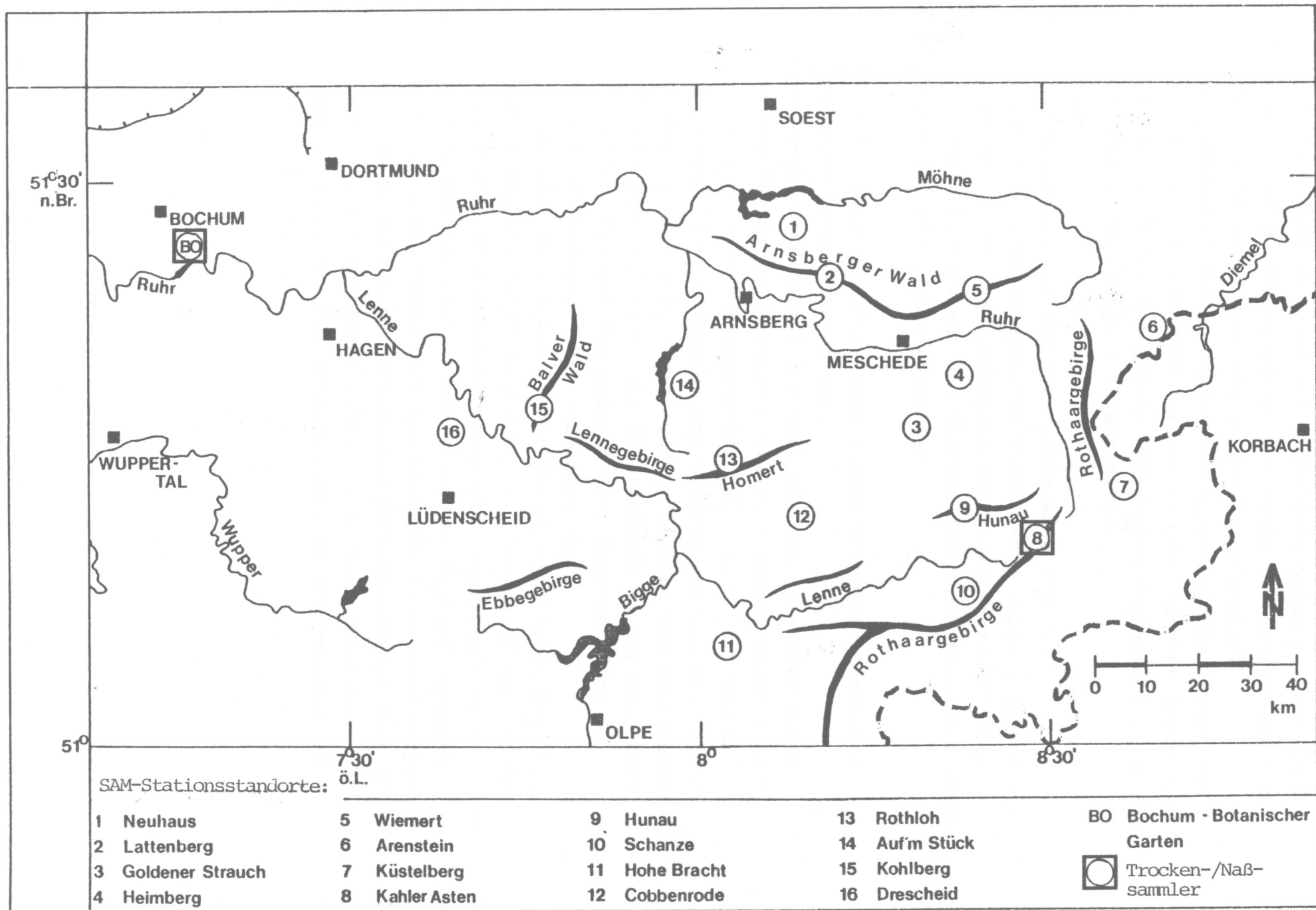
Auf eine detaillierte Lagebeschreibung der Meßstandorte im Sauerland kann an dieser Stelle mit Hinweis auf KUTTLER (1983 a, S. 8) verzichtet werden; es wird in diesem Zusammenhang lediglich noch einmal die bereits im Zwischenbericht enthaltene "Lageskizze der Meßstellen im Untersuchungsgebiet" aufgenommen (Abb. 1).

2. Ergebnisse der Messungen im Sauerland

2.1 Spurenstoffkonzentrationen der 'bulk'- Niederschläge

Für das 16 Stationen umfassende Meßnetz im Sauerland wurden zur spurenstoffspezifischen Charakterisierung der Niederschläge dieses Raumes jeweils über einen Zeitraum von einem Monat 'bulk'- Niederschläge aufgefangen, über einen Auffangtrichter und eine Schlauchleitung in ein strahlungs- und verdunstungsgeschützt in den Boden eingelassenes Sammelgefäß geleitet und nach Wechsel der Probenflaschen auf die Spurenstoffe Sulfat, Nitrat, Chlorid und Fluorid analysiert. Darüber hinaus wurden der pH-Wert und die elektr. Leitfähigkeit der Regenwasserlösung bestimmt. Aus den Monatswerten einer jeden Station wurden für den Zeitraum von März bis November 1983 (für den für alle Stationen Daten vorlagen) Stationsmittelwerte und schließlich 'Gebietsmittelwerte' berechnet.

Abb. 1 Lage der Meßstationen im Untersuchungsgebiet (Sauerland)



Letztere sind in Tabelle 1 enthalten, wobei die auf der linken Seite zusammengestellten Werte ein Datenkollektiv von $n = 16$ aufweisen, die in der Tabellenmitte eingetragenen Werte dagegen aus einem Datenkollektiv von $n = 134$ bis 141 berechnet wurden. Auf der rechten Seite sind die mit gleicher Meßmethode bestimmten Analysedaten für die Station Bochum mit $n = 12$ enthalten.

Der Vergleich der auf zweifachem Wege für die Sauerlandproben berechneten Mittelwerte erlaubt anhand der Bestimmung und des Vergleichs der Variationskoeffizienten (v) einen Hinweis auf den Einfluß durch den Raum bzw. durch die klimatologischen Parameter.

Die Variationskoeffizienten weisen prinzipiell relativ niedrige Prozentzahlen auf.

So liegt zum Beispiel der Wert für das pH-Mittel wegen seines Exponentencharakters erwartungsgemäß niedrig (2,6 %), derjenige der Spurenstoffe SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N und Cl^- bei unter 20 %, derjenige von Fluorid dagegen bei fast 36 %. Der relativ hohe Variationskoeffizient des Spurenstoffs Fluorid läßt auf räumliche Unterschiede in der Belastung schließen, die bei den anderen drei Spurenstoffen wesentlich weniger stark vorhanden sind.

Die größere Heterogenität der Fluoridgehalte in den 'bulk'-Niederschlägen zeigt sich auch beim Vergleich der aus den monatlichen Einzelwerten berechneten Gebietsmittel ($n = 134 - 141$). Der Variationskoeffizient für Fluorid erreicht hiernach einen Höchstwert von über 143 %, während derjenige für den pH-Wert einen erwarteten Minimalwert von fast 15 % einnimmt, und die Schwankungsbreiten der elektrischen Leitfähigkeit und der anderen Spurenstoffe zwischen 38 % und 59 % liegen.

Sauerland

Bochum

	Gebietsmittel aus gewichteten Stationsmitteln (n=16)				Gebietsmittel aus Einzelwerten (n=134-141)				(n=12)			
	\bar{x}_{gew}	niedrigstes/ höchstes gewichtetes Stationsmittel	S	V_0	\bar{x}_{arith}	absolutes Min./ absolutes Max.	S	V_0	\bar{x}_{gew}	absolutes Min./ absolutes Max.	S	V_0
pH	4,22	3,99 - 4,42	0,11	2,6	4,23	3,68 - 7,17	0,67	14,9	4,24	3,90 - 6,68	0,81	19,1
LF	43,0	34,9 - 60,2	7,24	16,1	48,0	22,6 - 127,0	18,0	37,5	58,0	39,0 - 91,5	16,3	28,1
SO ₄ ²⁻ -S	1,64	1,19 - 2,29	0,31	17,7	1,99	0,49 - 5,18	0,98	49,4	2,56	1,02 - 5,61	1,29	45,2
NO ₃ ⁻ -N	0,64	0,51 - 1,00	0,12	17,6	0,72	0,16 - 2,10	0,43	58,8	0,85	0,56 - 1,96	0,47	51,9
Cl ⁻	1,62	1,18 - 2,39	0,31	19,5	16,3	0,25 - 4,81	0,87	53,8	2,93	1,63 - 5,88	1,43	48,0
F ⁻	0,117	0,055 - 0,228	0,043	35,9	0,132	0,000 - 1,44	0,190	143,4	0,178	0,060 - 0,333	0,077	40,1

Tab. 1 Gewichtete und arithmetische "Gebietsmittelwerte" der Spurenstoffkonzentrationen (in mg · l⁻¹), des pH-Werts und der elektrischen Leitfähigkeit (in µS · cm⁻¹) im Sauerland und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

Diese Variationskoeffizienten sind damit im Vergleich zu den aus den Stationsmitteln berechneten zwischen 2,3 (elektr. Leitfähigkeit) und 5,7 (pH-Wert) mal höher.

Da die sich aus den Stationsmittelwerten ergebenden Gebietsmittel gegenüber den aus den Einzelwerten gewonnenen Mittelwerten wesentlich geringere Schwankungsbreiten aufweisen, kann man für den pH-Wert und die elektr. Leitfähigkeit sowie für die Spurenstoffe SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N und Cl^- im Meßgebiet auf eine relativ homogene räumliche Belastung schließen, die durch größere Schwankungen der Mittelwerte, bedingt durch unterschiedliche Niederschlagsverhältnisse, überlagert wird.

Die Fluoridwerte in den 'bulk' - Niederschlägen lassen jedoch bereits für die Konzentrationen eine räumliche Inhomogenität im Untersuchungsgebiet erwarten.

Die Abb. 2 - 7 geben einen Überblick über die Stationsmittel, die Maxima und Minima der pH-Werte, der elektr. Leitfähigkeit sowie der Spurenstoffkonzentrationen Sulfat, Nitrat, Chlorid und Fluorid.

Für die pH-Werte ist Abb. 2 eine Schwankungsbreite der Stationsmittelwerte von pH = 3,99 (Station 1) bis pH = 4,42 (Station 7) zu entnehmen; der höchste im Untersuchungsgebiet gemessene pH-Wert wurde mit pH = 7,17 an der Station 10 bestimmt, der absolut niedrigste Wert mit pH = 3,68 an Station 3.

Es ergab sich im Durchschnitt kein Unterschied zwischen den für das Sauerland berechneten Mittelwerten und dem an der Meßstelle Bochum im mittleren Ruhrgebiet bestimmten. An fast allen Stationen ließen sich relativ hohe Abweichungen zum basischen Bereich hin erkennen, während diejenigen zum sauren Bereich wesentlich niedriger ausfielen.

Die elektr. Leitfähigkeitswerte (Abb. 3) lagen im Sauerland zwischen 34,9 $\mu\text{S}/\text{cm}$ und 60,2 $\mu\text{S}/\text{cm}$. Der höchste mittlere

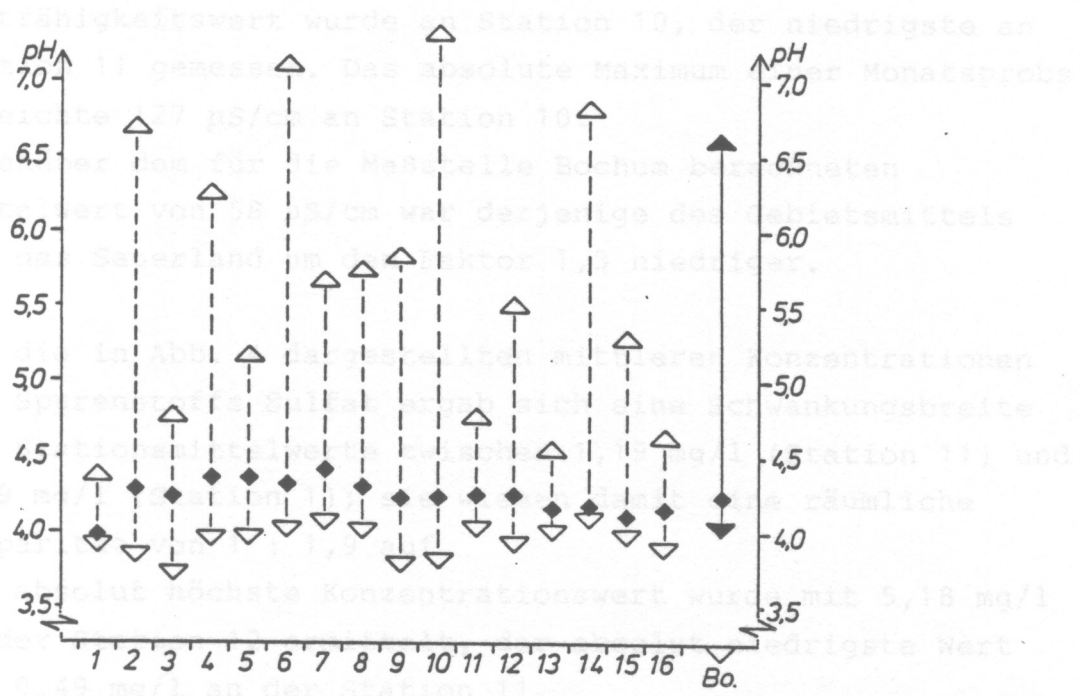


Abb. 2 Mittelwerte, Minima und Maxima der pH-Werte an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

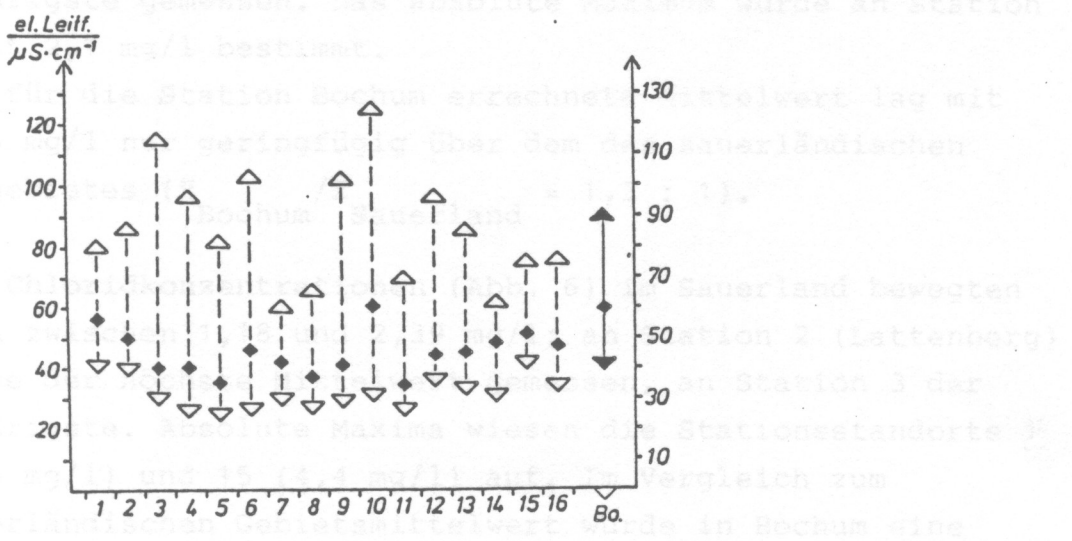


Abb. 3 Mittelwerte, Minima und Maxima der elektrischen Leitfähigkeit an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

Leitfähigkeitswert wurde an Station 10, der niedrigste an Station 11 gemessen. Das absolute Maximum einer Monatsprobe erreichte 127 $\mu\text{S}/\text{cm}$ an Station 10.

Gegenüber dem für die Meßstelle Bochum berechneten Mittelwert von 58 $\mu\text{S}/\text{cm}$ war derjenige des Gebietsmittels für das Sauerland um den Faktor 1,3 niedriger.

Für die in Abb. 4 dargestellten mittleren Konzentrationen des Spurenstoffs Sulfat ergab sich eine Schwankungsbreite der Stationsmittelwerte zwischen 1,19 mg/l (Station 11) und 2,29 mg/l (Station 1); sie wiesen damit eine räumliche Disparität von 1 : 1,9 auf.

Der absolut höchste Konzentrationswert wurde mit 5,18 mg/l an der Station 12 ermittelt, der absolut niedrigste Wert mit 0,49 mg/l an der Station 11.

Im Vergleich zum Industriegebiet (Station Bochum: $\bar{x} = 2,56$ mg/l) wurde für das Sauerland ein 1,5 fach niedrigerer Gebietsmittelwert berechnet.

Die Nitratkonzentrationen (Abb. 5) lagen an den Sauerlandstationen zwischen 0,51 und 1,0 mg/l; an Station 1 wurde der höchste Stationsmittelwert, an Station 11 der niedrigste gemessen. Das absolute Maximum wurde an Station 6 mit 2,1 mg/l bestimmt.

Der für die Station Bochum errechnete Mittelwert lag mit 0,85 mg/l nur geringfügig über dem des sauerländischen Meßgebietes ($\bar{x}_{\text{Bochum}} / \bar{x}_{\text{Sauerland}} = 1,3 : 1$).

Die Chloridkonzentrationen (Abb. 6) im Sauerland bewegten sich zwischen 1,18 und 2,39 mg/l; an Station 2 (Lattenberg) wurde der höchste Mittelwert gemessen, an Station 3 der niedrigste. Absolute Maxima wiesen die Stationsstandorte 1 (4,8 mg/l) und 15 (4,4 mg/l) auf. Im Vergleich zum sauerländischen Gebietsmittelwert wurde in Bochum eine mittlere Chloridkonzentration von 2,93 mg/l erreicht; diese

Abb. 5: Mittelwerte, Minima und Maxima der $\text{NO}_3^- - \text{N}$ - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (1/1981 - 11/1983)

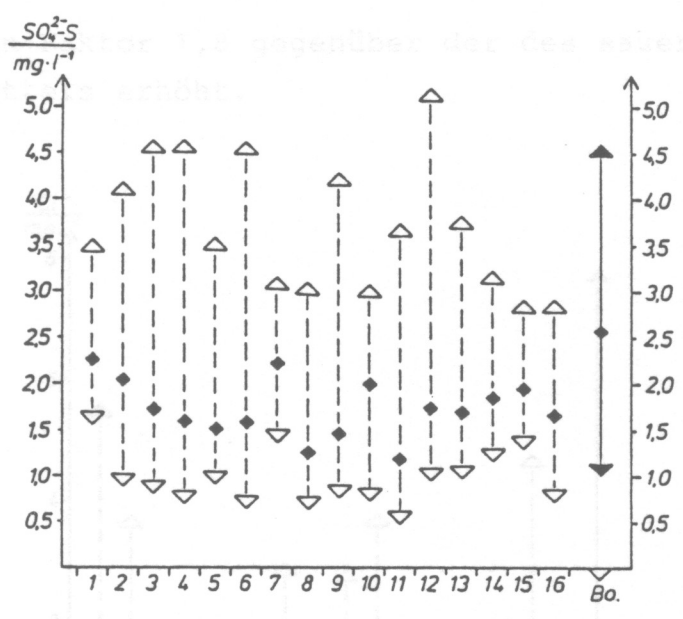


Abb. 4 Mittelwerte, Minima und Maxima der $SO_4^{2-}-S$ - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

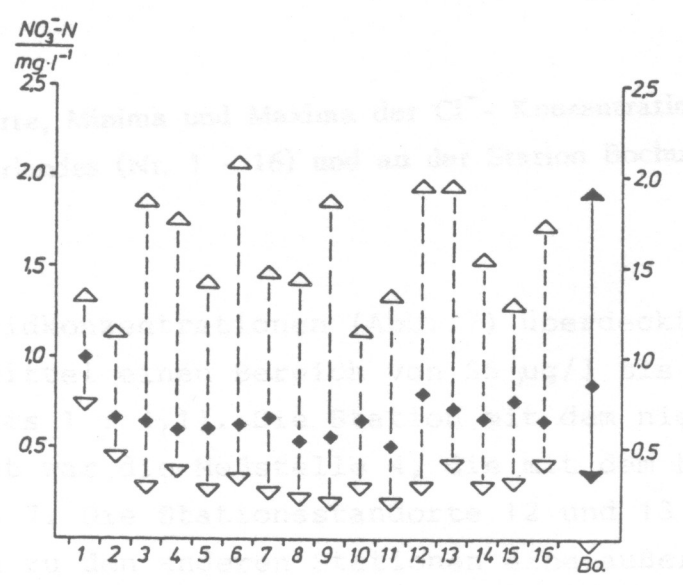


Abb. 5 Mittelwerte, Minima und Maxima der $NO_3^- - N$ - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

war um den Faktor 1,8 gegenüber der des sauerländischen Gebietsmittels erhöht.

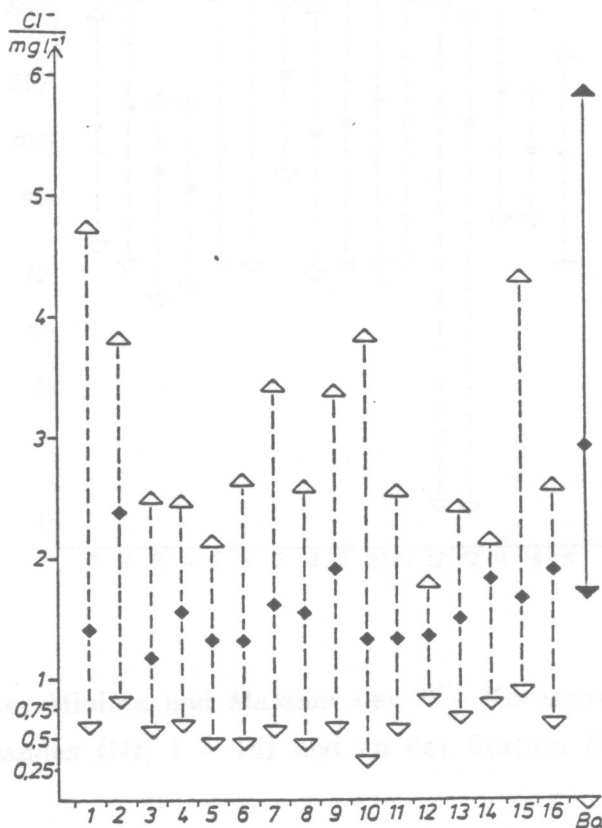


Abb. 6 Mittelwerte, Minima und Maxima der Cl^- -Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

Die Fluoridkonzentrationen (Abb. 7) überdeckten im Stationsmittel einen Bereich von 55 $\mu g/l$ bis 228 $\mu g/l$ (Verhältnis 1 : 4,1). Die Station mit dem niedrigsten Mittelwert war die Meßstelle 4, die mit dem höchsten Wert Meßstelle 7. Die Stationsstandorte 12 und 13 wiesen im Vergleich zu den anderen Stationen eine außerordentlich hohe Amplitude der Meßwerte auf (Station 12: 1 - 590 $\mu g/l$; Station 13: 1 - 510 $\mu g/l$). Das absolute Maximum wurde mit 1440 $\mu g/l$ an Station 14 angezeigt.

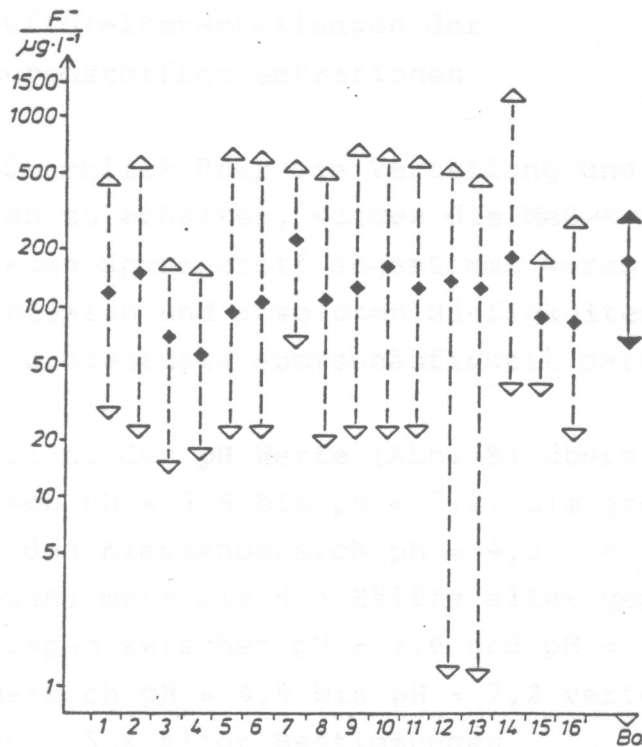


Abb. 7 Mittelwerte, Minima und Maxima der F^- -Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

Beim Fluorid-Gebietsmittelwert wurde für die Station Bochum eine mittlere Konzentration von $178 \mu\text{g/l}$ erreicht mit annähernd gleichhoher Schwankungsbreite wie im Sauerland. Der Bochumer Mittelwert verhielt sich zum sauerländischen Gebietsmittelwert wie $1,5 : 1$.

2.1.1 Häufigkeitsverteilungen der Spurenstoffkonzentrationen

Um einen Überblick über die Verteilung und Häufigkeit der Einzeldaten zu erhalten, wurden die Meßwerte nach Gruppen, die auf jeden Spurenstoff abgestimmt waren, geordnet und die prozentualen und absoluten Häufigkeiten der Gruppen sowie die prozentuale Summenhäufigkeit dargestellt.

Die Verteilung der **pH-Werte** (Abb. 8) überspannte ein Spektrum von pH = 3,6 bis pH = 7,2; die größte Häufung wurde für den Klassenbereich pH = 4,0 - 4,1 (17 %) nachgewiesen; mehr als die Hälfte aller gemessenen pH-Werte (55,7 %) lagen zwischen pH = 3,6 und pH = 4,3.

Auf den Bereich pH = 4,9 bis pH = 7,2 verteilten sich dagegen nur 15 % aller Bestimmungen.

Die Werte der **elektr. Leitfähigkeit** (Abb. 9) erreichten in der Gruppe zwischen 37 und 40 $\mu\text{S}/\text{cm}$ ein Maximum von über 13 %; mehr als 52 % der Gesamtwerte waren kleiner als 43 $\mu\text{S}/\text{cm}$; außerordentlich selten - nur in etwa 10 % der Fälle - wurden Leitfähigkeitswerte gemessen, die bei über 70 $\mu\text{S}/\text{cm}$ lagen.

Die **SO₄²⁻ - S - Konzentrationen** (Abb. 10) überdeckten einen Konzentrationsbereich von 0,45 bis 5,25 mg/l; die Konzentrationsklasse 1,2 - 1,35 mg/l erreichte 14 % der Gesamtanzahl der Werte; der 50 % - Wert in der Summenhäufigkeitsverteilung lag bei einer Konzentration von weniger als 1,8 mg/l.

Die z.T. recht heterogene Werteverteilung des Konzentrationsspektrums paust die Beeinflussung durch lokale Emittenten im Untersuchungsgebiet durch.

Die **NO₃⁻ - N - Konzentrationen** (Abb. 11), die am häufigsten bestimmt wurden, entfielen auf die Klassen 0,3 - 0,7 mg/l

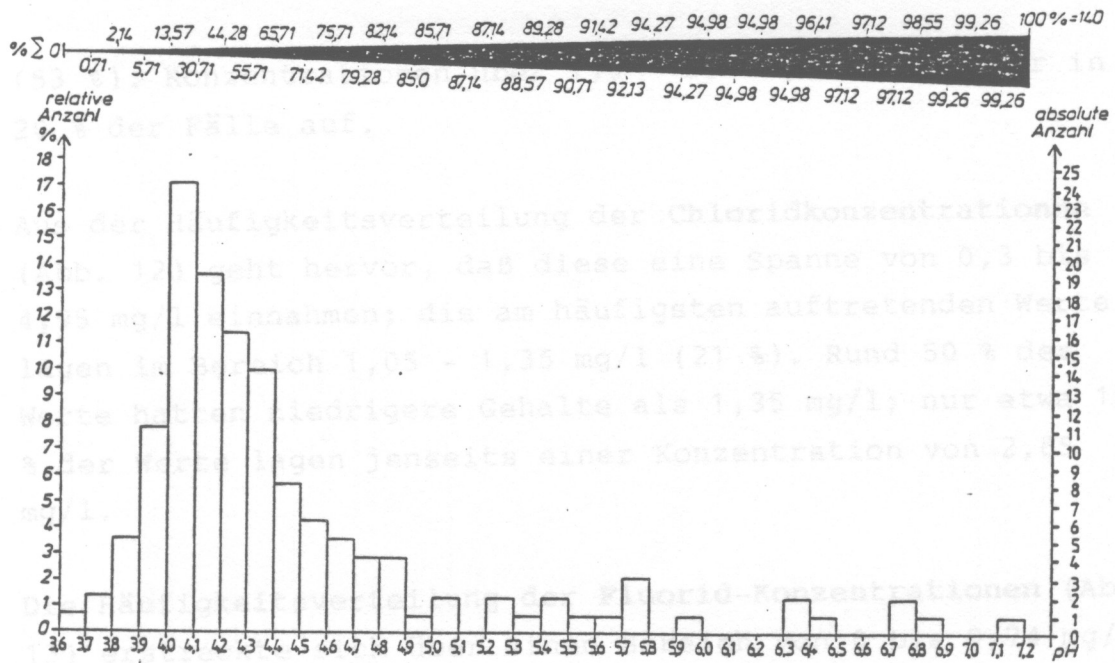


Abb. 8 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der pH-Werte an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)

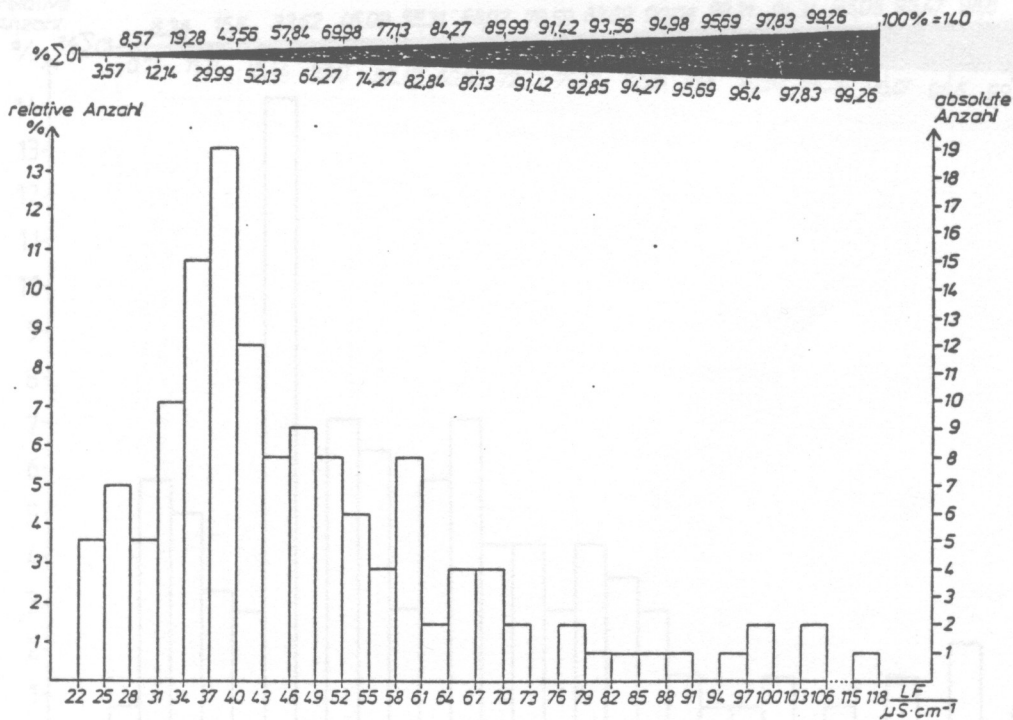


Abb. 9 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der elektrischen Leitfähigkeit an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)

(53 %). Konzentrationen über 1,0 - 2,2 mg/l traten nur in 20 % der Fälle auf.

Aus der Häufigkeitsverteilung der **Chloridkonzentrationen** (Abb. 12) geht hervor, daß diese eine Spanne von 0,3 bis 4,95 mg/l einnahmen; die am häufigsten auftretenden Werte lagen im Bereich 1,05 - 1,35 mg/l (21 %). Rund 50 % der Werte hatten niedrigere Gehalte als 1,35 mg/l; nur etwa 10 % der Werte lagen jenseits einer Konzentration von 2,85 mg/l.

Die Häufigkeitsverteilung der **Fluorid-Konzentrationen** (Abb. 13) erstreckte sich über einen Bereich von 0 bis 0,74 mg/l; die sich hier ergebende Verteilung ist relativ uneinheitlich mit unterschiedlich maximalen Verteilungshäufigkeiten. 48 % der Konzentrationen waren kleiner als 0,07 mg/l; 10 % der Konzentrationen waren größer als 0,21 mg/l.

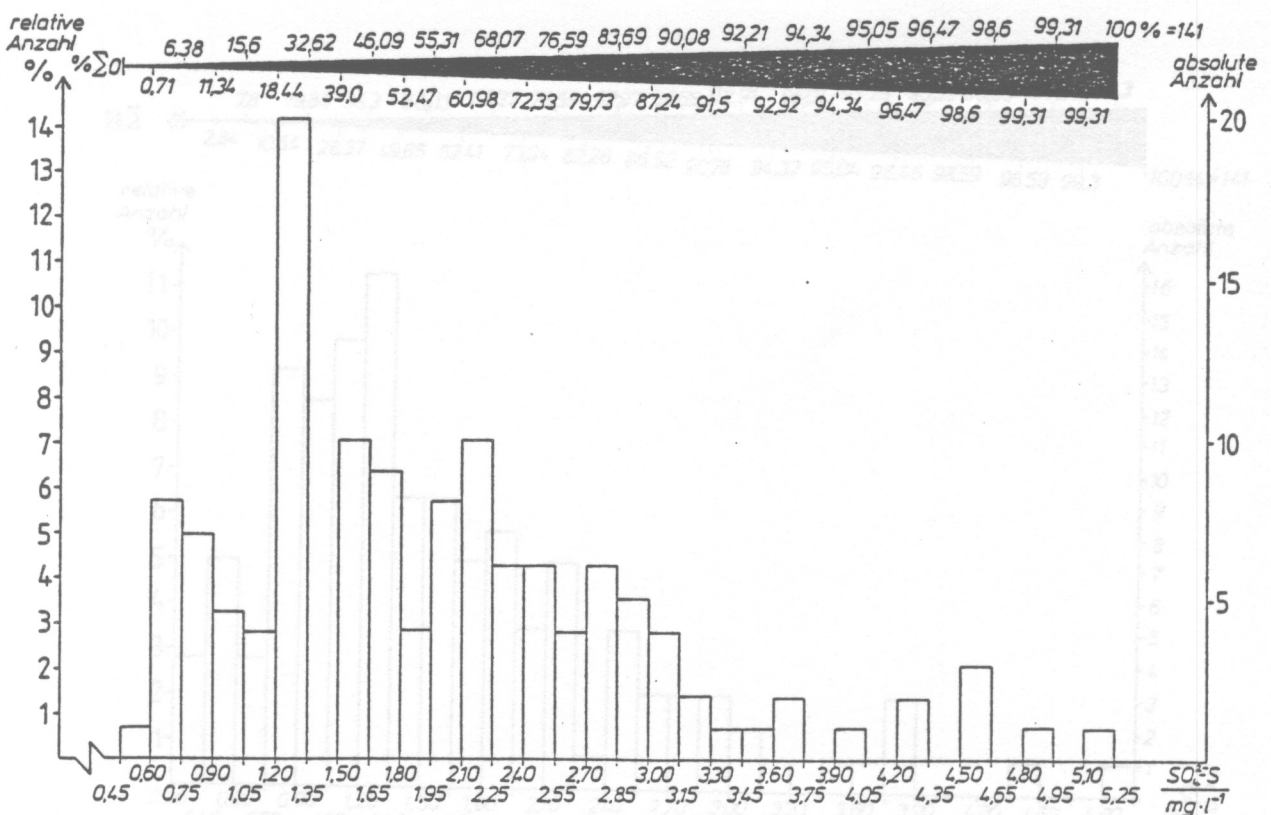


Abb. 10 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der SO₄²⁻ - S - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)

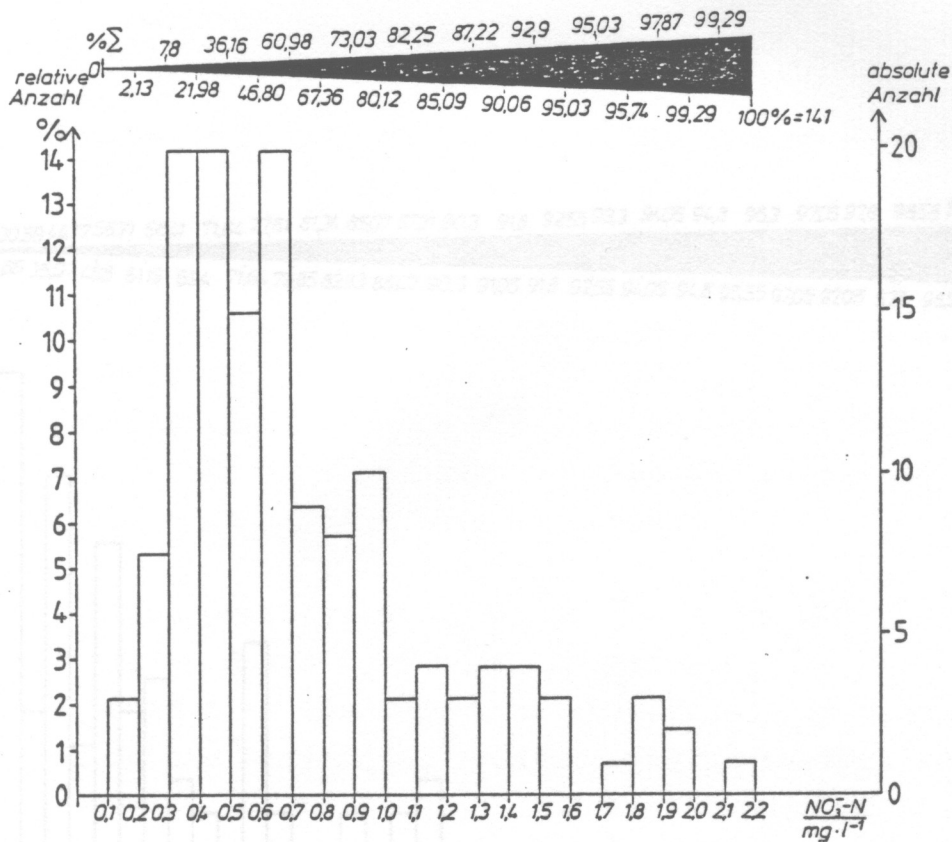


Abb. 11 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der $\text{NO}_3^- - \text{N}$ - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)

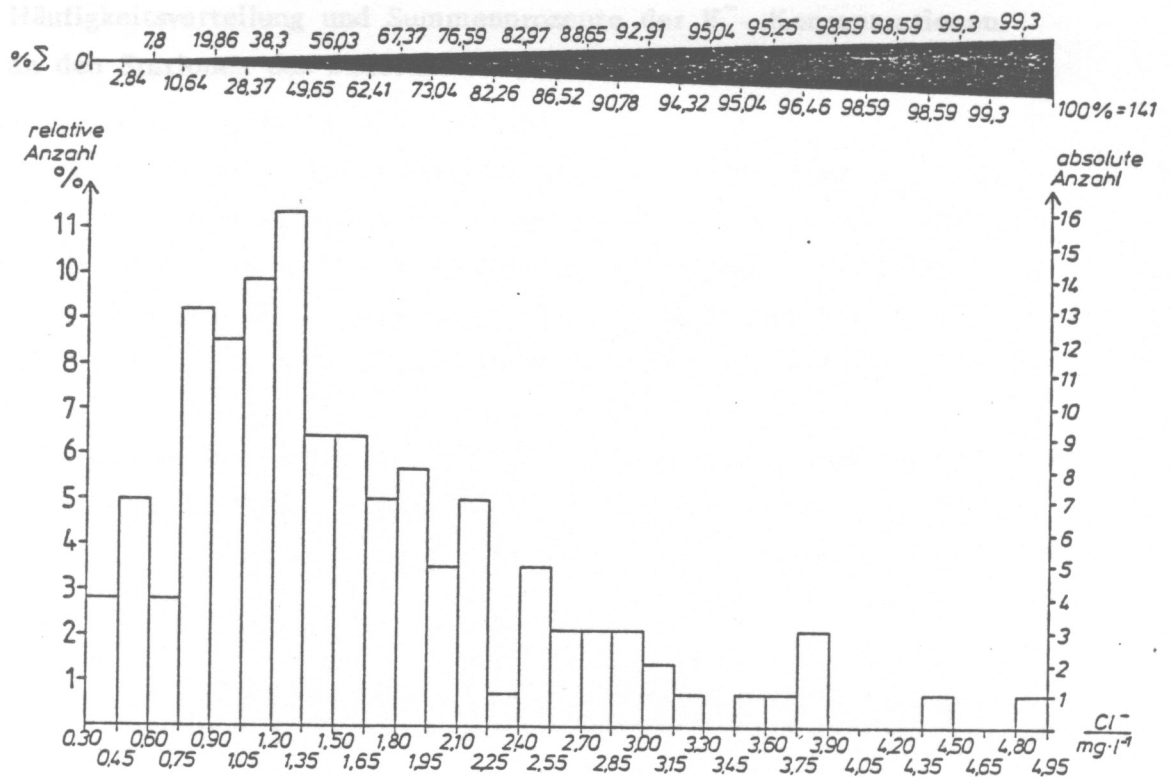


Abb. 12 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der Cl^- - Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)

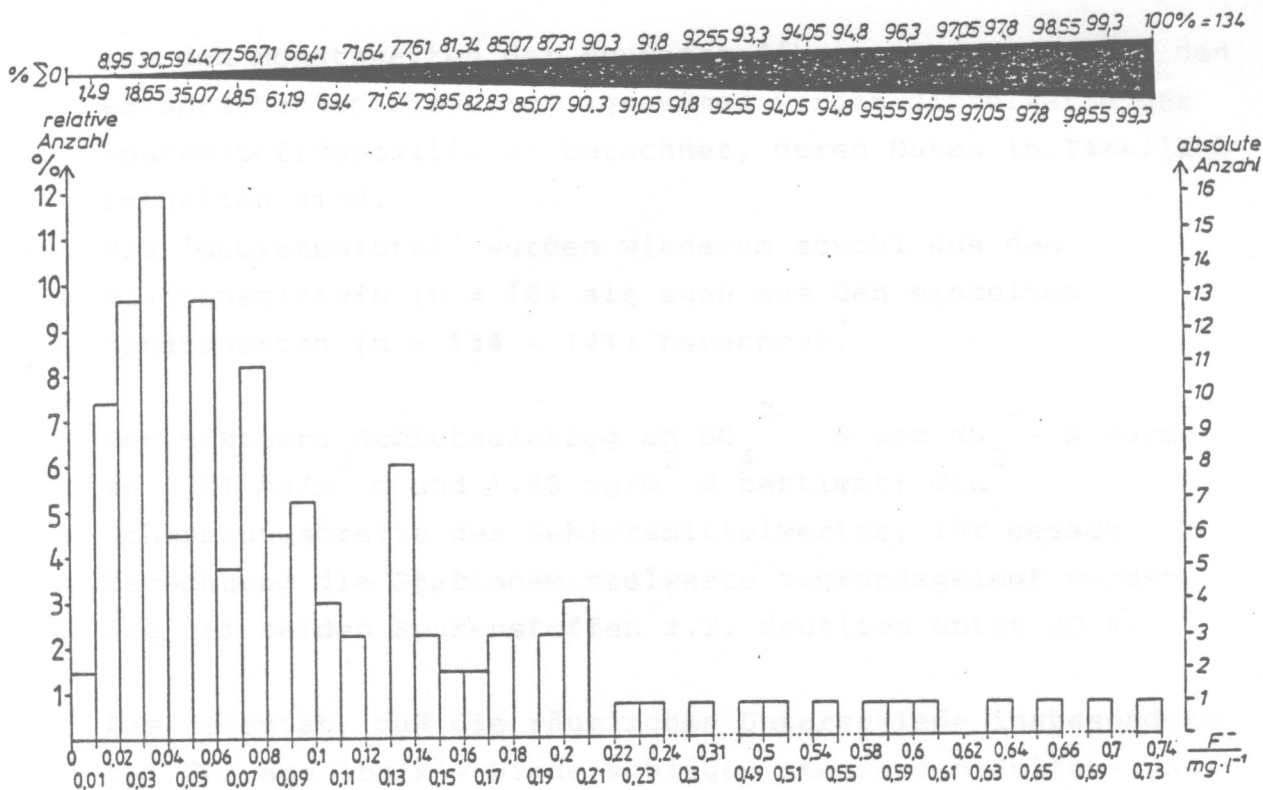


Abb. 13 Häufigkeitsverteilung und Summenprozente der F^- -Konzentrationen an den Stationen des Sauerlandes (3/1983 - 11/1983)

2.2 Spurenstoffdepositionen der 'bulk'- Niederschläge

Aus den Monatswerten der Spurenstoffkonzentrationen und den entsprechenden Niederschlagssummen wurden Mittelwerte der Spurenstoffdepositionen berechnet, deren Daten in Tabelle 2 enthalten sind.

Die 'Gebietsmittel' wurden wiederum sowohl aus den Stationsmitteln ($n = 16$) als auch aus den einzelnen Monatswerten ($n = 134 - 141$) berechnet.

Der mittlere Gebietseintrag an SO_4^{2-} -S und NO_3^- -N wurde zu $4,81 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ und $1,89 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ bestimmt; die Schwankungsbreite des Gebietsmittelwertes, für dessen Berechnung die Stationsmittelwerte zugrundegelegt wurden, lag bei beiden Spurenstoffen z.T. deutlich unter 20 %.

Das bedeutet, daß die räumlichen Unterschiede insbesondere bei der aus 'bulk'- Niederschlägen stammenden Sulfat- und Nitratdepositionen als gering im Meßgebiet anzusehen sind.

Etwas größere Schwankungsbreiten erreichten die Gebietsmittelwerte für Chlorid ($4,62 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) und Fluorid ($339 \text{ } \mu\text{g/m}^2 \text{ d}$) mit 28,2 % und 34,5 %.

Wesentlich höhere Variationskoeffizienten ergaben sich erwartungsgemäß bei der Berechnung der Gebietsmittelwerte aus der Gesamtanzahl der Werte ($n = 134 - 141$). Auch hierbei wiesen die Spurenstoffe SO_4^{2-} -S und NO_3^- -N die niedrigsten Variationskoeffizienten mit 45,3 % bzw. 67,2 % auf.

Höhere Werte traten für die Chloriddepositionen mit 87,7 % und höchste Werte für die Fluoriddepositionen mit 161,1 % auf.

	Gebietsmittel n = 16			niedrigster/ höchster Stations- mittelwert		Gebietsmittel n = 134 - 141			absolute Minima/ absolute Maxima		Bochum n = 12 absolute Minima/ absolute Maxima	
	\bar{x}	s	v			\bar{x}	s	v			\bar{x}	
SO ₄ ²⁻ -S	4,81	0,6	13,3	3,77	- 6,00	4,81	2,18	45,3	1,00	- 12,11	5,80	3,09 - 8,74
NO ₃ ⁻ -N	1,89	0,3	17,5	1,35	- 2,49	1,87	1,26	67,2	0,34	- 6,10	1,89	0,81 - 3,31
Cl ⁻	4,62	1,3	28,2	3,02	- 7,10	4,81	4,22	87,7	0,40	- 32,00	6,97	2,28 - 20,84
F ⁻	0,339	0,12	34,5	0,139	- 0,495	0,34	0,56	161,1	0,001	- 3,65	0,404	0,201 - 0,78

Tab. 2 "Gebietsmittelwerte" der Spurenstoffdepositionen im Sauerland und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983) (in mg/m² . d)

Gegenüber dem Standort Bochum verhielt sich im Sauerland das Gebietsmittel für SO_4^{2-} - S wie 1 : 1,2, für NO_3^- - N wie 1 : 1, für Chlorid wie 1 : 1,5 und für Fluorid wie 1 : 1,2. Die Unterschiede der nassen Depositionen zwischen dem Industriestandort Bochum und den unbelasteten Gebieten im Sauerland sind für diesen Meßzeitraum verhältnismäßig gering.

In den Abb. 14 - 17 sind die Stationsmittelwerte der Depositionen mit den entsprechenden absoluten Minima und Maxima für die vier Spurenstoffe dargestellt.

Die höchste mittlere SO_4^{2-} - S - Deposition (Abb. 14) wurde an Station 10 mit $6,39 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ erreicht; die Station, die den niedrigsten mittleren Eintrag aufwies, war Meßstelle 5 mit $3,77 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$. An beiden Stationen wurden auch die höchsten und niedrigsten absoluten Depositionswerte erreicht: das absolute Maximum an Station 10 lag bei $12,31 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$, das absolute Minimum des Meßgebietes wurde mit $1,0 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ an Station 5 gefunden.

Die Höchstwerte im Sauerland lagen deutlich über denjenigen des Industriestandortes Bochum ($8,8 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$).

Die Stationsmittelwerte der NO_3^- - N - Depositionen (Abb. 15) verhielten sich wie 1 : 1,8 (Station 7 zu Station 19), die Maxima wie 1 : 2,6 (Station 12 zu Station 7), die Minima wie 1 : 3,1 (Station 5 zu Station 8). Der absolut höchste Wert wurde an Station 12 mit $6,33 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ bestimmt, der absolut niedrigste Wert an Station 5 mit $0,34 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$. Die Vergleichswerte von Bochum entsprechen etwa denjenigen, die an den einzelnen Sauerlandstationen bestimmt wurden.

Die Kurve der Chlorid-Depositionen (Abb. 16) an den einzelnen Meßstellen zeigte zum Teil vergleichbare Mittelwerte (Stationen 2,8,9,16), wie sie ebenfalls in

Abb. 13 Mittelwerte, Minima und Maxima der NO_3^- - N - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 19) und an der Station Bochum (1/1983 - 11/1983)

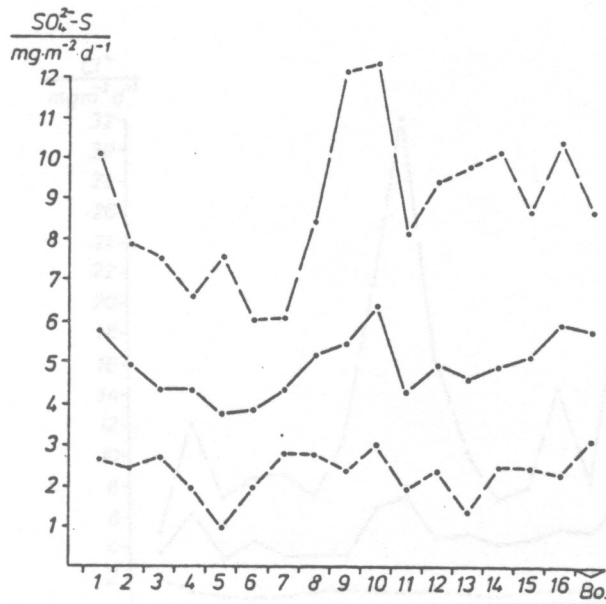


Abb. 14 Mittelwerte, Minima und Maxima der SO₄²⁻ - S - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

bochum gemessen wurden. Während sich die Verteilung der absoluten Minima im Sauerland zwischen 0,4 und 1,8 mg/m² d - also in einem Verhältnis von 1 : 4,5 bewegte - waren die Unterschiede der Maxima im Ruhrgebiet wesentlich größer: das kleinste Maximum (Station 1) lag bei 4,90 mg/m² d, das größte bei 12,0 mg/m² d (Station 9) (Verhältnis 1 : 6,3).

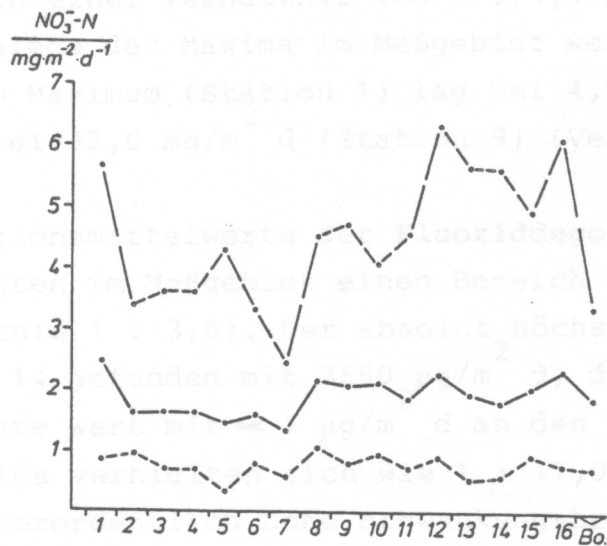


Abb. 15 Mittelwerte, Minima und Maxima der NO₃⁻ - N - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

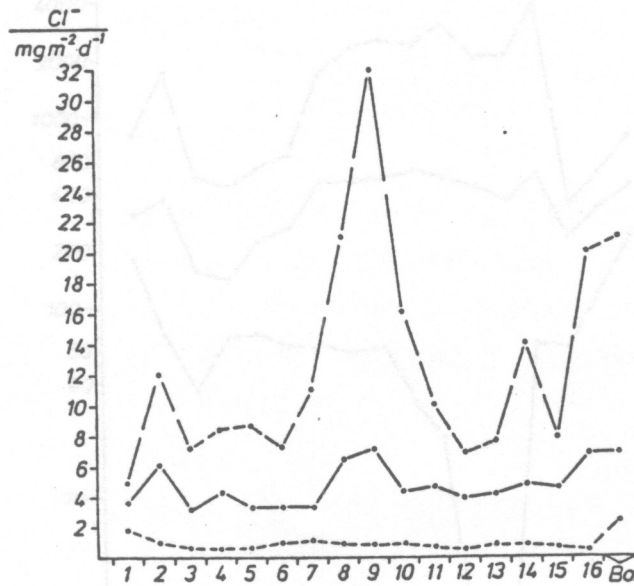


Abb. 16 Mittelwerte, Minima und Maxima der Cl⁻ - Depositionen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

Bochum gemessen wurden. Während sich die Verteilung der absoluten Minima im Sauerland zwischen 0,4 und 1,8 mg/m² d - also in einem Verhältnis von 1 : 4,5 bewegte - waren die Unterschiede der Maxima im Meßgebiet wesentlich größer: das kleinste Maximum (Station 1) lag bei 4,90 mg/m² d, das größte bei 32,0 mg/m² d (Station 9) (Verhältnis 1 : 6,5).

Die Stationsmittelwerte der **Fluoriddepositionen** (Abb. 17) überdeckten im Meßgebiet einen Bereich von 139 µg/m² d (Verhältnis 1 : 3,6). Der absolut höchste Wert wurde an Station 14 gefunden mit 3650 µg/m² d, der absolut niedrigste Wert mit 1 µg/m² d an den Stationen 12 und 13. Die Maxima verhielten sich wie 1 : 11,0, die Minima wiesen eine außerordentlich hohe Schwankungsbreite auf, und zwar wurde ein Verhältnis der Stationsminima von 1 : 108 nachgewiesen. Die Fluoriddepositionen sind zum Teil außerordentlich unterschiedlich über das Meßgebiet verteilt.

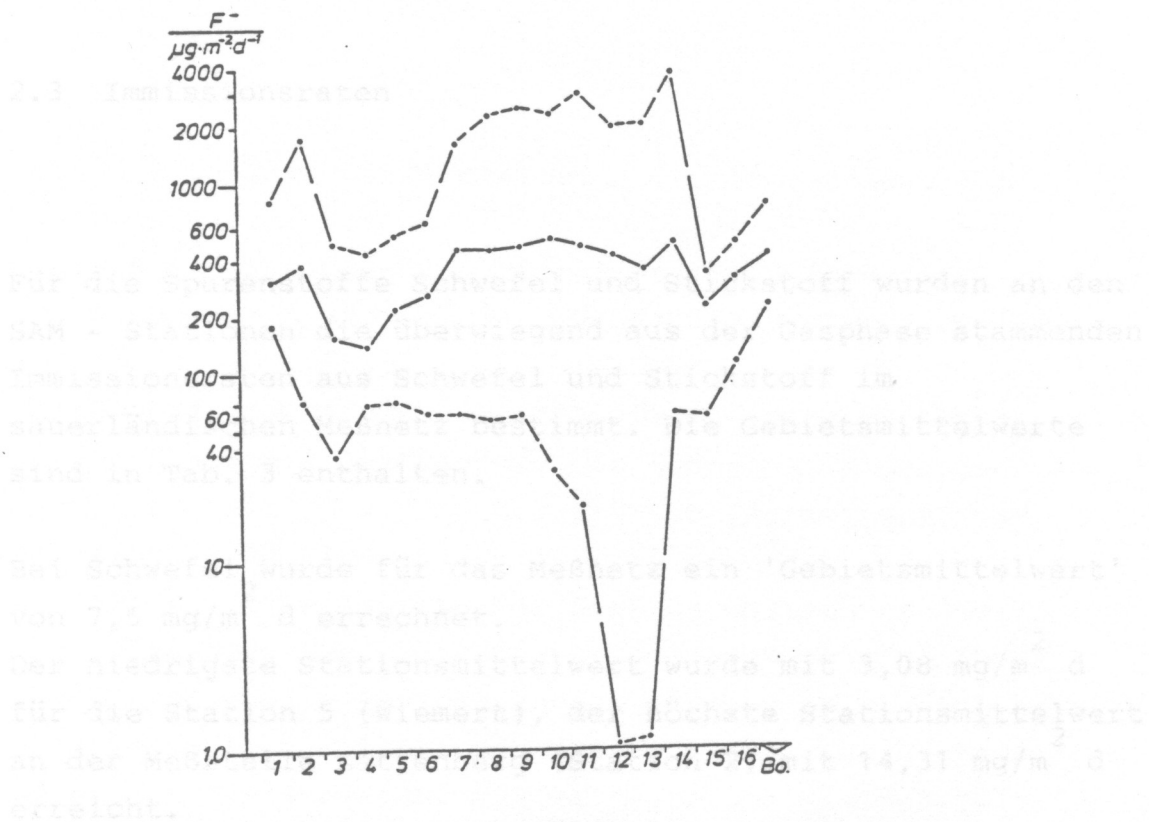


Abb. 17 Mittelwerte, Minima und Maxima der F⁻-Depositionen an den Stationen des Sauerlandes (Nr. 1 - 16) und an der Station Bochum (3/1983 - 11/1983)

Der absolute höchste Monatswert betrug 27,4 µg/m²·d (Station 6, Arenstein; im Februar 1983).

Der Gebietsmittelwert für die Stickstoff-Immissionsrate lag bei 0,29 µg/m²·d. Das niedrigste Stationsmittel wurde ebenfalls wie für den Spurenstoff Schwefel an Station 3 (Wibbert) mit 0,13 µg/m²·d erreicht, das höchste Stationsmittel mit 0,49 µg/m²·d an der Station 13 (Rothloch). Der absolut niedrigste Monatswert trat an Station 5 (Wibbert) mit 0,07 µg/m²·d im Juli 1983 auf, der absolut höchste Wert an Station 13 (Rothloch) mit 1,0 µg/m²·d im August 1983.

	\bar{x}	höchster u. niedrigster Stationsmittelwert	absolutes Minimum	absolutes Maximum	n
Schwefel	7,51	3,08 - 14,31	0,9	27,4	195
Stickstoff	0,29	0,13 - 0,49	0,07	1,0	178

Tab. 3 "Gebietsmittelwerte" der Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland (1/1982 - 12/1983) (in µg/m²·d)

2.3 Immissionsraten

2.3.1 Räumliche Differenzierung der Immissionsraten

Für die Spurenstoffe Schwefel und Stickstoff wurden an den SAM - Stationen die überwiegend aus der Gasphase stammenden Immissionsraten aus Schwefel und Stickstoff im sauerländischen Meßnetz bestimmt. Die Gebietsmittelwerte sind in Tab. 3 enthalten.

Bei Schwefel wurde für das Meßnetz ein 'Gebietsmittelwert' von $7,5 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ errechnet.

Der niedrigste Stationsmittelwert wurde mit $3,08 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ für die Station 5 (Wiemert), der höchste Stationsmittelwert an der Meßstelle Lattenberg (Station 2) mit $14,31 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ erreicht.

Der absolut niedrigste Monatswert lag bei $0,9 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ (Station 5, Wiemert) und wurde im Dezember gemessen, der absolut höchste Monatswert betrug $27,4 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ (Station 6, Arenstein; im Februar 1983).

Der Gebietsmittelwert für die Stickstoff-Immissionsrate lag bei $0,29 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$. Das niedrigste Stationsmittel wurde ebenfalls wie für den Spurenstoff Schwefel an Station 5 (Wiemert) mit $0,13 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ erreicht, das höchste Stationsmittel mit $0,49 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ an der Station 13 (Rothloh). Der absolut niedrigste Monatswert trat an Station 5 (Wiemert) mit $0,07 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ im Juli 1983 auf, der absolut höchste Wert an Station 13 (Rothloh) mit $1,0 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ im August 1983.

	\bar{x}	höchster u. niedrigster Stationsmittelwert	absolutes Minimum	absolutes Maximum	n
Schwefel	7,51	3,08 - 14,31	0,9	27,4	195
Stickstoff	0,29	0,13 - 0,49	0,07	1,0	178

Tab. 3 "Gebietsmittelwerte" der Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland (12/1982 - 12/1983) (in $\text{mg/m}^2 \cdot \text{d}$)

2.3.1 Räumliche Differenzierung der Immissionsraten

Einen Überblick über die räumliche Verteilung der Immissionsraten an Schwefel im Sauerland gibt Abb. 18.

Die höchsten mittleren Schwefelimmisionsraten ergaben sich an der Station 2 (Lattenberg) im Nordsauerländer Oberland mit $14,31 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ und an der Station 13 (Rothloh) im Westsauerländer Oberland mit $11,55 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$.

Der relativ hohe Wert an der Station Lattenberg dürfte auf die Emissionen der Kleinindustrie im unweit südlich der Station gelegenen Ruhrtal zurückzuführen sein. Eine etwas niedrigere Immissionsrate - die aber immer noch wesentlich höher als das Gebietsmittel war - zeigte die Meßstelle Rothloh, die möglicherweise durch die Emissionen aus dem Raum Plettenberg beeinflusst wird. An den anderen Stationen wurden überwiegend Werte zwischen 5 und $8 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ gemessen. Die kleinräumige Prägung der Immissionsraten, die sich in den Stationsmittelwerten ausdrückt und die auf die regionale Emissionsstruktur der Dörfer und Städte im Sauerland zurückzuführen sein dürfte, wies immerhin ein Verhältnis von $1:4,6$ zwischen niedrigst- und höchstbelastetem Standort auf.

Ein Blick auf die räumliche Verteilung der Stickstoff-Immissionsraten im Untersuchungsgebiet (Abb. 19) weist Station 13 (Rothloh) mit dem höchsten Meßstellenmittelwert von $0,49 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ aus, Station 5 (Wiemert) - der Schwefel-Immissionsrate vergleichbar - mit dem niedrigsten Wert von $0,13 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$. Station 2 (Lattenberg) erreicht bei der Stickstoff-Immissionsrate nicht wie beim Schwefel den höchsten Wert, sondern nur eine mittlere Belastung von $0,28 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$. Bis auf den relativ hohen Wert der Station 13

Abb. 19 Stationsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1981 - 12/1983)

(Die Werte der Station 10 wurden wegen eines Standortwechsels der Meßstelle (in den Abb. 18 und 19) nicht eingezeichnet)

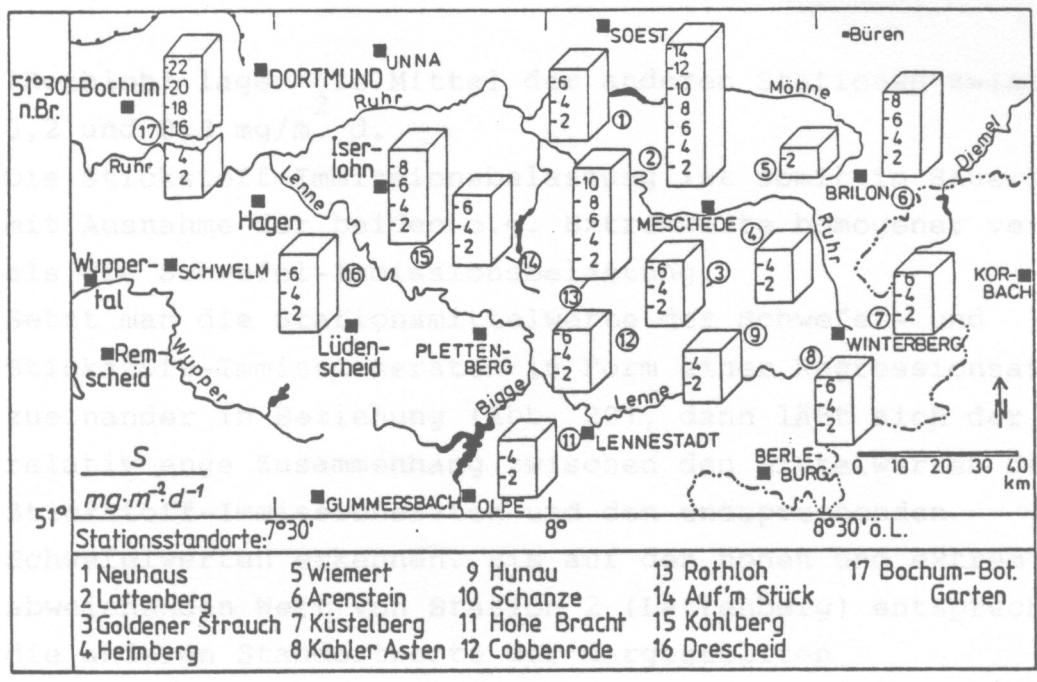


Abb. 18 Stationsmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)

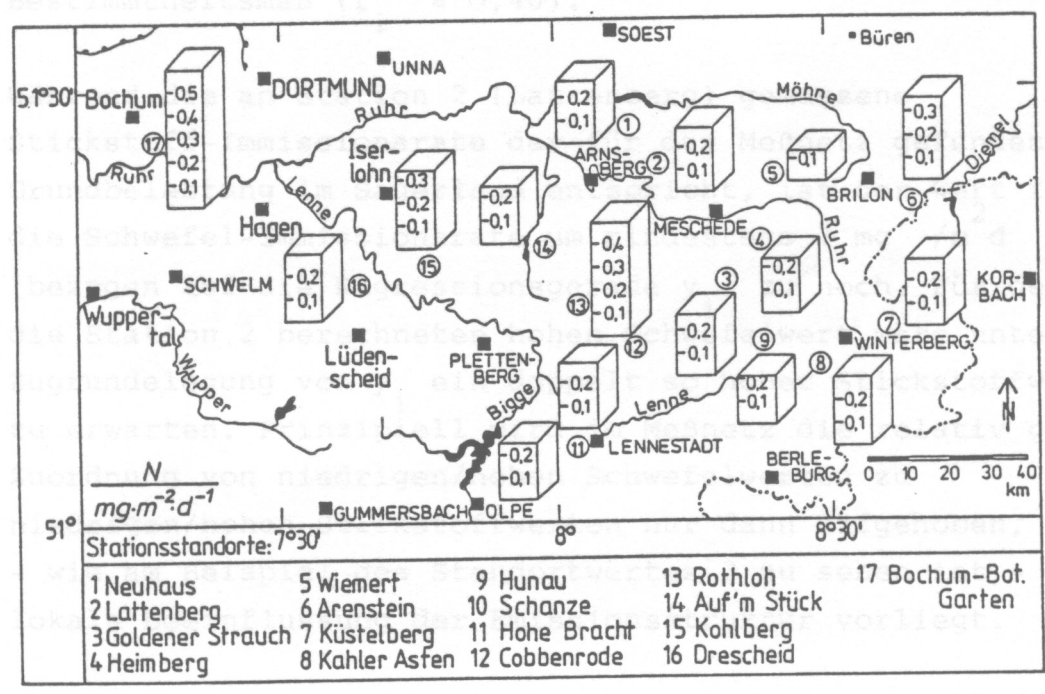


Abb. 19 Stationsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)

(Die Werte der Station 10 wurden wegen eines Standortwechsels der Meßstelle (in den Abb. 18 und 19) nicht eingezeichnet).

(Rothloh) lagen die Mittel der anderen Stationen zwischen 0,2 und 0,3 mg/m² d.

Die Stickstoff-Immissionsbelastung ist somit im Sauerland mit Ausnahme der beiden o.g. Extremwerte homogener verteilt als die Schwefel-Immissionsbelastung.

Setzt man die Stationsmittelwerte der Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten in Form einer Regressionsanalyse zueinander in Beziehung (Abb. 20), dann läßt sich der relativ enge Zusammenhang zwischen den Mittelwerten der Stickstoff-Immissionsraten und den entsprechenden

Schwefelwerten erkennen. Bis auf den hohen und extrem abweichenden Wert von Station 2 (Lattenberg) entsprechen die anderen Standortwerte der dargestellten

Regressionsgeraden y_1 (berechnet ohne den Wert von Station 2) mit einem Korrelationskoeffizienten von $r_1 = 0,94$ und einem Bestimmtheitsmaß von $r_1^2 = 0,88$. Die deutlich schlechtere Zuordnung aller Werte zur Regressionsgeraden y_2 , die nur durch Berücksichtigung des Wertes von Station 2 verursacht wird, zeigt sich an dem niedrigen

Korrelationskoeffizienten ($r_2 = 0,68$) und dem schlechten Bestimmtheitsmaß ($r_2^2 = 0,46$).

Während die an Station 2 (Lattenberg) gemessene Stickstoff-Immissionsrate der für das Meßnetz gefundenen Grundbelastung im Sauerland entspricht, ist der Wert für die Schwefel-Immissionsrate um mindestens 7 mg /m² d (bezogen auf die Regressionsgerade y_1) zu hoch. Für den für die Station 2 berechneten hohen Schwefelwert wäre unter Zugrundelegung von y_1 ein doppelt so hoher Stickstoffwert zu erwarten. Prinzipiell wird im Meßnetz die relativ gute Zuordnung von niedrigen/hohen Schwefelwerten zu niedrigen/hohen Stickstoffwerten nur dann aufgehoben, wenn - wie am Beispiel des Standortwertes 2 zu sehen ist - eine lokale Beeinflussung der Emissionsstruktur vorliegt.

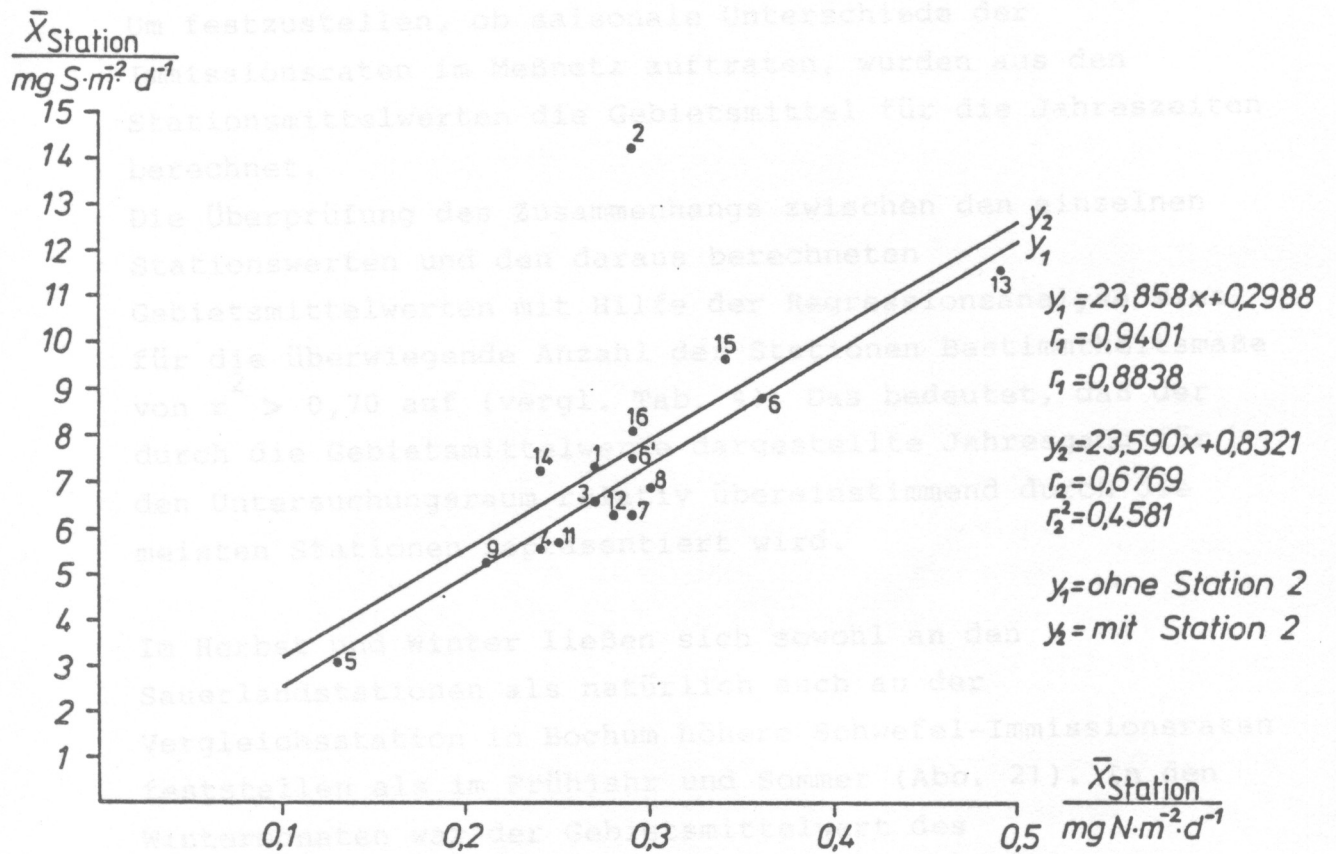


Abb. 20 Zusammenhang zwischen den Stationsmittelwerten der Schwefel-Immissionsraten und denen der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Gebietsmittelwert für Schwefel ein Winter/Sommervershältnis von 1 : 1,9 auf; an der am stärksten belasteten Station 2 (Lattenberg) ein solches von 1 : 3,8, an der am wenigsten belasteten Station 3 (Wiemert) einen Sommer-/Winterunterschied von 1 : 1,7 auf. Die relativ hohe unterschiedliche jahreszeitliche Belastung an Station 2 ist auf die im Vergleich zu den anderen Stationen sehr hohen Winter- und erhöhten Frühjahrs- und

2.3.2 Zeitliche Differenzierung der Immissionsraten

Um festzustellen, ob saisonale Unterschiede der Immissionsraten im Meßnetz auftraten, wurden aus den Stationsmittelwerten die Gebietsmittel für die Jahreszeiten berechnet.

Die Überprüfung des Zusammenhangs zwischen den einzelnen Stationswerten und den daraus berechneten Gebietsmittelwerten mit Hilfe der Regressionsanalyse wies für die überwiegende Anzahl der Stationen Bestimmtheitsmaße von $r^2 > 0,70$ auf (vergl. Tab. 4). Das bedeutet, daß der durch die Gebietsmittelwerte dargestellte Jahresgang für den Untersuchungsraum relativ übereinstimmend durch die meisten Stationen repräsentiert wird.

Im Herbst und Winter ließen sich sowohl an den Sauerlandstationen als natürlich auch an der Vergleichsstation in Bochum höhere Schwefel-Immissionsraten feststellen als im Frühjahr und Sommer (Abb. 21). In den Wintermonaten war der Gebietsmittelwert des Sauerlandmeßnetzes etwa doppelt so hoch wie derjenige im Frühjahr und Sommer, ebenso wie dies für die Vergleichsstation Bochum - bei allerdings höherem Ausgangsniveau der Werte - zu beobachten war.

Für die einzelnen Stationsstandorte sind in Tabelle 5 die Jahreszeitenwerte mitgeteilt. Hiernach wies der Gebietsmittelwert für Schwefel ein Winter/Sommerverhältnis von 1 : 1,9 auf; an der am stärksten belasteten Station 2 (Lattenberg) ein solches von 1 : 3,8, an der am wenigsten belasteten Station 5 (Wiemert) einen Sommer-/Winterunterschied von 1 : 1,7 auf.

Die relativ hohe unterschiedliche jahreszeitliche Belastung an Station 2 ist auf die im Vergleich zu den anderen Stationen sehr hohen Winter- und erhöhten Frühjahrs- und

Winter Frühjahrs Sommer Herbst Winter

Abb. 21 Jahreszeitenmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)

Station	r	y =	r ²
1	r = 0,891	y = 0,911x + 0,509	r ² = 0,793
2	r = 0,817	y = 1,959x + 0,406	r ² = 0,667
3	r = 0,931	y = 0,871x + 0,093	r ² = 0,867
4	r = 0,902	y = 0,712x + 0,215	r ² = 0,814
5	r = 0,763	y = 0,441x - 0,234	r ² = 0,582
6	r = 0,848	y = 1,633x - 3,473	r ² = 0,719
7	r = 0,945	y = 0,764x + 0,600	r ² = 0,893
8	r = 0,939	y = 1,345x - 3,2=5	r ² = 0,882
9	r = 0,905	y = 1,181x - 3,547	r ² = 0,819
10,1/10,2	r = 0,832	y = 1,400x - 3,735	r ² = 0,692
11	r = 0,888	y = 0,568x + 1,394	r ² = 0,789
12	r = 0,929	y = 1,020x - 1,338	r ² = 0,863
13	r = 0,819	y = 1,202x + 2,528	r ² = 0,670
14	r = 0,886	y = 0,627x + 2,480	r ² = 0,785
15	r = 0,872	y = 1,027x + 1,595	r ² = 0,764
16	r = 0,707	y = 0,701x + 2,807	r ² = 0,500

Tab. 4 Korrelationskoeffizienten, Regressionsformeln und Bestimmtheitsmaße für den Zusammenhang zwischen "Gebietsmittelwert" (x) und Stationsmittelwert (y) der Schwefel-Immissionsraten im Sauerland

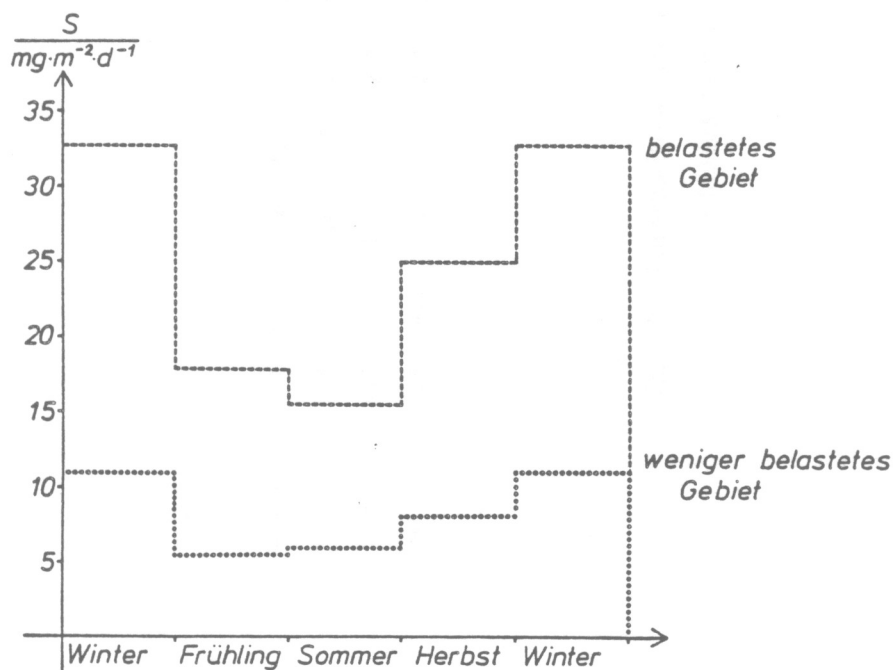


Abb. 21 Jahreszeitenmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)

Station-Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	11	12	13	14	15	16	Gebietsmittel	Bo.
Winter	11,4	23,7	9,2	7,7	4,7	13,7	9,0	11,0	8,9	8,0	9,8	14,4	9,5	12,8	10,7	10,97	32,7
Frühjahr	5,8	9,8	4,8	3,9	2,8	5,7	4,5	5,1	3,6	4,8	4,4	7,9	5,4	7,0	5,6	5,41	17,6
Sommer	4,5	6,3	5,0	5,4	2,8	7,1	5,7	4,8	4,1	4,5	4,5	9,3	5,6	7,6	7,5	5,65	15,5
Herbst	6,9	16,0	7,5	5,3	2,3	9,0	6,2	7,0	5,0	5,3	6,5	15,1	8,1	10,9	8,0	7,93	25,0

Tab. 5 Jahreszeitenmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983) (in $\text{mg}/\text{m}^3 \cdot \text{d}$)

Herbstwerte zurückzuführen, während der Sommerwert - den anderen Stationen entsprechend - niedrig ausfällt.

Im Vergleich zu den Bochumer Werten waren die des sauerländischen Gebietsmittels zu allen Jahreszeiten etwa um den Faktor 3 niedriger.

Einen Überblick über den Jahresgang der Gebietsmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten auf der Grundlage der Monatswerte gibt Abb. 22.

Hiernach wurden die höchsten Schwefel-Immissionsraten im Februar mit $15,5 \text{ mg S/m}^2 \text{ d}$ beobachtet, die niedrigsten Monatswerte wurden für den Monat Mai mit $2,49 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ berechnet. Relativ niedrige Werte der Variationskoeffizienten ergaben sich im Juli und März (24 %), woraus für diese beiden Monate auf eine das gesamte Meßnetz umfassende synchron verlaufende räumliche Belastungsstruktur zu schließen ist. Die höchsten Schwankungen der Stationsmittelwerte traten im Dezember 1983 auf ($v = 65,8 \%$), woraus eine räumlich sehr heterogene Immissionsbelastung resultiert. Diese dürfte verursacht sein durch die topographische Lage der Stationen (Entfernung zu lokalen Emittenten), deren Höhenlage sowie durch die insbesondere in den Wintermonaten gehäuft auftretenden Temperaturinversionen, die den bodennahen Mischungsraum einengen und dadurch partiell gerade in dem relativ stark reliefierten Untersuchungsgebiet zur Bildung unterschiedlicher Immissionsfelder führen können. Dies läßt sich auch sehr deutlich der Abb. 23 entnehmen, in der die Monatswerte der einzelnen Meßstellen für den Untersuchungszeitraum dargestellt sind.

Hiernach wird sehr deutlich, daß auch in sog. Reinluftgebieten relativ große Unterschiede in der Immissionsstruktur in räumlicher und zeitlicher Hinsicht beobachtet werden können (wie dieses insbesondere ein

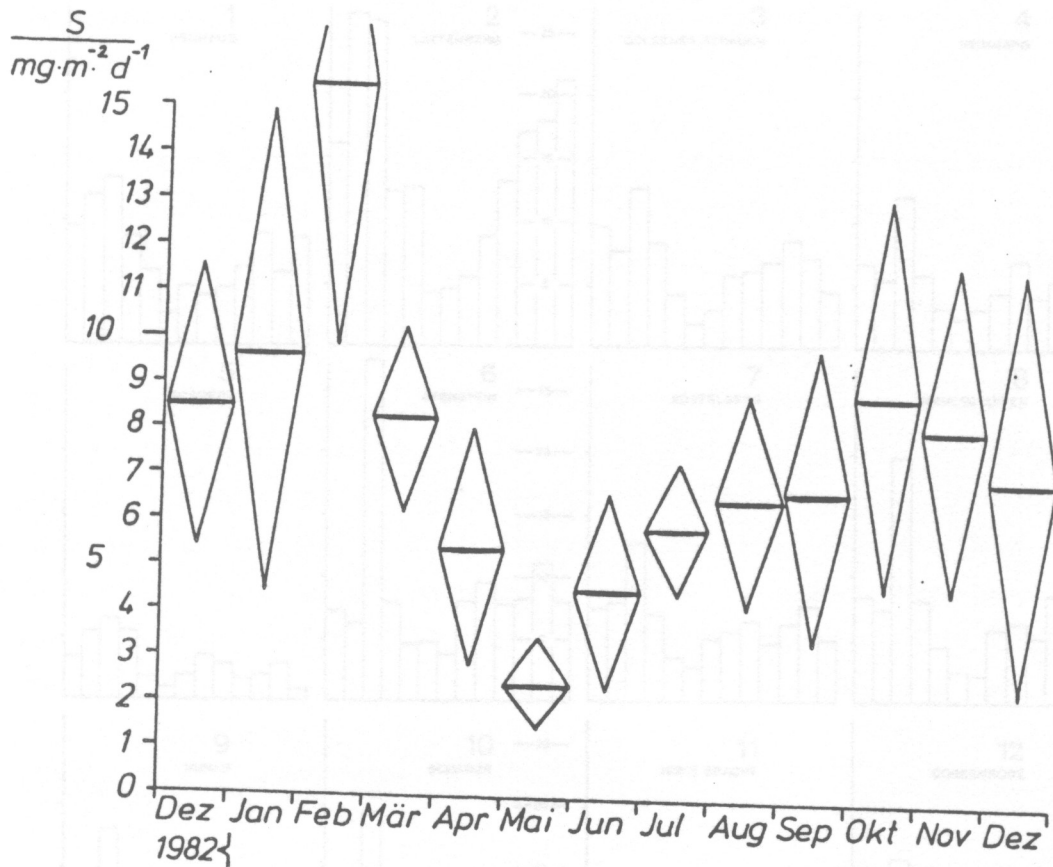


Abb. 22 Monatliche Gebietsmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten mit ihren Standardabweichungen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Abb. 23 Monatswerte der Schwefel-Immissionsraten an den Stationen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Vergleich der Schwefel-Immissionsraten der Stationen 2 und 3 mit denen der Stationen 4 und 5 zeigt, dass in den Wintermonaten bereits im Sauerland höhere Werte als in den niedrigeren Lagen erreicht werden.

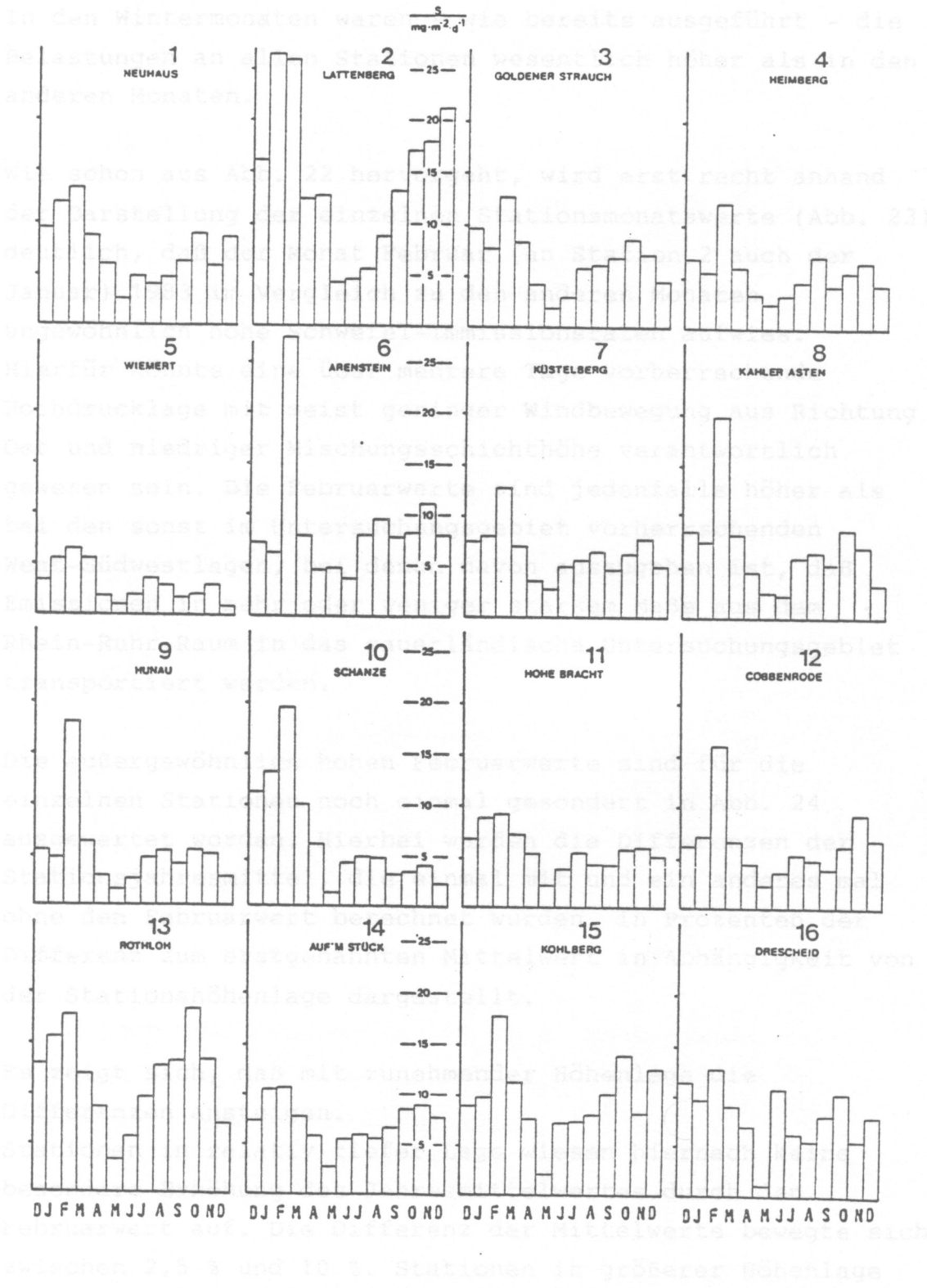


Abb. 23 Monatswerte der Schwefel-Immissionsraten an den Stationen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Vergleich der Jahresgänge der Stationen 2 und 6 mit denen der Stationen 4 und 5 zeigte).

In den Wintermonaten waren - wie bereits ausgeführt - die Belastungen an allen Stationen wesentlich höher als in den anderen Monaten.

Wie schon aus Abb. 22 hervorgeht, wird erst recht anhand der Darstellung der einzelnen Stationsmonatswerte (Abb. 23) deutlich, daß der Monat Februar (an Station 2 auch der Januar) 1983 im Vergleich zu den anderen Monaten ungewöhnlich hohe Schwefel-Immissionsraten aufwies. Hierfür könnte eine über mehrere Tage vorherrschende Hochdrucklage mit meist geringer Windbewegung aus Richtung Ost und niedriger Mischungsschichthöhe verantwortlich gewesen sein. Die Februarwerte sind jedenfalls höher als bei den sonst im Untersuchungsgebiet vorherrschenden West-Südwestlagen, bei denen davon auszugehen ist, daß Emissionen in mehr oder weniger starkem Maße aus dem Rhein-Ruhr-Raum in das sauerländische Untersuchungsgebiet transportiert werden.

Die außergewöhnlich hohen Februarwerte sind für die einzelnen Stationen noch einmal gesondert in Abb. 24 ausgewertet worden. Hierbei wurden die Differenzen der Stationsjahresmittel, die einmal mit und ein anderes mal ohne den Februarwert berechnet wurden, in Prozenten der Differenz zum erstgenannten Mittelwert in Abhängigkeit von der Stationshöhenlage dargestellt.

Es zeigt sich, daß mit zunehmender Höhenlage die Differenzen ansteigen.

Stationen in relativ tiefer Lage wiesen hiernach keine besondere Erhöhung des Jahresmittelwertes durch den Februarwert auf. Die Differenz der Mittelwerte bewegte sich zwischen 2,5 % und 10 %. Stationen in größerer Höhenlage unterlagen dagegen in ihren Jahresmittelwerten einer

wesentlich stärkeren Beeinflussung durch den Februarwert. Die Stationen der beiden verglichenen Jahresmittelwerte stiegen bei einzelnen Stationen auf annähernd 20 % an. Darüber hinaus fiel auf, daß es insbesondere die hochgelegenen und am Ostrand des Untersuchungsgebietes aufgestellten Stationsstandorte (mit E gekennzeichnet) bzw. die zur Teil in geringeren Höhen mehr westlich an, die jedoch exponiert eingeregneten Standorte (mit e gekennzeichnet) waren, die höhere Differenzwerte aufwiesen. Diese Ergebnisse könnten darauf hindeuten, daß die relativ hohen Standortwerte der Schwefel-Immissionsraten im Februar 1983 von Emissionen zurückzuführen sind, die aus Quellen stammten, die außerhalb des Untersuchungsgebietes liegen, zum Beispiel aus dem Kasseler Raum und/oder den Industriaräumen der DDR und der ČSR.

Wie für die Werte der Schwefel-Immissionsraten durchgeführt, wurden die Stationsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten ebenfalls mit Hilfe der Regressionsrechnung zu den monatlichen Gebietsmittelwerten in Beziehung gesetzt (Tab. 6). Bis auf drei Ausnahmen lagen die Stationsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten ebenfalls in Beziehung zu den monatlichen Gebietsmittelwerten. Der Jahresgang fand sich somit an fast allen Meßstellen wieder.

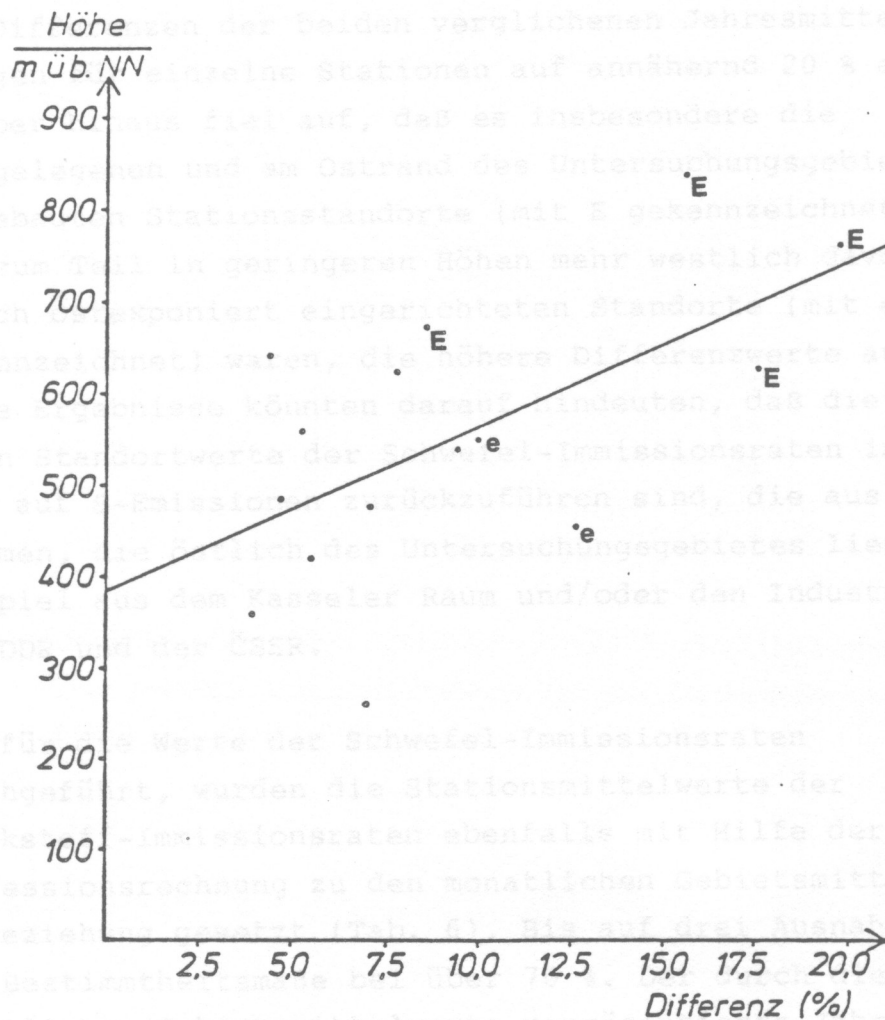


Abb. 24 Differenzen der Stationsmittelwerte der Schwefel-Immissionsraten ($\bar{x}_{12/82 \text{ bis } 12/83} - \bar{x}_{12/82 \text{ bis } 12/83 \text{ ohne } 2/83}$) im Sauerland in Abhängigkeit von der Stationshöhenlage

Sauerlandwerte lag bei 1,3 : 1, d.h. der saisonbedingte Unterschied ist nicht so groß wie beim Schwefel. Zudem doppelt so hohe Jahreszeitwerte, wie sie im Sauerland gemessen wurden, ergaben sich für die Meßstelle in Bochum. Auch hier wurde im Sommer der höchste Wert

wesentlich stärkeren Beeinflussung durch den Februarwert. Die Differenzen der beiden verglichenen Jahresmittelwerte stiegen für einzelne Stationen auf annähernd 20 % an. Darüber hinaus fiel auf, daß es insbesondere die hochgelegenen und am Ostrand des Untersuchungsgebietes aufgebauten Stationsstandorte (mit E gekennzeichnet) bzw. die zum Teil in geringeren Höhen mehr westlich davon, jedoch ostexponierten eingerichteten Standorte (mit e gekennzeichnet) waren, die höhere Differenzwerte aufwiesen. Diese Ergebnisse könnten darauf hindeuten, daß die relativ hohen Standortwerte der Schwefel-Immissionsraten im Februar 1983 auf S-Emissionen zurückzuführen sind, die aus Quellen stammen, die östlich des Untersuchungsgebietes liegen, zum Beispiel aus dem Kasseler Raum und/oder den Industrieräumen der DDR und der ČSSR.

Wie für die Werte der Schwefel-Immissionsraten durchgeführt, wurden die Stationsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten ebenfalls mit Hilfe der Regressionsrechnung zu den monatlichen Gebietsmittelwerten in Beziehung gesetzt (Tab. 6). Bis auf drei Ausnahmen lagen die Bestimmtheitsmaße bei über 70 %. Der durch die monatlichen Gebietsmittelwerte repräsentierte Jahresgang fand sich somit an fast allen Meßstellen wieder.

Der Jahresgang der Gebietsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten ist in Abb. 25 dargestellt. Hiernach traten im Untersuchungsgebiet im Sommer die höchsten ($0,41 \text{ mg N/m}^2 \text{ d}$) und im Herbst und Winter die niedrigsten Werte ($0,22 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) auf. Das Verhältnis zwischen Maximum- und Minimum der Sauerlandwerte lag bei $1,9 : 1$, d.h. der saisonbedingte Unterschied ist nicht so groß wie beim Schwefel.

Rund doppelt so hohe Jahreszeitenwerte, wie sie im Sauerland gemessen wurden, ergaben sich für die Meßstelle in Bochum. Auch hier wurde im Sommer der höchste Wert

Winter Frühling Sommer Herbst Winter

Station-Nr.	r	y = ax + b	r ²
1	0,886	y = 0,838x + 11,9	78,5%
2	0,700	y = 0,829x + 24,7	49,0%
3	0,945	y = 1,129x - 19,5	89,3%
4	0,930	y = 1,030x - 22,4	86,5%
5 ¹⁾			
6	0,896	y = 1,307x - 7,4	80,3%
7	0,900	y = 0,882x + 14,5	81,0%
8	0,872	y = 1,268x - 28,9	76,1%
9	0,860	y = 0,771x - 10,7	74,0%
11 ¹⁾			
12	0,791	y = 1,015x - 1,0	62,6%
13	0,865	y = 2,184x - 51,3	74,8%
14	0,846	y = 0,743x + 13,8	71,6%
15	0,853	y = 1,171x + 2,6	72,8%
16	0,624	y = 0,813x + 24,9	38,9%

1) Meßausfälle an den Stationen 5, 10 und 11

Tab. 6 Korrelationskoeffizienten, Regressionsformeln und Bestimmtheitsmaße für den Zusammenhang zwischen Gebietsmittelwert (x) und Stationsmittelwert (y) der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland

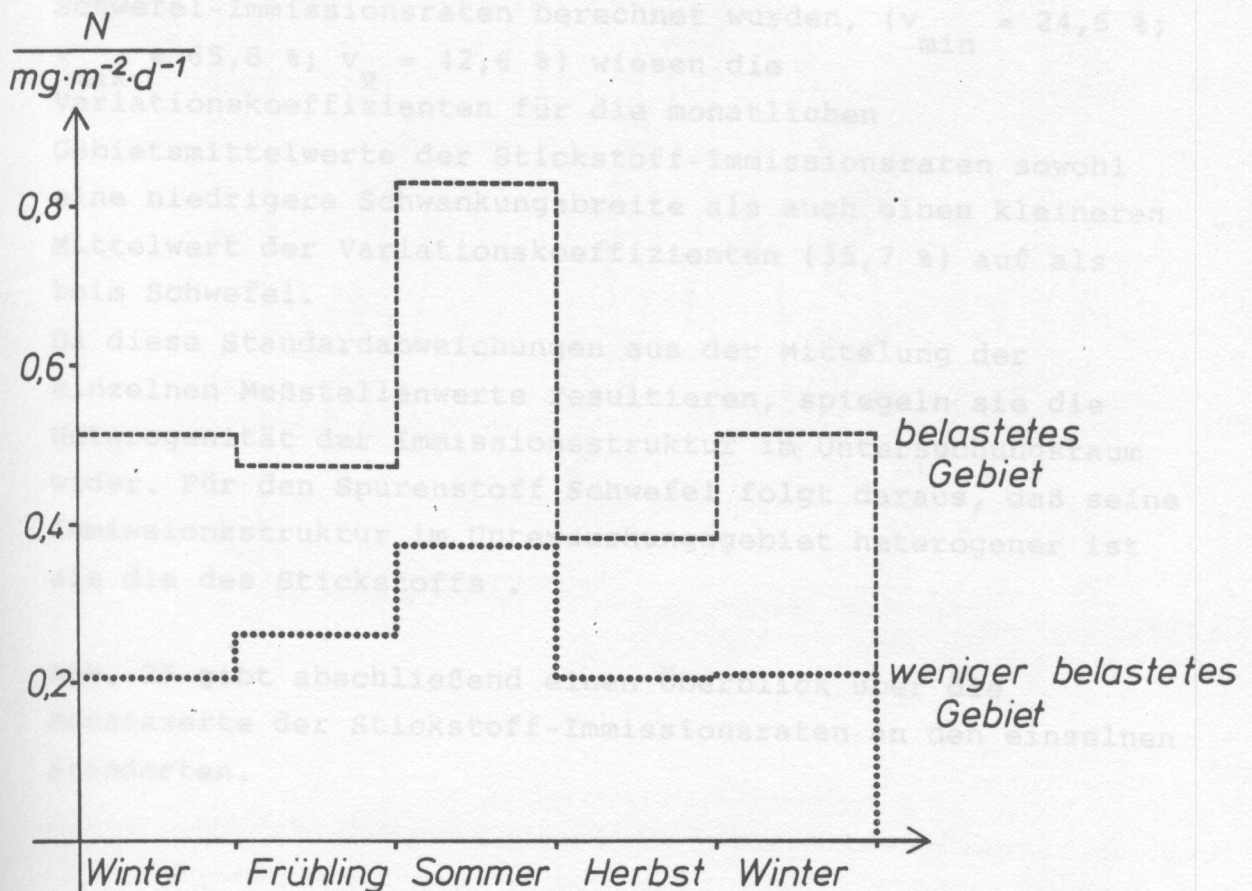


Abb. 25 Jahreszeitenmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)

erreicht, im Herbst der niedrigste; Maximum und Minimum im Jahresgang verhielten sich wie 2,2 : 1. Allerdings ließen sich in Bochum für den Winter im Vergleich zum Herbst höhere Werte ermitteln als es für die Gebietsmittel im Sauerland beobachtet werden konnte (vergl. hierzu auch Tab. 7).

Ein mittlerer Jahresgang der Stickstoff-Immissionsraten wurde anhand der aus den Stationsmittelwerten berechneten Gebietsmittelwerte in Abb. 26 dargestellt.

Im August wurde die höchste Immissionsrate für Stickstoff mit $0,48 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ erreicht, im November der niedrigste Wert mit $0,13 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$.

Im März traten die niedrigsten Variationskoeffizienten auf (18,3 %), d.h., daß die Stationsmittelwerte in diesem Monat nur außerordentlich geringe Unterschiede aufwiesen. Für den September wurden die größten Schwankungsbreiten berechnet (49,3 %).

Im Vergleich zu den entsprechenden Werten der prozentualen Standardabweichungen, die für die Monatsmittel der Schwefel-Immissionsraten berechnet wurden, ($v_{\min} = 24,6 \%$; $v_{\max} = 65,8 \%$; $v_{\bar{x}} = 42,6 \%$) wiesen die Variationskoeffizienten für die monatlichen Gebietsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten sowohl eine niedrigere Schwankungsbreite als auch einen kleineren Mittelwert der Variationskoeffizienten (35,7 %) auf als beim Schwefel.

Da diese Standardabweichungen aus der Mittelung der einzelnen Meßstellenwerte resultieren, spiegeln sie die Heterogenität der Immissionsstruktur im Untersuchungsraum wider. Für den Spurenstoff Schwefel folgt daraus, daß seine Immissionsstruktur im Untersuchungsgebiet heterogener ist als die des Stickstoffs.

Abb. 27 gibt abschließend einen Überblick über die Monatswerte der Stickstoff-Immissionsraten an den einzelnen Standorten.

Abb. 26 Monatliche Gebietsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten mit ihren Standardabweichungen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Station-Nr.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	11	12	13	14	15	16	Gebietsmittel	Bo
Winter	0,23	0,30	0,20	0,17	--- ¹⁾	0,29	0,22	0,22	0,18	0,17	0,23	0,34	0,17	0,28	0,21	0,22	0,58
Frühjahr	0,29	0,35	0,28	0,25	0,13	0,36	0,30	0,30	0,20	0,28	0,28	0,39	0,24	0,34	0,32	0,29	0,53
Sommer	0,39	0,35	0,41	0,40	0,13	0,49	0,42	0,43	0,28	0,39	0,44	0,78	0,37	0,49	0,41	0,41	0,94
Herbst	0,15	0,18	0,22	0,15	--- ¹⁾	0,29	0,20	0,24	0,11 ²⁾	0,17	0,17	0,53	0,19	0,26	0,22	0,22	0,42

1) Wertausfall, da wahrscheinlich Werte unterhalb der Nachweisgrenze

2) Wertausfall (s.o.): nur ein Wert fehlt

Tab. 7 Jahreszeitenmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten an den Stationen des Sauerlandes und an der Station Bochum (12/1982 - 12/1983)

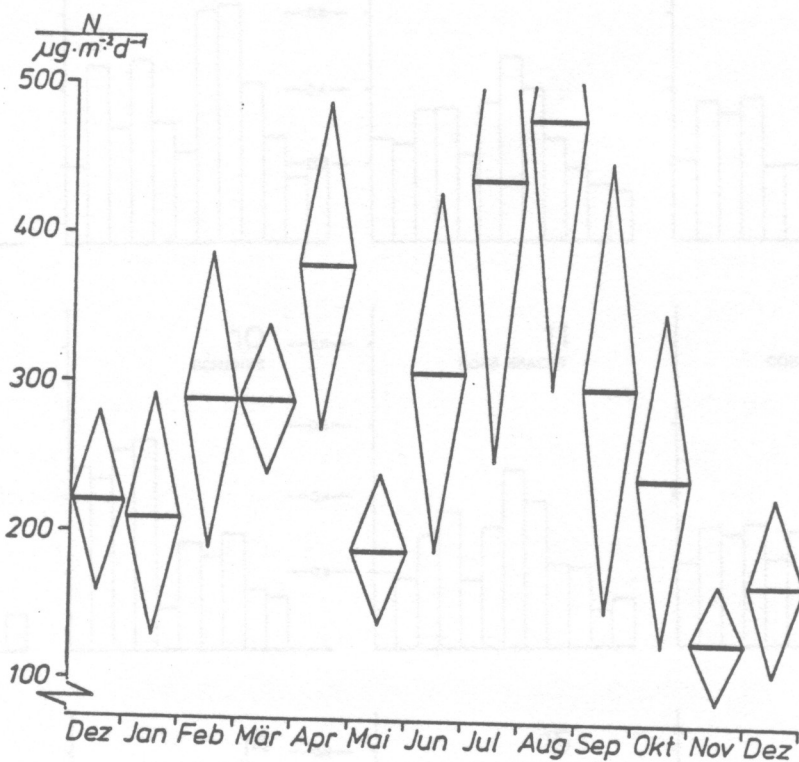
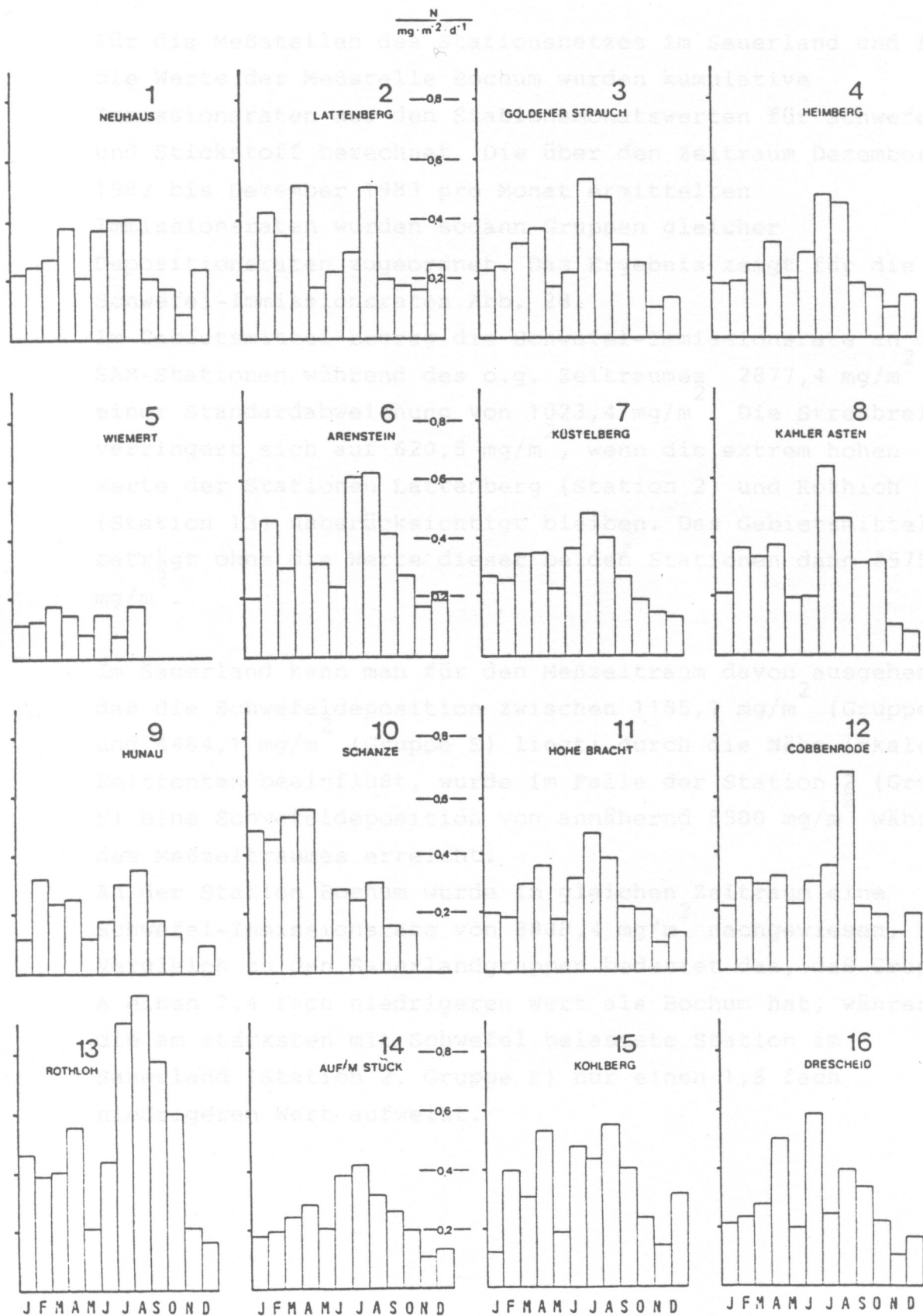


Abb. 26 Monatliche Gebietsmittelwerte der Stickstoff-Immissionsraten mit ihren Standardabweichungen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Abb. 27 Monatswerte der Stickstoff-Immissionsraten an den Stationen im Sauerland (1/1983 - 12/1983)



2.3.3 Kumulative Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten

Für die Meßstellen des Stationsnetzes im Sauerland und für die Werte der Meßstelle Bochum wurden kumulative Immissionsraten aus den Stationsmonatswerten für Schwefel und Stickstoff berechnet. Die über den Zeitraum Dezember 1982 bis Dezember 1983 pro Monat ermittelten Immissionsraten wurden sodann Gruppen gleicher Depositionsraten zugeordnet. Das Ergebnis zeigt für die Schwefel-Immissionsraten Abb. 28.

Im Gebietsmittel betrug die Schwefel-Immissionsrate an den SAM-Stationen während des o.g. Zeitraumes $2877,4 \text{ mg/m}^2$ mit einer Standardabweichung von $1023,4 \text{ mg/m}^2$. Die Streubreite verringert sich auf $620,5 \text{ mg/m}^2$, wenn die extrem hohen Werte der Stationen Lattenberg (Station 2) und Rothloh (Station 13) unberücksichtigt bleiben. Das Gebietsmittel beträgt ohne die Werte dieser beiden Stationen dann $2575,8 \text{ mg/m}^2$.

Im Sauerland kann man für den Meßzeitraum davon ausgehen, daß die Schwefeldeposition zwischen $1185,1 \text{ mg/m}^2$ (Gruppe A) und $4484,1 \text{ mg/m}^2$ (Gruppe E) liegt; durch die Nähe lokaler Emittenten beeinflusst, wurde im Falle der Station 2 (Gruppe F) eine Schwefeldeposition von annähernd 5500 mg/m^2 während des Meßzeitraumes erreicht.

An der Station Bochum wurde im gleichen Zeitraum eine Schwefel-Immissionsrate von $8808,4 \text{ mg/m}^2$ nachgewiesen, im Vergleich zu den Sauerlandgruppen bedeutet das, daß Gruppe A einen 7,4 fach niedrigeren Wert als Bochum hat, während die am stärksten mit Schwefel belastete Station im Sauerland (Station 2, Gruppe F) nur einen 1,6 fach niedrigeren Wert aufweist.

In dem einen oder anderen Falle lassen sich eventuell Zusammenhänge zur lokalen Immissionsstruktur sehen, in anderen Fällen jedoch nicht.

Die Werte der kumulativen Stickstoff-Immissionsraten für den Meßzeitraum Dezember 1982 bis November 1983 enthält Abb. 29. Vergleichbar hohe Werte an verschiedenen Stationen wurden wiederum zu Gruppen zusammengefaßt, die im Fall der Gruppe A (Station 5) $31,4 \text{ mg/m}^2$ aufwies, im Fall der Gruppe E (Station 13) dagegen $185,8 \text{ mg/m}^2$; die Werte der anderen Stationen lagen dazwischen.

Die Stickstoff-Immissionsrate für Bochum betrug $227,8 \text{ mg/m}^2$; sie war damit um 7,2 mal höher als der niedrigste und nur um 1,2 mal höher als der höchste Sauerlandwert.

Aus dem Vergleich der Gruppen, denen die einzelnen Stationsmittelwerte zugeordnet wurden, zeigt sich die unterschiedliche räumliche Belastung durch die beiden Spurenstoffe. (Für die Gruppe B wurde zum besseren Vergleich der Gruppeneinteilung bei den Stickstoff-Immissionsraten eine Differenzierung in die Gruppen B1 und B2 vorgenommen).

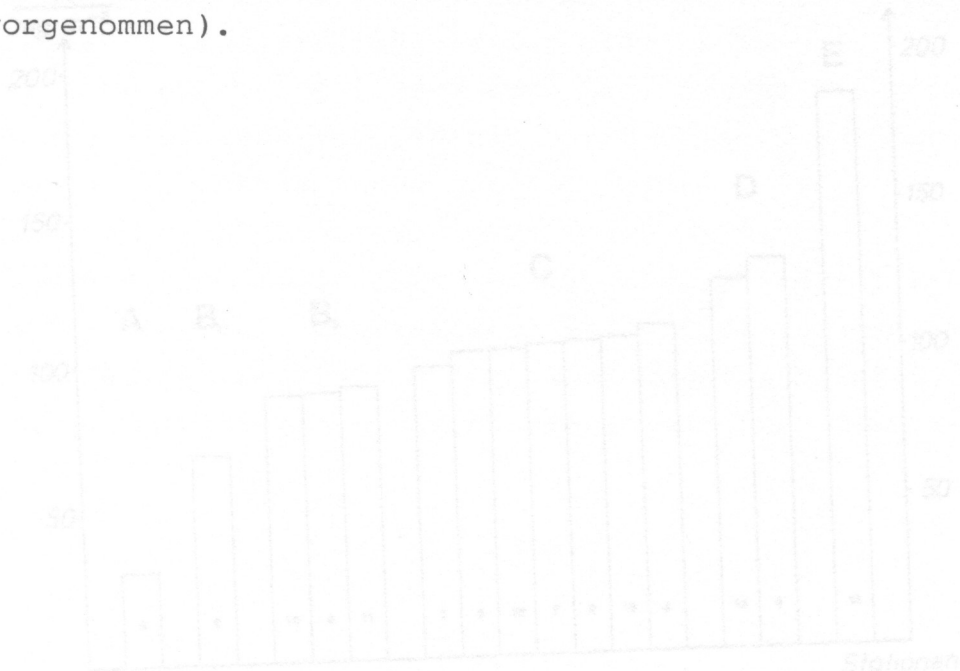


Abb. 29 Kumulative Stickstoff-Immissionsraten für Stationsgruppen im Sauerland (12/1982 - 11/1983)

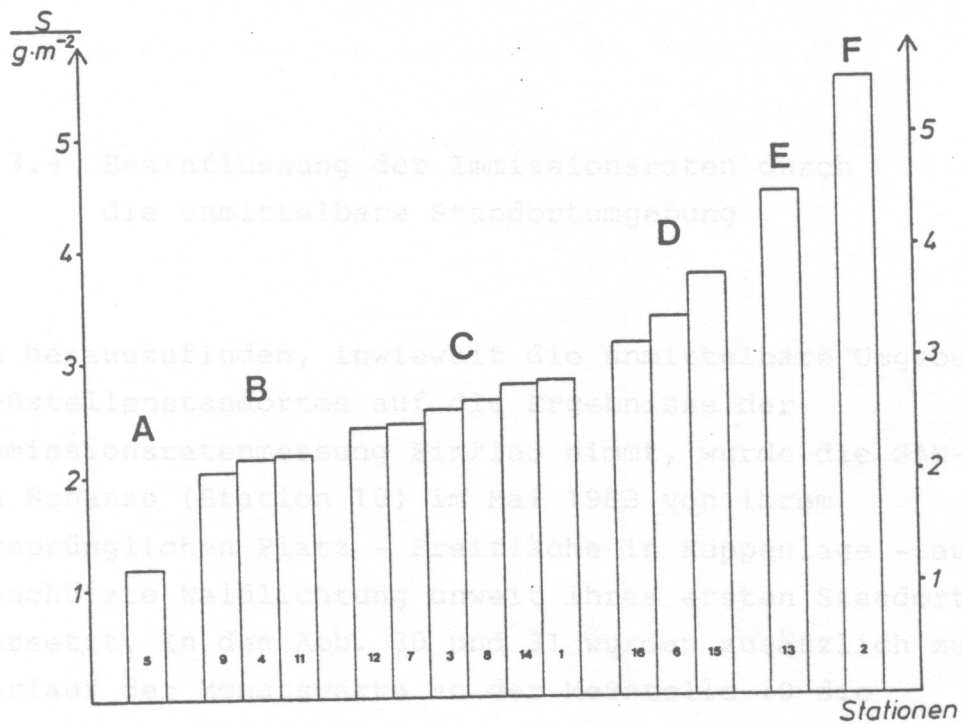


Abb. 28 Kumulative Schwefel-Immissionsraten für Stationsgruppen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

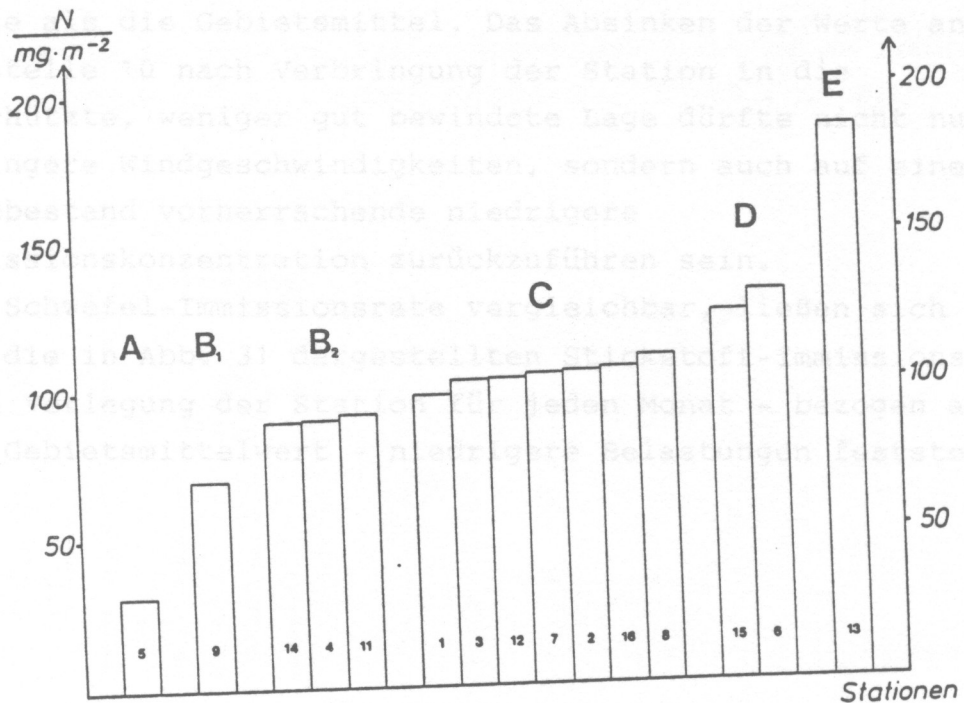


Abb. 29 Kumulative Stickstoff-Immissionsraten für Stationsgruppen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Abb. 10 Änderung der Schwefel-Immissionsrate nach Verlegung der Station 10

2.3.4 Beeinflussung der Immissionsraten durch die unmittelbare Standortumgebung

Um herauszufinden, inwieweit die unmittelbare Umgebung des Meßstellenstandortes auf die Ergebnisse der Immissionsratenmessung Einfluß nimmt, wurde die SAM-Station in Schanze (Station 10) im Mai 1983 von ihrem ursprünglichen Platz - Freifläche in Kuppenlage - auf eine geschützte Waldlichtung unweit ihres ersten Standortes versetzt. In den Abb. 30 und 31 wurden zusätzlich zum Verlauf der Monatswerte an der Meßstelle 10 die Gebietsmittelwerte eingetragen. Für den Zeitraum Dezember 1982 bis April 1983 läßt sich erkennen, daß die Monatswerte immer höher waren als die Gebietsmittelwerte; dies wird auf die bewindete Freiflächenlage des ursprünglichen Standortes zurückgeführt; mit der Verlegung der Station in die von Bäumen umgebene Lichtung (Mai - Dezember 1983) ergaben sich bis zum Ende des Meßzeitraumes für jeden Monat niedrigere Werte als die Gebietsmittel. Das Absinken der Werte an der Meßstelle 10 nach Verbringung der Station in die geschützte, weniger gut bewindete Lage dürfte nicht nur auf geringere Windgeschwindigkeiten, sondern auch auf eine im Waldbestand vorherrschende niedrigere Immissionskonzentration zurückzuführen sein. Der Schwefel-Immissionsrate vergleichbar, ließen sich auch für die in Abb. 31 dargestellten Stickstoff-Immissionsraten nach Verlegung der Station für jeden Monat - bezogen auf den Gebietsmittelwert - niedrigere Belastungen feststellen.

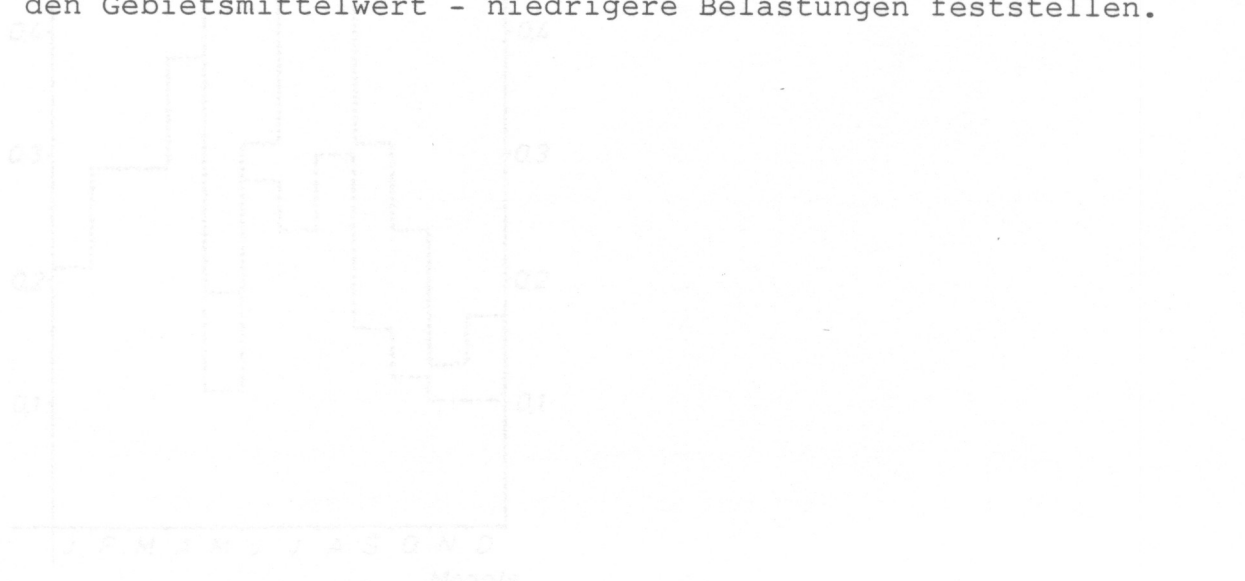


Abb. 30 Änderung der Schwefel-Immissionsrate nach Verlegung der Station 10

(Freifläche: 12/1982 - 4/1983; Waldbestand: 5/1983 - 12/1983)

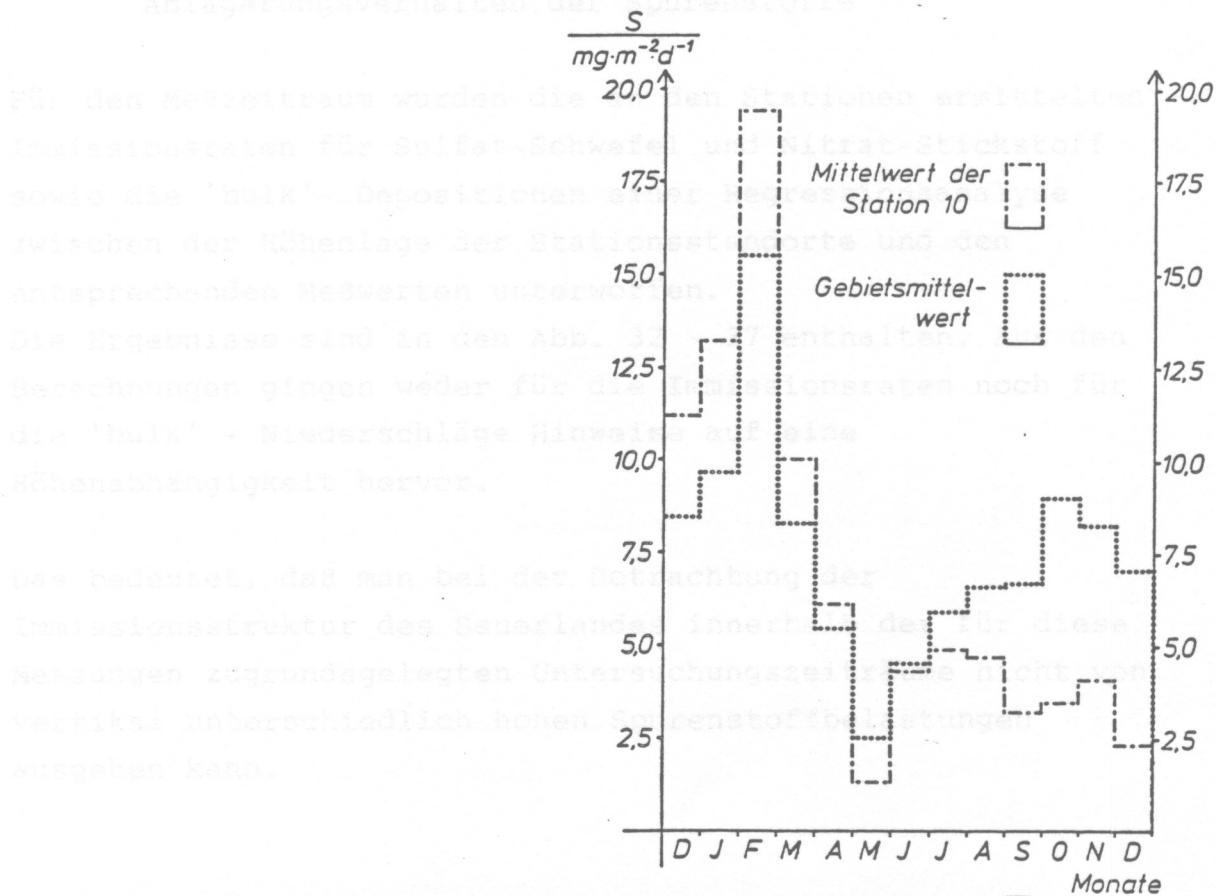


Abb. 31 Änderung der Stickstoff-Immissionsrate nach Verlegung der Station 10
(Freifläche: 12/1982 - 4/1983; Waldbestand: 5/1983 - 12/1983)

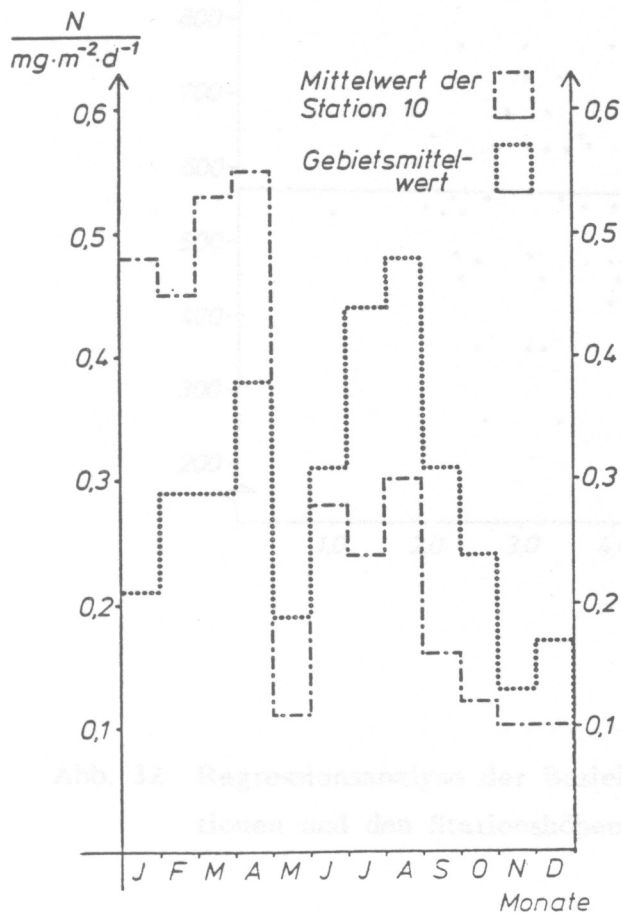


Abb. 32 Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den SO_4^{2-} -S- bulk -Depositionen und den Stationsmessungen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)

2.3.5 Zusammenhang zwischen Standorthöhenlage und Ablagerungsverhalten der Spurenstoffe

Für den Meßzeitraum wurden die an den Stationen ermittelten Immissionsraten für Sulfat-Schwefel und Nitrat-Stickstoff sowie die 'bulk'- Depositionen einer Regressionsanalyse zwischen der Höhenlage der Stationsstandorte und den entsprechenden Meßwerten unterworfen.

Die Ergebnisse sind in den Abb. 32 - 37 enthalten. Aus den Berechnungen gingen weder für die Immissionsraten noch für die 'bulk' - Niederschläge Hinweise auf eine Höhenabhängigkeit hervor.

Das bedeutet, daß man bei der Betrachtung der Immissionsstruktur des Sauerlandes innerhalb der für diese Messungen zugrundegelegten Untersuchungszeiträume nicht von vertikal unterschiedlich hohen Spurenstoffbelastungen ausgehen kann.

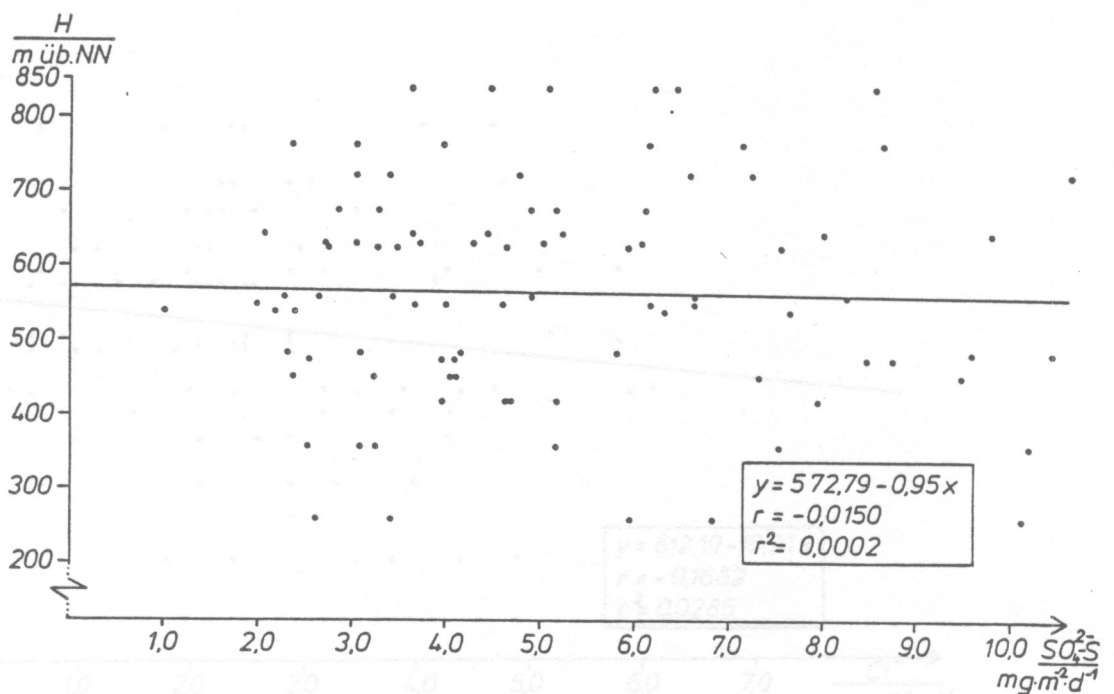


Abb. 32 Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den SO₄²⁻-S-"bulk"-Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)

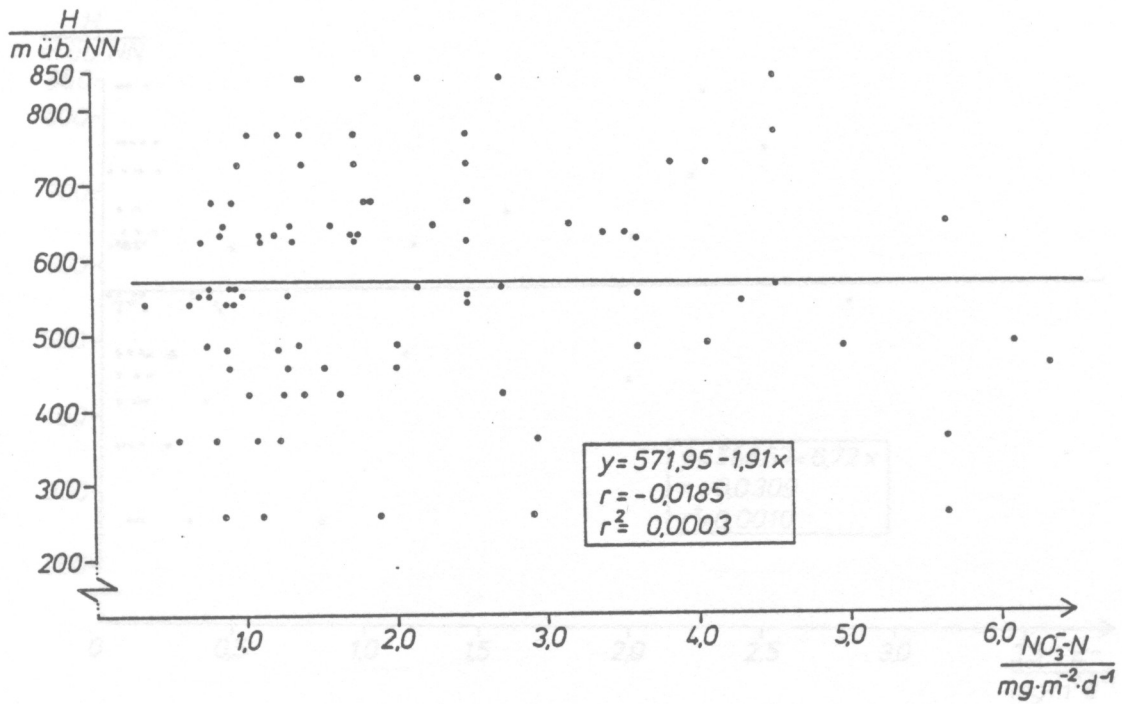


Abb. 33 Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den NO₃⁻-N - "bulk" - Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)

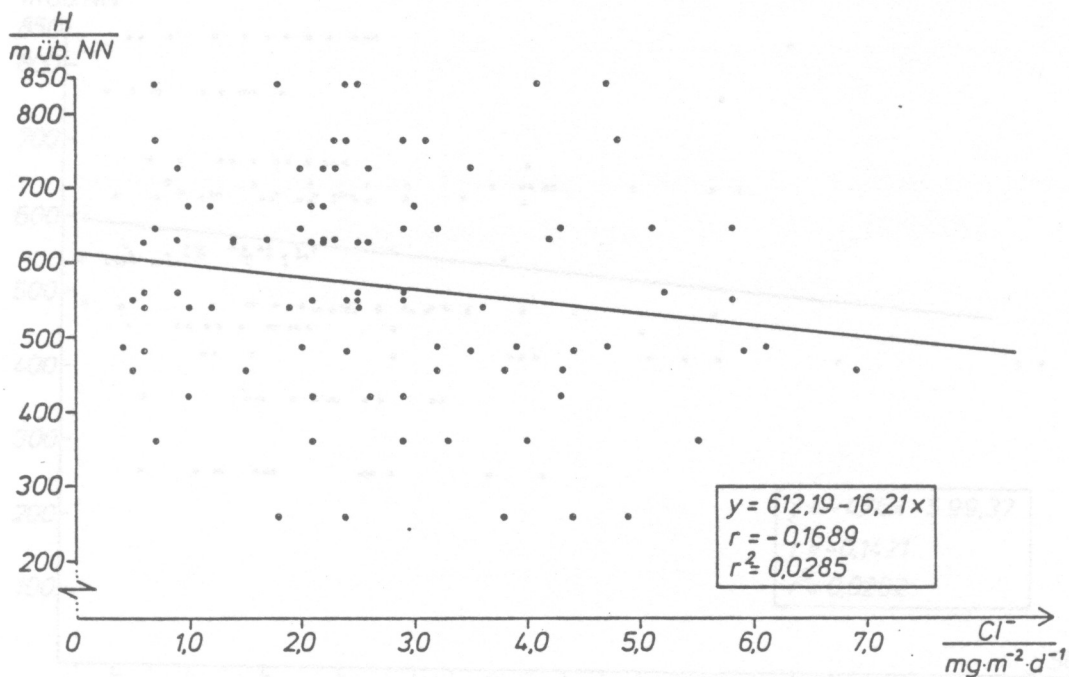


Abb. 34 Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen Cl⁻ - "bulk" - Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)

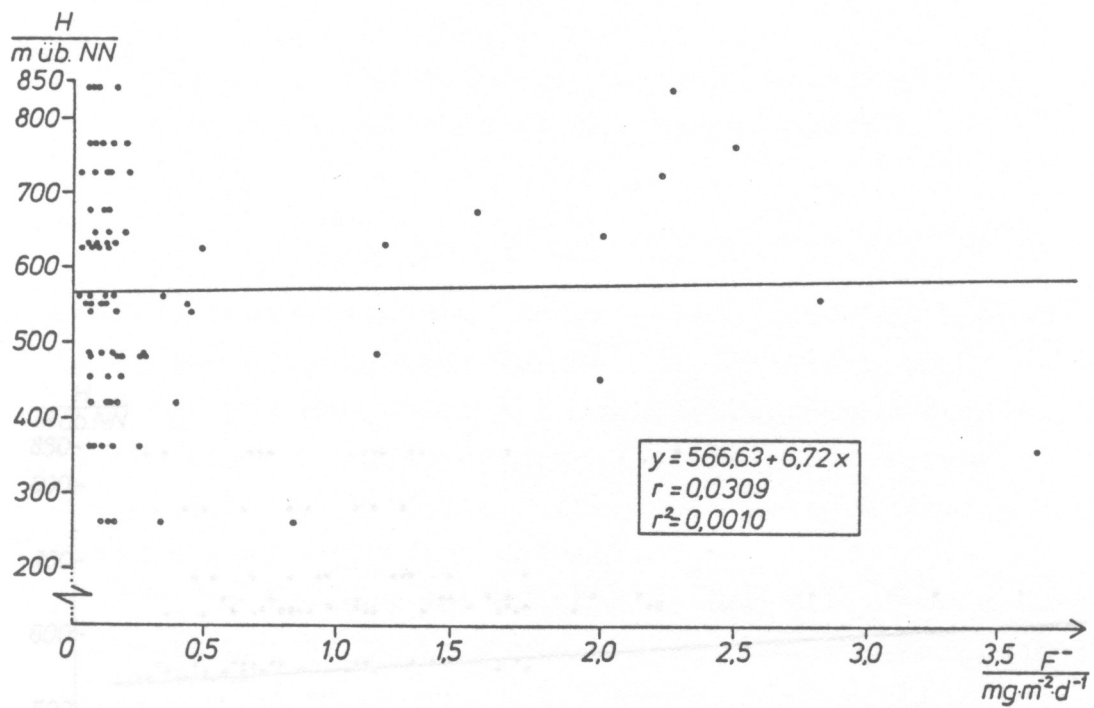


Abb. 35 Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den F^- - "bulk" - Depositionen und den Stationshöhenlagen im Sauerland (5/1983 - 10/1983)

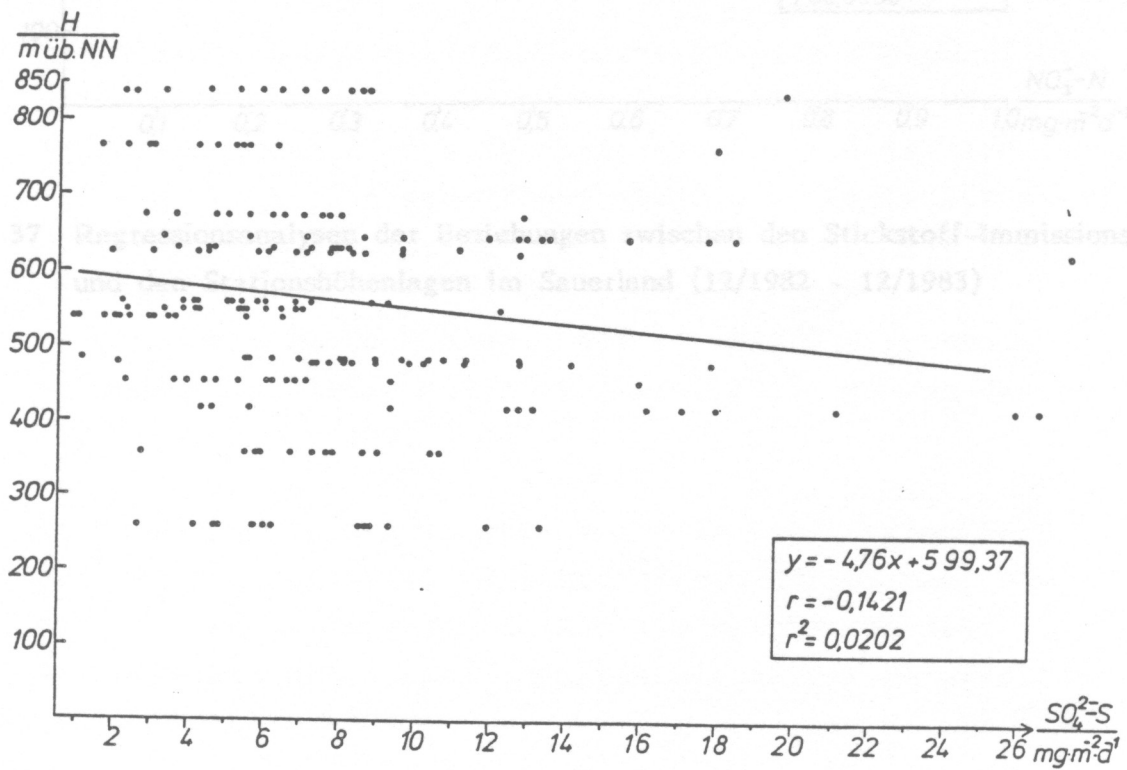


Abb. 36 Regressionsanalyse der Beziehungen zwischen den Schwefel-Immissionsraten und den Stationshöhenlagen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

2.4 Spurenstoffkonzentrationen der 'wet-only'-Niederschläge (Messstelle: Kahler Asten)

An der Messstelle Kahler Asten (845 m ü.NN, Rothaargebirge) im östlichen Sauerland wurden für den Zeitraum November 1982 bis November 1983 aus den zur Verfügung stehenden

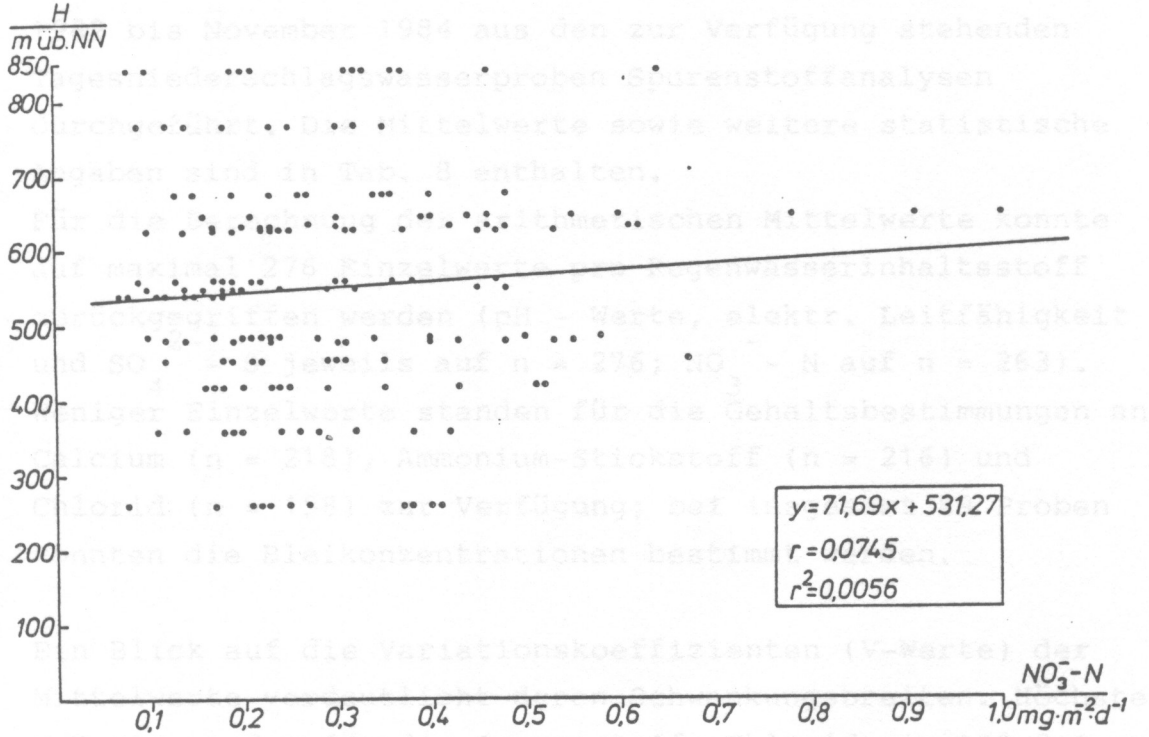


Abb. 37 Regressionsanalysen der Beziehungen zwischen den Stickstoff-Immissionsraten und den Stationshöhenlagen im Sauerland (12/1982 - 12/1983)

Stickstoffkonzentrationen (74,5 %). Die geringsten Schwankungen wiesen Nitrat-Schwefel (58,1 %) und der pH-Wert mit 11,3 % auf.

Im Gegensatz zu den relativ hohen Variabilitäten der anderen Spurenstoffe, lässt sich der niedrige Wert von $30 \frac{mg}{m^2 \cdot d}$ auf eine einheitlichere Anreicherung des Regenwassers mit diesem Inhaltsstoff an der Bergstation Kahler Asten schließen.

Die gewichteten Mittelwerte wurden in Tab. 3 zusammengestellt.

2.4 Spurenstoffkonzentrationen der 'wet-only'- Niederschläge (Meßstelle: Kahler Asten)

An der Meßstelle Kahler Asten (845 m ü.NN, Rothaargebirge) im östlichen Sauerland wurden für den Meßzeitraum November 1982 bis November 1984 aus den zur Verfügung stehenden Tagesniederschlagswasserproben Spurenstoffanalysen durchgeführt. Die Mittelwerte sowie weitere statistische Angaben sind in Tab. 8 enthalten.

Für die Berechnung der arithmetischen Mittelwerte konnte auf maximal 276 Einzelwerte pro Regenwasserinhaltsstoff zurückgegriffen werden (pH - Werte, elektr. Leitfähigkeit und SO_4^{2-} - S jeweils auf $n = 276$; NO_3^- - N auf $n = 263$). Weniger Einzelwerte standen für die Gehaltsbestimmungen an Calcium ($n = 218$), Ammonium-Stickstoff ($n = 216$) und Chlorid ($n = 158$) zur Verfügung; bei insgesamt 89 Proben konnten die Bleikonzentrationen bestimmt werden.

Ein Blick auf die Variationskoeffizienten (V-Werte) der Mittelwerte verdeutlicht deren Schwankungsbreiten. Höchste V-Werte wurden für die Spurenstoffe Chlorid mit 128,2 % und Calcium mit 97,7 % errechnet; niedrigere Werte für die elektrische Leitfähigkeit (66,1 %), H^+ -Ionen (74,2 %), die Bleigehalte (74,4 %) und die Ammonium - Stickstoffkonzentrationen (74,5 %). Die geringsten Schwankungen wiesen Sulfat-Schwefel (58,1 %) und der pH - Wert mit 13,4 % auf.

Im Gegensatz zu den relativ hohen Variabilitäten der anderen Spurenstoffe, läßt sich der niedrige Wert von SO_4^{2-} - S auf eine einheitlichere Anreicherung des Regenwassers mit diesem Inhaltsstoff an der Bergstation Kahler Asten schließen.

Die gewichteten Mittelwerte wurden in Tab. 9 zusammengestellt.

Tab. 8 Mittelwerte der "wet-only" - Spurenstoffkonzentrationen (in mg · l⁻¹), pH-Werte und elektrische Leitfähigkeit (in µS · cm⁻¹) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

	Arithm. Mittel	Minimum	Maximum	Amplitude	Standard- abweichung	Variabilität	Anzahl der Einzelwerte
H ⁺	0,0593	0,00022	0,501	0,5007	0,044	74,2	276
pH	4,22	3,3	6,65	3,35	0,57	13,4	276
LF	44,07	6,5	166,5	160,0	29,10	66,1	276
SO ₄ ²⁻ - S	1,82	0,27	6,31	6,04	1,06	58,1	276
NO ₃ ⁻ - N	0,61	0,06	3,28	3,22	0,47	77,8	263
NH ₄ ⁺ - N	1,11	0,24	6,75	6,51	0,82	74,5	216
Cl ⁻	1,28	0,15	12,25	12,10	1,64	128,2	158
Ca ²⁺	0,73	0,09	6,64	6,55	0,71	97,7	218
Pb ²⁺	0,019	0,001	0,117	0,116	0,0139	74,4	89

Tab. 9 Gewichtete Mittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffkonzentrationen (in mg · l⁻¹), pH-Werten und elektrischen Leitfähigkeiten (in µS · cm⁻¹) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

	pH	H ⁺	LF	SO ₄ ²⁻ - S	NO ₃ ⁻ - N	NH ₄ ⁺ - N	Cl ⁻	Ca ²⁺	Pb ²⁺
\bar{x}_{gew}	4,09	0,0804	44,380	1,607	0,531	0,938	1,098	0,615	0,018

Um Anhaltspunkte über die Verteilung der Konzentrationen zu erhalten, wurden auch diese Meßdaten einer Häufigkeitsanalyse unterworfen.

Die Auswertung zeigt, daß bei der Niederschlagsverteilung (Abb. 38) eine mit 45 % an der Gesamtzahl deutliche Häufung zwischen 3 und 9 mm/d auftritt. Etwa an 9 % der Tage wurden Werte von bis zu 3 mm erreicht; Niederschlagssummen von mehr als 24 mm traten dagegen relativ selten auf.

Die Häufigkeitsanalyse der pH - Werte (Abb. 39) weist ein Maximum mit fast 25 % an der Gesamtzahl in der Gruppe pH = 4,0 - 4,2 auf; pH - Werte unter 3,4 und solche über 5,0 wurden nur sehr selten nachgewiesen.

Die Häufigkeitsverteilung der Werte der elektr. Leitfähigkeit (Abb. 40) weist ein Maximum in der Gruppe 20 - 25 $\mu\text{S}/\text{cm}$ (mehr als 12 %) auf. Sehr niedrige Werte zwischen 5 und 10 $\mu\text{S}/\text{cm}$ wurden in nur 1,5 % der Analysen bestimmt. In etwa 15 % der Regenproben wurden Leitfähigkeitswerte erreicht, die zwischen 60 und 95 $\mu\text{S}/\text{cm}$ lagen. Für diesen Standort relativ hohe Werte von mehr als 95 $\mu\text{S}/\text{cm}$ wurden in knapp 6 % der Fälle ermittelt.

Die Sulfat-Schwefel-Konzentrationen (Abb. 41) häuften sich mit mehr als 50 % an der Gesamtzahl in der Gruppe 0,8 und 1,8 mg/l. Schwefelgehalte von bis zu 0,8 mg/l wurden in rund 25 % der Fälle gemessen, höchste Konzentrationen (zwischen 3,6 und 6,6 mg/l) wurden in etwa 3 % der Fälle beobachtet.

Mehr als 70 % aller analysierten Proben auf Nitrat-Stickstoff (Abb. 42) wiesen einen Gehalt von weniger als 0,7 mg/l auf; der Rest verteilte sich in abnehmender Häufigkeit auf die Werte 0,7 bis 3,2 mg/l.

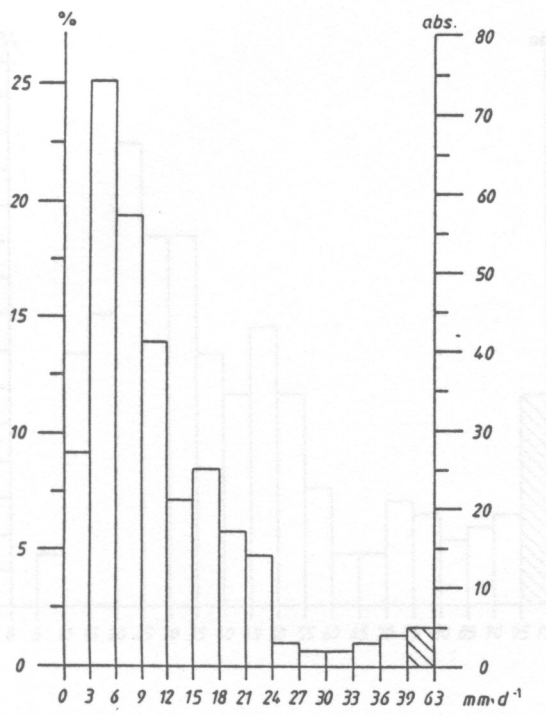


Abb. 38 Häufigkeitsverteilung der Niederschlagssummen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

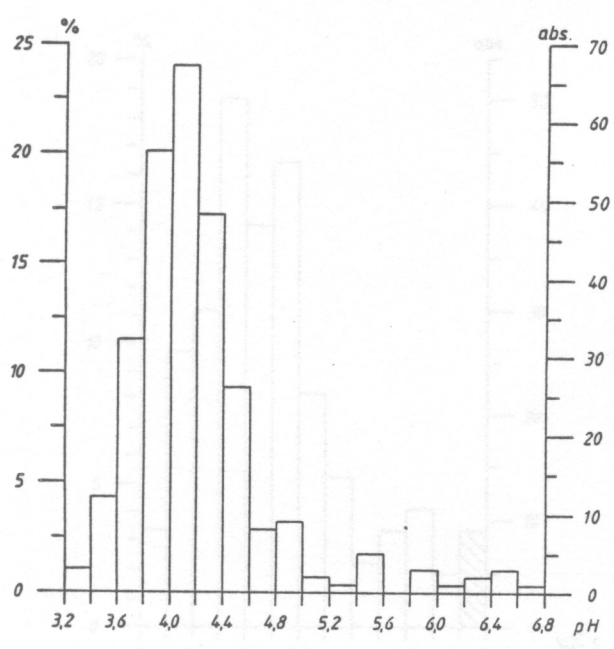


Abb. 39 Häufigkeitsverteilungen der pH-Werte von "wet-only"-Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

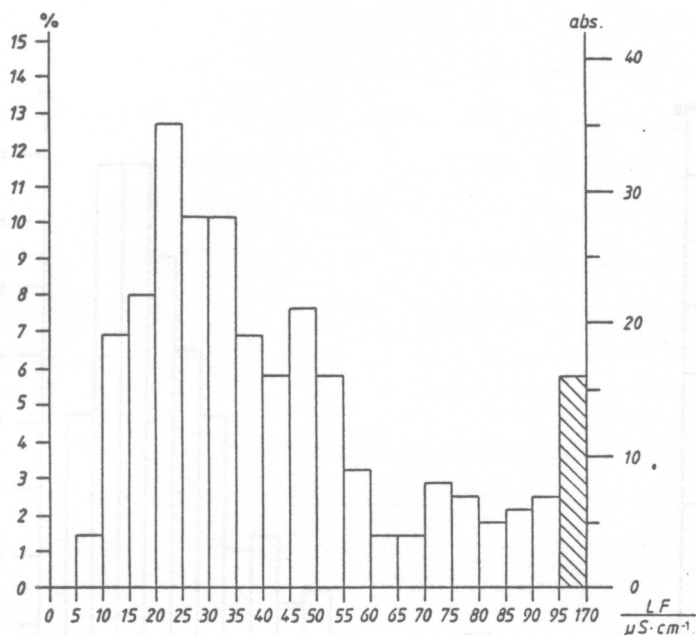


Abb. 40 Häufigkeitsverteilung der elektrischen Leitfähigkeit von "wet-only"- Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

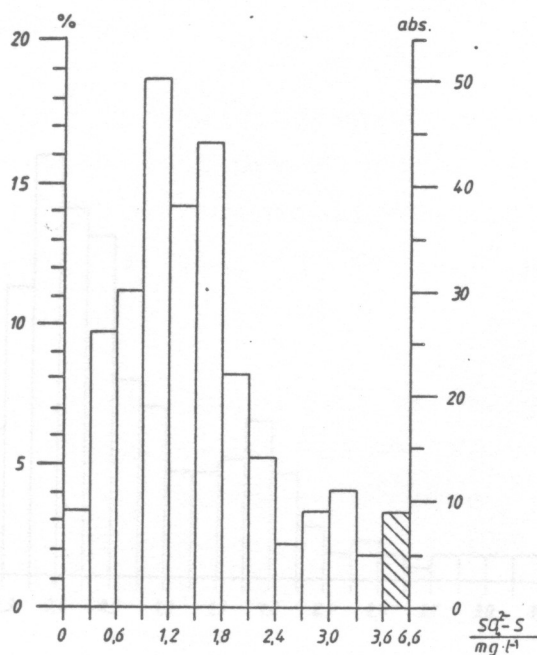


Abb. 41 Häufigkeitsverteilung der SO₄²⁻ - S - Konzentrationen von "wet-only"- Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Die Ammoniumstickstoffkonzentrationen (Abb. 43) ließen hinsichtlich ihrer Häufigkeitsverteilung eine Zweiteilung des Datenspektrums erkennen. Etwas weniger als 70 % der Werte weisen Konzentrationen von bis zu 1,2 mg/l auf, während sich ein sekundäres Verteilungsmaximum findet, das sich über den Bereich zwischen 1,2 und 1,45 mg/l erstreckt. Ein sekundäres Verteilungsmaximum findet sich darüber hinaus in der Konzentrationsklasse 1,85 - 1,90 mg/l.

Die Verteilung der Chloridkonzentrationen (Abb. 44) deutet in der angegebenen Klassenaufteilung auf unterschiedliche Konzentrationsbereiche hin: einerseits niedrige Werte (< 5 mg/l) zu über 65 % und andererseits Konzentrationen zwischen 2 und 10 mg/l zu unter 10 %. Diese Konzentrationen im Niederschlagswasser hauptsächlich durch "spray" angereichert wird und deshalb ein erhöhter Eintrag davon zu erwarten ist, wenn regenbringende Luftmassen aus dem Sektor

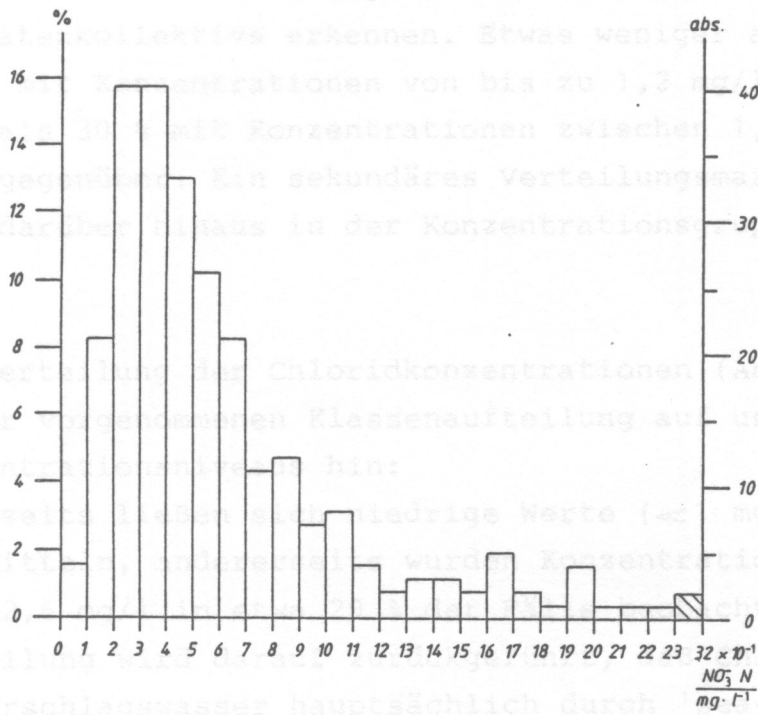
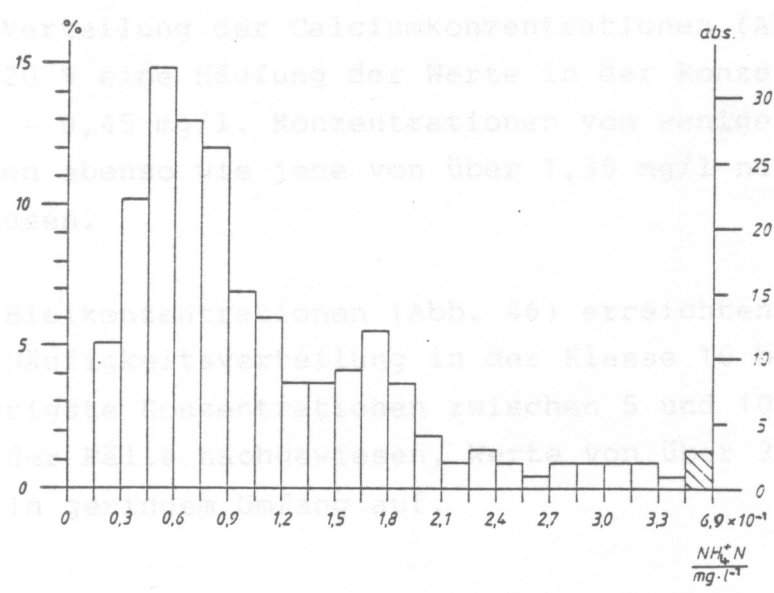


Abb. 42 Häufigkeitsverteilungen der NO₃⁻-N - Konzentrationen von "wet-only"- Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Die Verteilung der Calciumkonzentrationen (Abb. 45) zeigte eine Häufung der Werte in der Konzentrationsklasse 0,30 - 0,45 mg/l. Konzentrationen von weniger als 0,15 mg/l wurden ebenfalls häufiger als von über 1,15 mg/l gemessen.

Die Nitratkonzentrationen (Abb. 46) erreichten ein Maximum der Häufigkeit in der Klasse 1,85 - 1,90 mg/l. Niedrigere Konzentrationen zwischen 5 und 10 mg/l traten ebenfalls häufiger auf als höhere Konzentrationen.



Die Ammoniumstickstoffkonzentrationen (Abb. 43) ließen hinsichtlich ihrer Häufigkeitsverteilung eine Zweiteilung des Datenkollektivs erkennen. Etwas weniger als 70 % der Werte mit Konzentrationen von bis zu 1,2 mg/l stehen etwas mehr als 30 % mit Konzentrationen zwischen 1,2 und 3,45 mg/l gegenüber. Ein sekundäres Verteilungsmaximum findet sich darüber hinaus in der Konzentrationsgruppe 1,65 - 1,80 mg/l.

Die Verteilung der Chloridkonzentrationen (Abb. 44) deutet in der vorgenommenen Klassenaufteilung auf unterschiedliche Konzentrationsniveaus hin:

Einerseits ließen sich niedrige Werte (< 1 mg/l) zu über 65 % ermitteln, andererseits wurden Konzentrationen zwischen 2 und 12,6 mg/l in etwa 20 % der Fälle beobachtet. Diese Aufteilung wird darauf zurückgeführt, daß Chlorid im Niederschlagswasser hauptsächlich durch 'sea-spray' angereichert wird und deshalb ein erhöhter Eintrag dann zu erwarten ist, wenn regenbringende Luftmassen aus dem Sektor Nordwest vorherrschen. Niedrige Chloridkonzentrationen treten dagegen dann gehäuft auf, wenn die Niederschläge aus kontinentalen Luftmassen stammen. Hierauf wird später noch näher eingegangen.

Die Verteilung der Calciumkonzentrationen (Abb. 45) zeigte mit 20 % eine Häufung der Werte in der Konzentrationsklasse 0,30 - 0,45 mg/l. Konzentrationen von weniger als 0,15 mg/l wurden ebenso wie jene von über 1,35 mg/l nur selten gemessen.

Die Bleikonzentrationen (Abb. 46) erreichten ein Maximum der Häufigkeitsverteilung in der Klasse 10 bis 15 μ g/l. Niedrigste Konzentrationen zwischen 5 und 10 μ g/l wurden in 6 % der Fälle nachgewiesen, Werte von über 30 μ g/l traten nur in geringem Umfang auf.

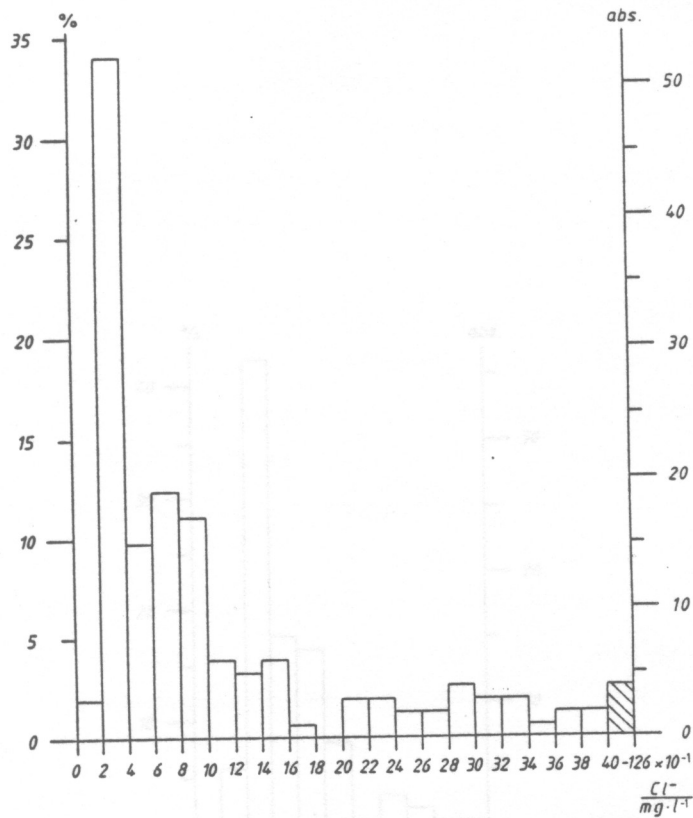


Abb. 44 Häufigkeitsverteilungen der Cl⁻-Konzentrationen von "wet-only" - Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

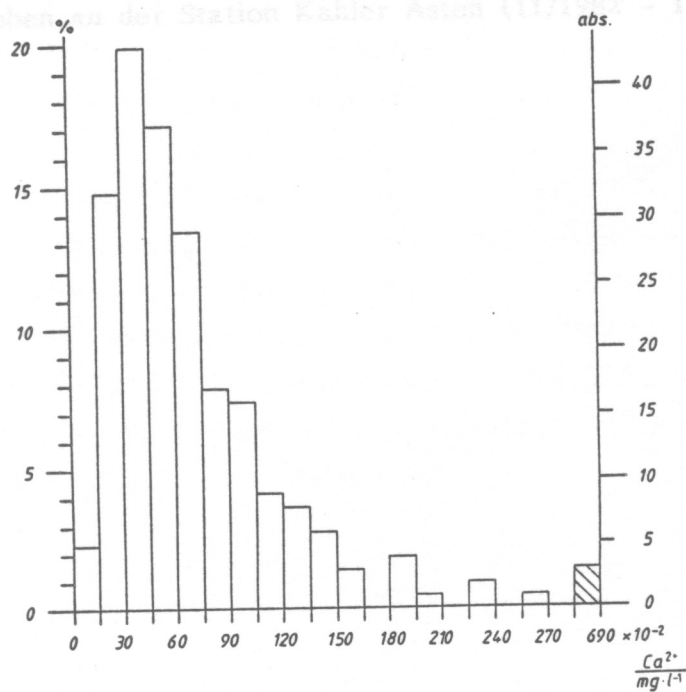


Abb. 45 Häufigkeitsverteilungen der Ca²⁺-Konzentrationen von "wet-only"- Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Die für die Konzentrationsberechnung benötigten Einzelwerte sind mit Hilfe der Konzentrationsberechnung aus den monatlichen Mittelwerten der Spurenstoffkonzentrationen sowie die Monatssummen des Niederschlags berechnet und in Abb. 47 dargestellt.

Die Monatssummen der Niederschlagsmengen waren erhöht im Januar 1983 sowie Januar 1984 und September 1984. Vergleichsweise sehr niedrige Werte traten im trockenen Sommer 1983, insbesondere während der Monate Juli und August, aber auch im Jahr 1984 im März und April auf.

Die Pb^{2+} -Konzentrationen erreichten im den Sommer- und Sommermonaten Juni bis August 1983 mit Werten zwischen 0,4 und 0,59 $\mu\text{g/l}$ im Gegensatz zu den Wintermonaten (0,04 bis 0,08 $\mu\text{g/l}$) die höchsten Konzentrationen. Im Vergleich hierzu traten im März, April und August mit 0,77 $\mu\text{g/l}$, 0,2 $\mu\text{g/l}$ und 0,1 $\mu\text{g/l}$ die höchsten Monatsmittelwerte ein.

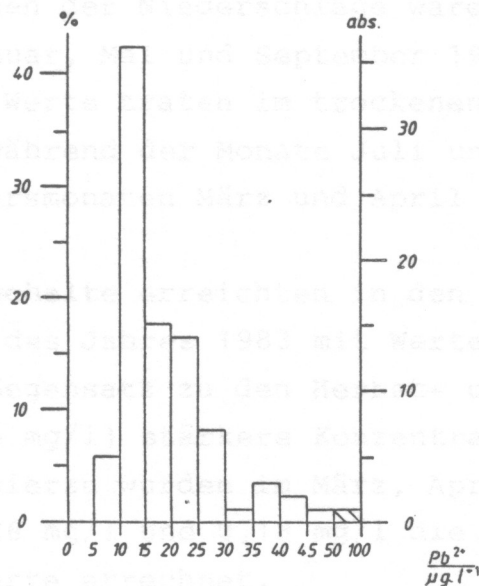


Abb. 46 Häufigkeitsverteilungen der Pb^{2+} -Konzentrationen von "wet-only" - Proben an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Die höchsten Monatsmittel der SO_2 -Konzentrationen wurden im August und April 1983 sowie im August 1984 mit Werten zwischen 1,0 $\mu\text{g/l}$ und 1,3 $\mu\text{g/l}$ festgestellt.

Einem ähnlichen Verlauf wie bei den NO_2 -Konzentrationen, erhöhte Werte ließen sich ebenfalls in den Sommermonaten Juni bis August 1983 (0,9 $\mu\text{g/l}$ bis 1,0 $\mu\text{g/l}$), aber auch im März und April 1984 mit Werten von 0,8 $\mu\text{g/l}$ und 0,7 $\mu\text{g/l}$ beobachten. Sehr niedrige Gehalte an NO_2 in den Wintermonaten waren im November 1983 und im Dezember 1984 (0,2 $\mu\text{g/l}$) zu verzeichnen.

Für den Untersuchungszeitraum wurden für die einzelnen Monate die gewichteten Mittelwerte der Spurenstoffkonzentrationen sowie die Monatssummen des Niederschlags berechnet und in Abb. 47 dargestellt.

Die Monatssummen der Niederschläge waren erhöht im Januar 1983 sowie Januar, Mai und September 1984. Vergleichsweise sehr niedrige Werte traten im trockenen Sommer 1983, insbesondere während der Monate Juli und August, aber auch in den Frühjahrsmonaten März und April 1984 auf.

Die H^+ - Ionengehalte erreichten in den Frühjahrs- und Sommermonaten des Jahres 1983 mit Werten zwischen 0,04 und 0,09 mg/l im Gegensatz zu den Herbst- und Wintermonaten (0,04 bis 0,05 mg/l) stärkere Konzentrationen. Im Vergleich hierzu wurden im März, April und August mit 0,11 mg/l, 0,26 mg/l und 0,18 mg/l die höchsten Monatsmittelwerte errechnet.

Die höchsten Monatsmittel der SO_4^{2-} - S - Konzentrationen wurden im August und April 1983 sowie im August 1984 mit über 2,0 mg/l erreicht. Relativ geringe Gehalte an Sulfat im Niederschlagswasser konnten im Dezember 1982, Februar, November 1983 sowie im Januar und Februar 1984 mit Werten zwischen 1,0 mg/l und 1,2 mg/l festgestellt werden.

Einen ähnlichen Verlauf wiesen die NO_3^- - N - Konzentrationen auf; erhöhte Werteließen sich ebenfalls in den Sommermonaten Juni bis August 1983 (0,8 mg/l bis 1,0 mg/l), aber auch im März und April 1984 mit Werten von 0,8 mg/l und 1,1 mg/l beobachten. Sehr niedrige Gehalte an NO_3^- - N im Niederschlagswasser waren im November 1983 und im Dezember 1984 (0,2 mg/l) zu verzeichnen.

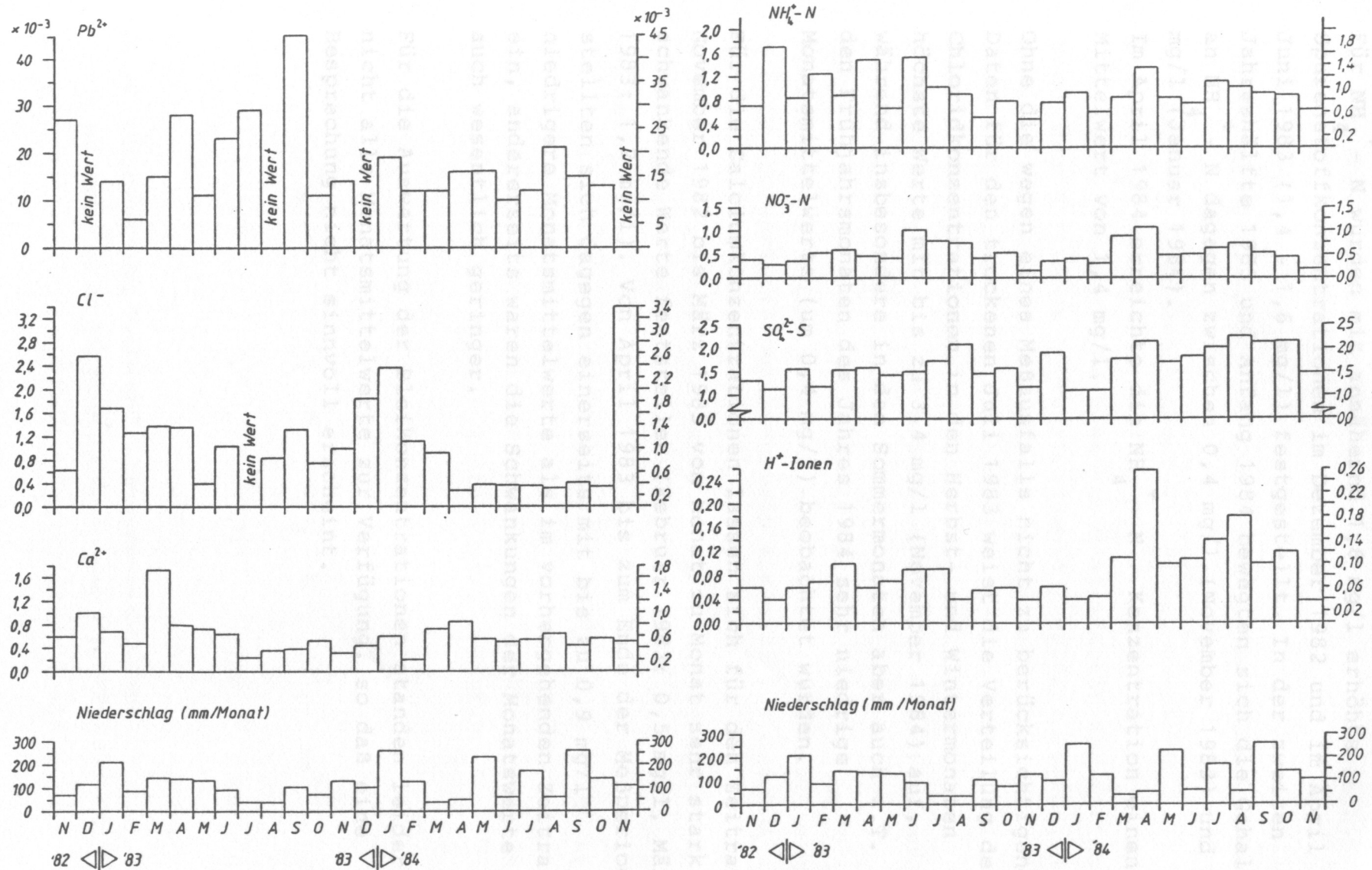


Abb. 47 Gewichtete Monatsmittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffkonzentrationen (in $mg \cdot l^{-1}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Für NH_4^+ - N wurden mit annähernd 1,6 mg/l erhöhte
Spurenstoffkonzentrationen im Dezember 1982 und im April und
Juni 1983 (1,4 - 1,6 mg/l) festgestellt. In der zweiten
Jahreshälfte 1983 und Anfang 1984 bewegten sich die Gehalte
an NH_4^+ - N dagegen zwischen 0,4 mg/l (November 1983) und 0,9
mg/l (Januar 1984).
Im April 1984 erreichte die NH_4^+ - N - Konzentration einen
Mittelwert von 1,4 mg/l.

Ohne die wegen eines Meßausfalls nicht zu berücksichtigenden
Daten für den trockenen Juli 1983 weist die Verteilung der
Chloridkonzentrationen in den Herbst- und Wintermonaten
höchste Werte mit bis zu 3,4 mg/l (November 1984) auf,
während insbesondere in den Sommermonaten aber auch z.T. in
den Frühjahrsmonaten des Jahres 1984 sehr niedrige
Monatsmittelwerte (um 0,4 mg/l) beobachtet wurden.

Für die Calciumkonzentrationen lassen sich für den Zeitraum
November 1982 bis März 1983 von Monat zu Monat sehr stark
schwankende Werte feststellen (Februar 1983: 0,5 mg/l, März
1983: 1,7 mg/l). Von April 1983 bis zum Ende der Meßperiode
stellten sich dagegen einerseits mit bis zu 0,9 mg/l,
niedrigere Monatsmittelwerte als im vorhergehenden Zeitraum
ein, andererseits waren die Schwankungen der Monatswerte
auch wesentlich geringer.

Für die Auswertung der Bleikonzentrationen standen leider
nicht alle Monatsmittelwerte zur Verfügung, so daß eine
Besprechung nicht sinnvoll erscheint.

	H^+	SO_4^{2-} - S	NO_3^- - N	NH_4^+ - N	Cl^-	Ca^{2+}	Pb^{2+}
\bar{x}	0,322	6,28	1,94	1,714	4,78	2,506	0,071

Tab. 10 Mittelwerte der "wet-only" - Spurenstoffdepositionen
(in $\text{mg}/\text{m}^2 \text{ d}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

2.5 Spurenstoffdepositionen der 'wet-only'- Niederschläge

Einen Überblick über die Werte der nassen Spurenstoffablagerungen auf dem Kahlen Asten enthält Tab. 10.

Hiernach ist davon auszugehen, daß 322 µg H⁺ - Ionen, 2,5 mg Calcium, 4,8 mg Chlorid, 6,3 mg SO₄²⁻ - S, 3,7 mg NH₄⁺ - N, 1,9 mg NO₃⁻ - N und 71 µg Blei pro Quadratmeter und Tag dem Boden über die nasse Spurenstoffsenske zugeführt werden.

Wie sich die Depositionen dieser Spurenstoffe und die Niederschlagssummen auf die einzelnen Monate des Untersuchungszeitraumes verteilen, zeigt Abb. 48.

Da der Niederschlag einen prägenden Einfluß auf die nasse Ablagerung der Spurenstoffe besitzt und dieser in den Herbst- und Wintermonaten stärker war als in den Sommermonaten, ergibt sich in jenen Jahreszeiten auch eine erhöhte Spurenstoffdeposition, wie sie z.B. für das Sulfat sehr deutlich in Erscheinung tritt.

So ließen sich erhöhte Tagesmittel dieses Spurenstoffs im Winterhalbjahr 1982/1983 und 1983/1984 um 11 mg/m² d beobachten.

Die höchsten Werte wurden allerdings in den Monaten März, Juli und September 1984 um 7 bis zu 16 mg/m² d gemessen. Sehr niedrige Werte traten dagegen im Juli und August 1983, aber auch im März 1984 mit 2 bis 3 mg/m² d auf.

	H ⁺	SO ₄ ²⁻ - S	NO ₃ ⁻ - N	NH ₄ ⁺ - N	Cl ⁻	Ca ²⁺	Pb ²⁺
\bar{x}	0,322	6,28	1,94	3,714	4,78	2,506	0,071

Tab. 10 Mittelwerte der "wet-only" - Spurenstoffdepositionen (in mg/m² d) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Abb. 48 Monatsmittelwerte von "wet-only"-Spurenstoffdepositionen (in mg/m² d) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

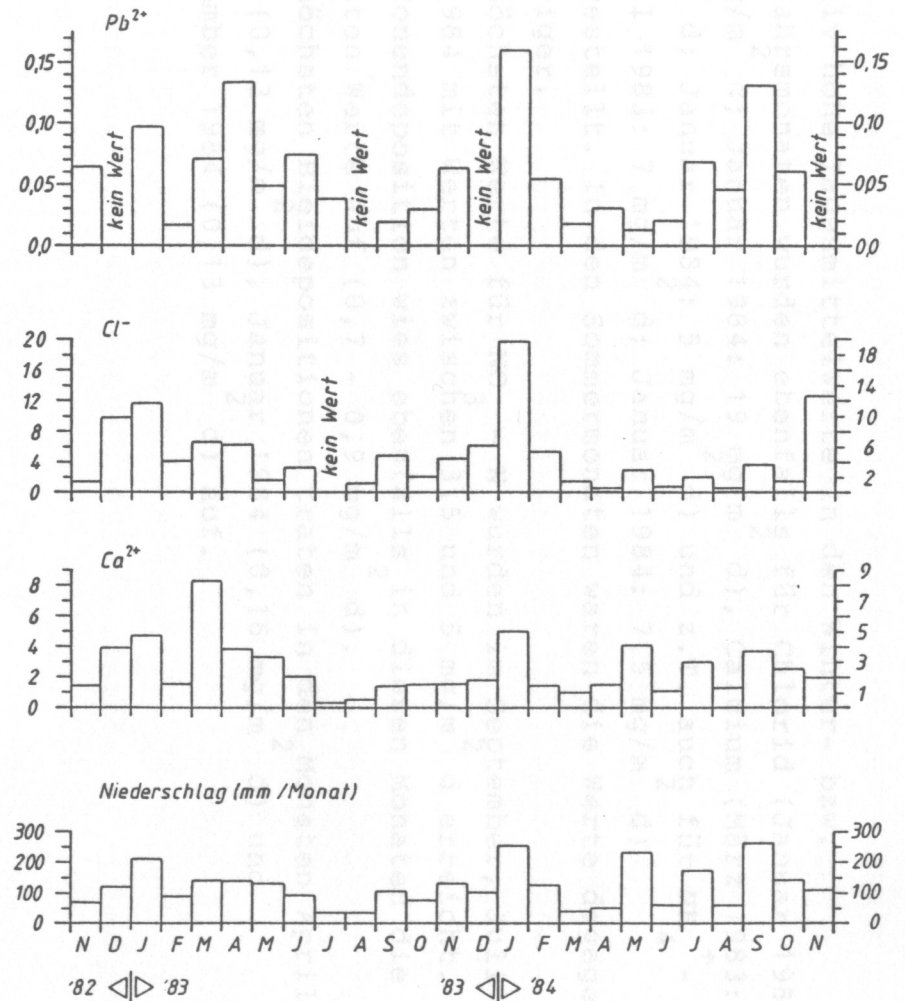
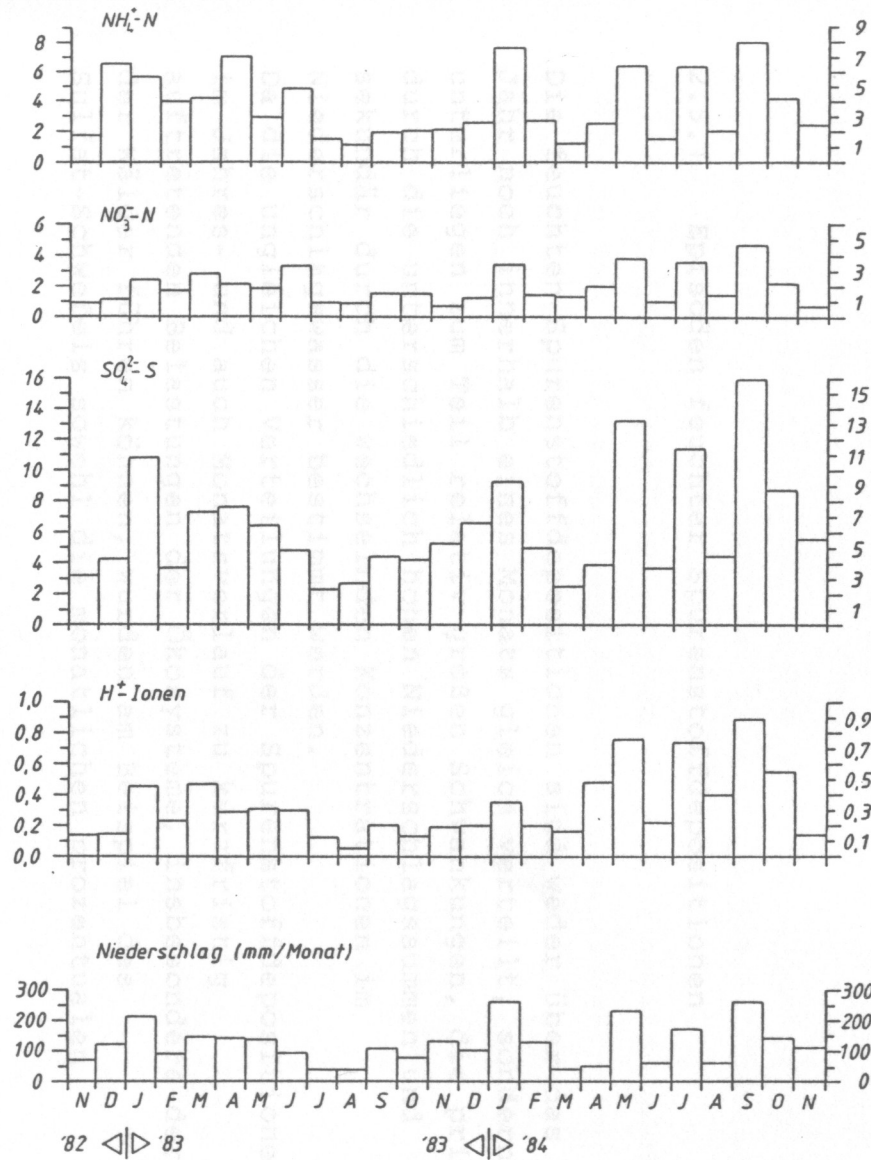


Abb. 48 Monatsmittelwerte von "wet-only"- Spurenstoffdepositionen (in mg/m² d) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Relativ hohe Tagesmittelwerte in den Winter- bzw. Frühjahrsmonaten wurden ebenfalls für Chlorid (Januar 1983: $12 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; Januar 1984: $19 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$), Calcium (März 1983: $8 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; Januar 1984: $5 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) und z.T. auch für $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ (April 1983: $7 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; Januar 1984: $7,5 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) festgestellt. In den Sommermonaten waren die Werte dagegen niedriger. Die höchsten Werte für $\text{NO}_3^- - \text{N}$ wurden im September, Juli und Mai 1984 mit Werten zwischen $3,5$ und $5 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ erreicht. Die H^+ - Ionendeposition wies ebenfalls in diesen Monaten die höchsten Werte auf ($0,7 - 0,9 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$). Die höchsten Bleidepositionen traten in den Monaten April 1983 ($0,13 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$), Januar 1984 ($0,16 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) und September 1984 ($0,13 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) auf.

2.5.1. Episoden feuchter Spurenstoffdepositionen

Die feuchten Spurenstoffdepositionen sind weder über das Jahr noch innerhalb eines Monats gleich verteilt, sondern unterliegen zum Teil relativ großen Schwankungen, die primär durch die unterschiedlich hohen Niederschlagssummen und sekundär durch die wechselnden Konzentrationen im Niederschlagswasser bestimmt werden.

Da die ungleichen Verteilungen der Spurenstoffdepositionen im Jahres- und auch Monatsverlauf zu kurzfristig auftretenden Belastungen der Ökosysteme, insbesondere der Wälder führen können, wurden am Beispiel des Sulfat-Schwefels sowohl die monatlichen prozentualen

Depositionanteile an der Gesamtd deposition des Meßzeitraumes als auch die maximale tägliche $SO_4^{2-} - S$ - Deposition - bezogen auf die Monatssumme - dargestellt.

Die mittlere maximale tägliche $SO_4^{2-} - S$ - Deposition betrug 27,4 %.

Die höchste tägliche $SO_4^{2-} - S$ - Deposition wurde mit annähernd 70 % der Monatsdeposition im Juli 1983 während des Untersuchungszeitraumes bestimmt (Abb. 49). Allerdings trat dieses Ereignis in einem Monat auf, der nur zu etwa 1,6 % (Abb. 50) an der Gesamtd deposition des Untersuchungszeitraumes beteiligt war. Die in Abb. 49 enthaltene Auswertung verdeutlicht, daß die maximale tägliche $SO_4^{2-} - S$ - Deposition von November 1982 (38 %) bis Mai 1983 sukzessive auf unter 10 % abfällt. In den beiden

Sommermonaten Juli und August werden dann zwischen 69 und 50 % erreicht. Von September 1983 bis Mai 1984 schwankt die maximale tägliche Schwefelablagerung zwischen 20 % und mehr als 45 %.

Die Tagesdeposition der Spurenstoffe wurde daraufhin untersucht, zu wieviel Prozent sich die Gesamtablagerung auf die einzelnen Monate verteilt (Abb. 50).

Nach dieser Auswertung konnten die höchsten Monatswerte für September 1984 mit 10 % und Mai 1984 mit 8,5 % nachgewiesen werden. Die niedrigsten Werte der 'wet-only' Sulfat-Schwefel-Deposition ergaben sich im trockenen Sommer 1983; in den Monaten Juli und August wurden weniger als 2,0 % erreicht. Extreme Schwankungen der Depositionen traten insbesondere im Zeitraum Mai bis September 1984 auf.



Abb. 50 - Monatlicher prozentualer Anteil der $SO_4^{2-} - S$ - Deposition an der "wet-only" Gesamtd deposition des Meßzeitraumes 11/1982 - 11/1984 an der Station Kahlert Asten

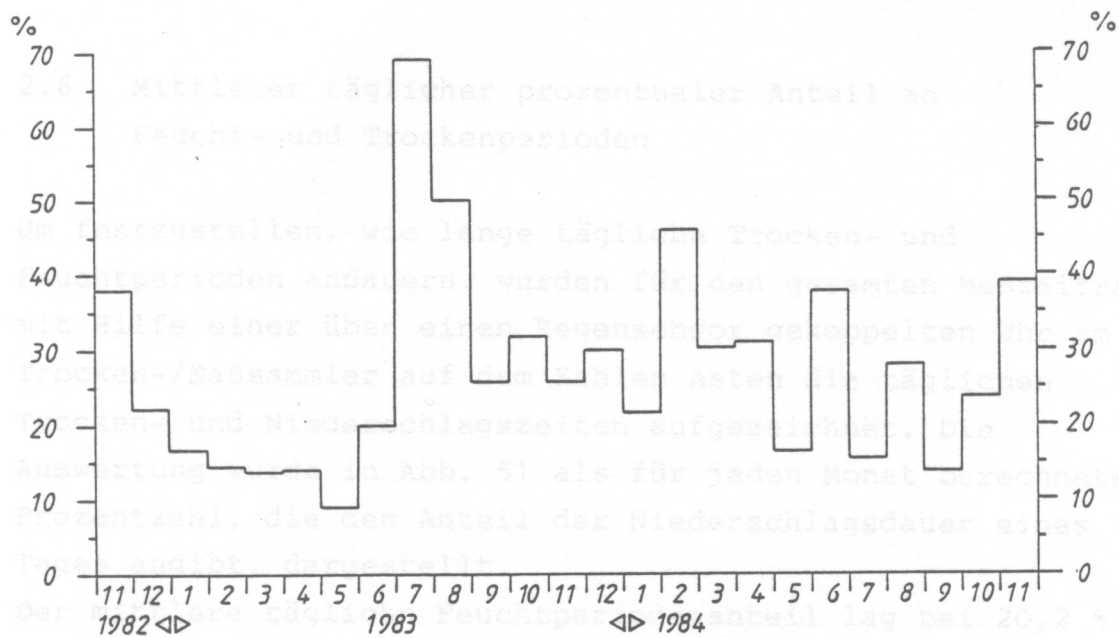


Abb. 49 Maximaler täglicher Anteil der SO_4^{2-} -S-Depositionen an der monatlichen "wet-only" - Gesamtdeposition an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

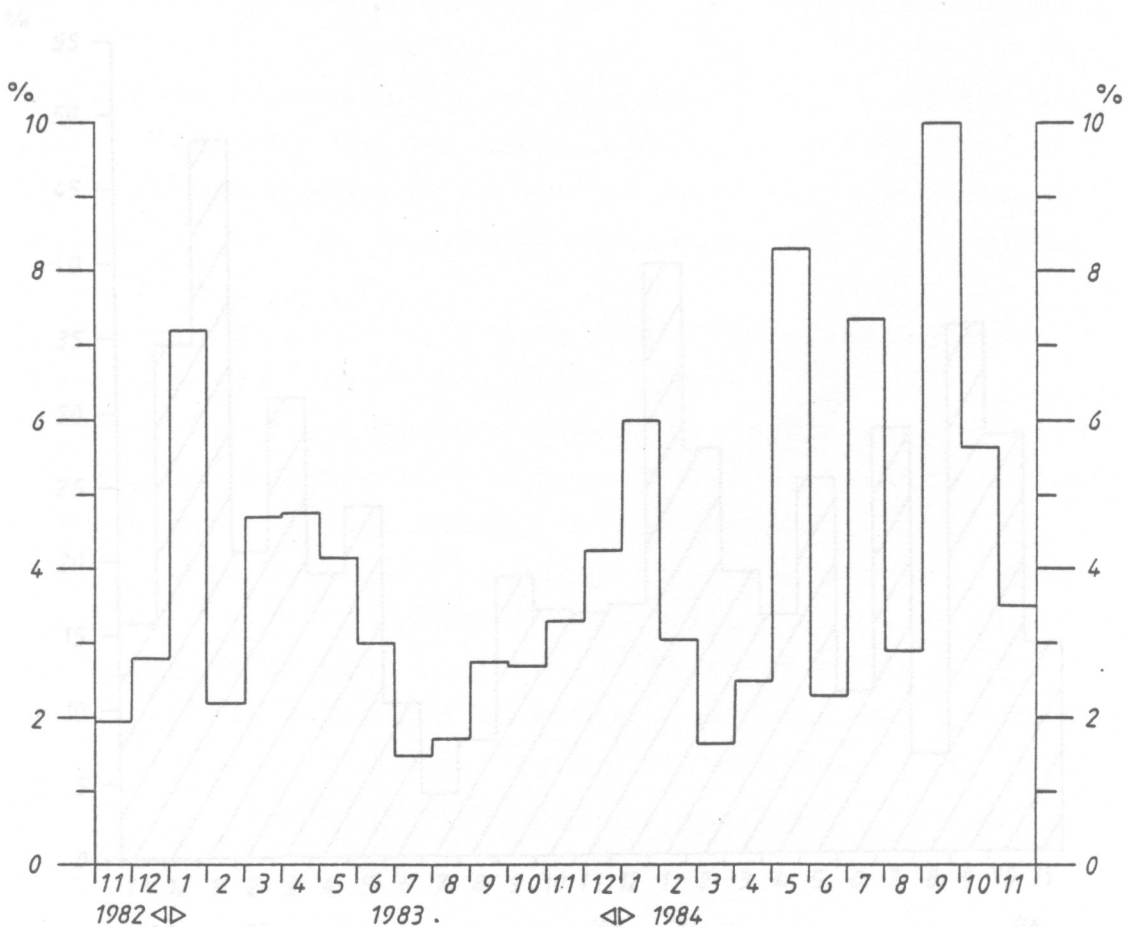


Abb. 50 Monatlicher prozentualer Anteil der SO_4^{2-} -S-Deposition an der "wet-only" - Gesamtdeposition des Meßzeitraumes 11/1982 - 11/1984 an der Station Kahler Asten

2.6 Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feucht- und Trockenperioden

Um festzustellen, wie lange tägliche Trocken- und Feuchtperioden andauern, wurden für den gesamten Meßzeitraum mit Hilfe einer über einen Regensensor gekoppelten Uhr am Trocken-/Naßsammler auf dem Kahlen Asten die täglichen Trocken- und Niederschlagszeiten aufgezeichnet. Die Auswertung wurde in Abb. 51 als für jeden Monat berechnete Prozentzahl, die den Anteil der Niederschlagsdauer eines Tages angibt, dargestellt.

Der mittlere tägliche Feuchtperiodenanteil lag bei 20,2 % der Tagesdauer; Abweichungen nach oben ergaben sich insbesondere im Januar 1983 mit über 48,4 % und im Januar 1984 mit 39,8 %; die größte Abweichung nach unten wurde für den Monat Juli 1983 mit einer mittleren täglichen Niederschlagszeit von nur 4,4 % erreicht.

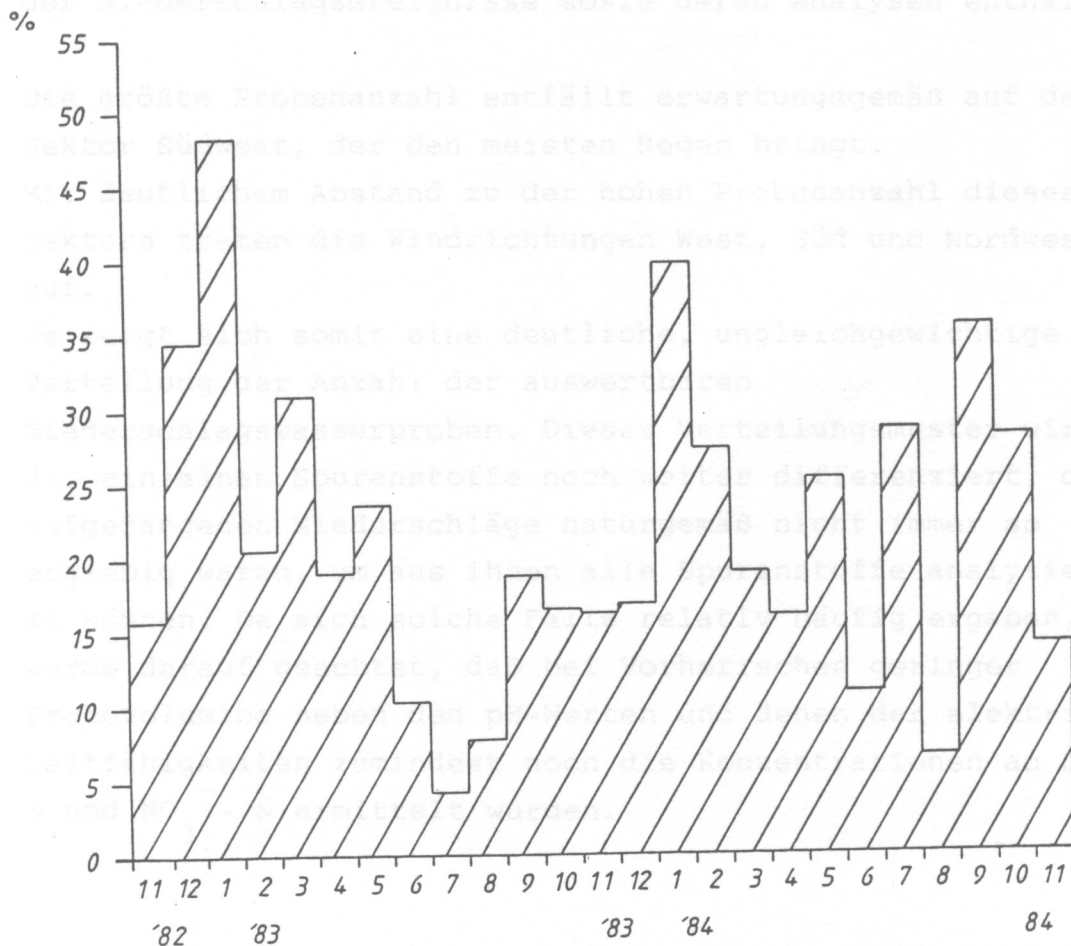


Abb. 51 Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feuchtperioden an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

2.7 Windrichtungsabhängige Spurenstoffeinträge

Zur Bestimmung des Spurenstoffeintrags in Abhängigkeit von regenbringenden Windrichtungen wurden für den Untersuchungszeitraum den mit dem Tagesprobensammler aufgefangenen Niederschlägen die vorherrschenden Tagesmittel der (Boden-)Hauptwindrichtungen (N, NE, E, SE, S, SW, W und NW) aus den entsprechenden Wetterkarten des Deutschen Wetterdienstes zugeordnet.

Da die zwischen den Haupthimmelsrichtungen liegenden Zwischenrichtungen, wie NNE bzw. WSW, relativ selten auftraten, wurden der Einfachheit halber letztere den ersteren zugeordnet.

In Tab. 11 sind die jeder Windrichtung entsprechenden Zahlen der Niederschlagsereignisse sowie deren Analysen enthalten.

Die größte Probenanzahl entfällt erwartungsgemäß auf den Sektor Südwest, der den meisten Regen bringt.

Mit deutlichem Abstand zu der hohen Probenanzahl dieses Sektors traten die Windrichtungen West, Süd und Nordwest auf.

Es zeigt sich somit eine deutliche, ungleichgewichtige Verteilung der Anzahl der auswertbaren

Niederschlagswasserproben. Dieses Verteilungsmuster wird für die einzelnen Spurenstoffe noch weiter differenziert, da die aufgefangenen Niederschläge naturgemäß nicht immer so ergiebig waren, um aus ihnen alle Spurenstoffe analysieren zu können. Da sich solche Fälle relativ häufig ergaben, wurde darauf geachtet, daß bei Vorherrschen geringer Probevolumina neben den pH-Werten und denen der elektrischen Leitfähigkeiten zumindest noch die Konzentrationen an SO_4^{2-} und NO_3^- - N ermittelt wurden.

Tab. 11 Anzahl der für die windrichtungsabhängigen Auswertungen verfügbaren Einzel-
daten (Kahler Asten, 11/1982 - 11/1984)

Windrichtungen	Nd	pH	LF	SO ₄ ²⁻ -S	NO ₃ ⁻ -N	NH ₄ ⁺ -N	Cl ⁻	Ca ²⁺	Pb
Nord	12	12	12	12	11	6	4	11	4
Nordost	11	11	11	11	10	7	5	7	2
Ost	10	10	10	10	10	10	5	9	5
Südost	3	3	3	3	3	2	1	3	1
Süd	35	35	35	35	33	26	21	22	10
Südwest	111	111	111	111	107	93	59	89	31
West	71	71	71	71	68	56	48	59	29
Nordwest	23	23	23	23	21	15	14	16	6

Aus den in Tab. 11 zusammengestellten Daten ersieht man, daß Windrichtungen mit wenigen Niederschlagswasserproben gegenüber denjenigen einen verhältnismäßig hohen Vorteil haben, die über eine große Probenanzahl verfügen (SW); dieser Eindruck verstärkt sich noch, wenn - wie in den vorliegenden Fällen - gerade die selten auftretenden Windrichtungen hohe Niederschlagssummen ergaben (wie z.B. einige Ostlagen).

Um zu einer besseren Einschätzung gerade auch dieser Fälle zu kommen, wurde neben den windsektorenabhängigen Konzentrationen und Depositionen noch der jeweilige prozentuale Anteil der regenbringenden Windrichtung an der Gesamtdeposition des Untersuchungszeitraumes für die einzelnen Spurenstoffe berechnet und dargestellt.

Für den Spurenstoff Blei konnten keine windrichtungsabhängigen Bestimmungen durchgeführt werden, da für einige Windrichtungen die Probenzahl zu gering war.

Die windrichtungsabhängige Verteilung der Niederschlagsmengen pro Niederschlagstag (Abb. 52) zeigt hohe Werte für die Windrichtungen E und W. Im Mittel erreichten die Niederschlagssummen der beiden Sektoren etwa 12 mm/d. Die niedrigsten Werte traten in Verbindung mit Niederschlägen aus Richtung Südost auf (4,9 mm/d). Der relativ hohe Wert des Sektorenmittels E ist auf einige wenige Starkniederschläge im Mai 1983 zurückzuführen.

Die niedrigsten Niederschlagswasser-pH-Werte (Abb. 53) wurden für die Richtung Südost (pH = 3,87), die höchsten Werte (pH = 4,16) bei Niederschlägen bestimmt, die mit vorherrschenden Südwestwinden in Verbindung standen. Regen und Schnee, die aus Richtung West herangeführt wurden,

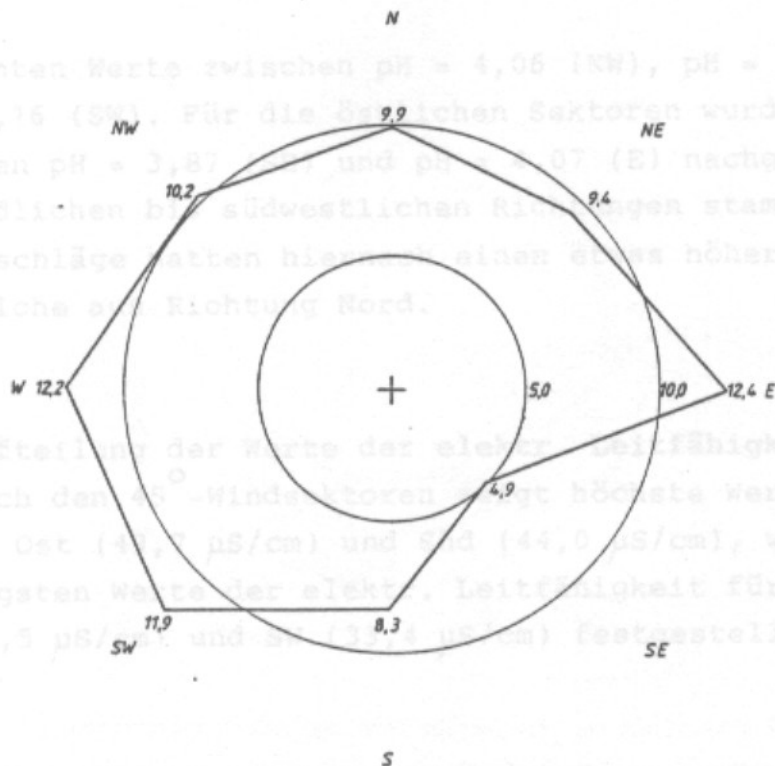


Abb. 52 Windrichtungsabhängige Verteilung der Niederschlagsmengen an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) (in mm/d)

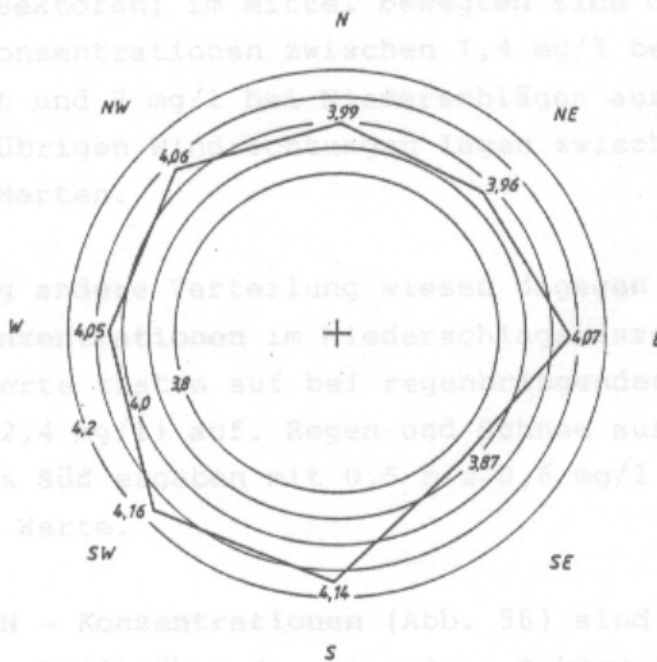


Abb. 53 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Niederschlagswasser - pH-Werte an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

erreichten Werte zwischen $\text{pH} = 4,06$ (NW), $\text{pH} = 4,05$ (W) und $\text{pH} = 4,16$ (SW). Für die östlichen Sektoren wurden Werte zwischen $\text{pH} = 3,87$ (SE) und $\text{pH} = 4,07$ (E) nachgewiesen. Aus südlichen bis südwestlichen Richtungen stammende Niederschläge hatten hiernach einen etwas höheren pH - Wert als solche aus Richtung Nord.

Die Aufteilung der Werte der **elektr. Leitfähigkeiten** (Abb. 54) nach den 45° -Windsektoren zeigt höchste Werte für den Sektor Ost ($49,7 \mu\text{S}/\text{cm}$) und Süd ($44,0 \mu\text{S}/\text{cm}$), während die niedrigsten Werte der elektr. Leitfähigkeit für den Sektor SE ($33,5 \mu\text{S}/\text{cm}$) und SW ($33,4 \mu\text{S}/\text{cm}$) festgestellt wurden.

Abb. 54: Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Mittelwerte

Abb. 55 enthält die windrichtungsabhängigen **Station Kahler** Spurenstoffkonzentrationen an **Sulfat-Schwefel** und **Chlorid** im Niederschlagswasser.

Die Sulfat-Schwefel-Konzentrationen zeigten in Abhängigkeit von der Windrichtung keine großen Unterschiede zwischen den einzelnen Sektoren; im Mittel bewegten sich die Schwefel-Konzentrationen zwischen $1,4 \text{ mg}/\text{l}$ bei Niederschlag aus Südwest und $2 \text{ mg}/\text{l}$ bei Niederschlägen aus E und NE. Die Werte der übrigen Windrichtungen lagen zwischen den genannten Werten.

Eine völlig andere Verteilung wiesen dagegen die **Chlorid-Konzentrationen** im Niederschlagswasser auf. Die höchsten Werte traten auf bei regenbringenden Winden aus Nordwest ($2,4 \text{ mg}/\text{l}$) auf. Regen und Schnee aus dem Sektor Nordost bis Süd ergaben mit $0,5$ bis $0,6 \text{ mg}/\text{l}$ signifikant niedrigere Werte.

Die NO_3^- - N - Konzentrationen (Abb. 56) sind relativ ungleich verteilt über die einzelnen Sektoren. Relativ hohen Werten des Sektors NE ($0,76 \text{ mg}/\text{l}$) und E ($0,62 \text{ mg}/\text{l}$) standen

Abb. 55: Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen von SO_4^{2-} - S und Cl^- (in mg/l) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

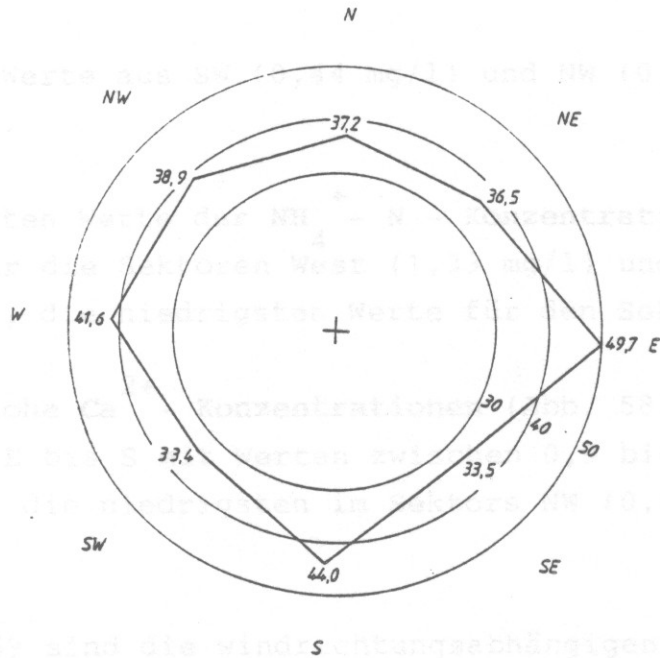


Abb. 54 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Mittelwerte der elektrischen Leitfähigkeit (in $\mu\text{S}/\text{cm}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

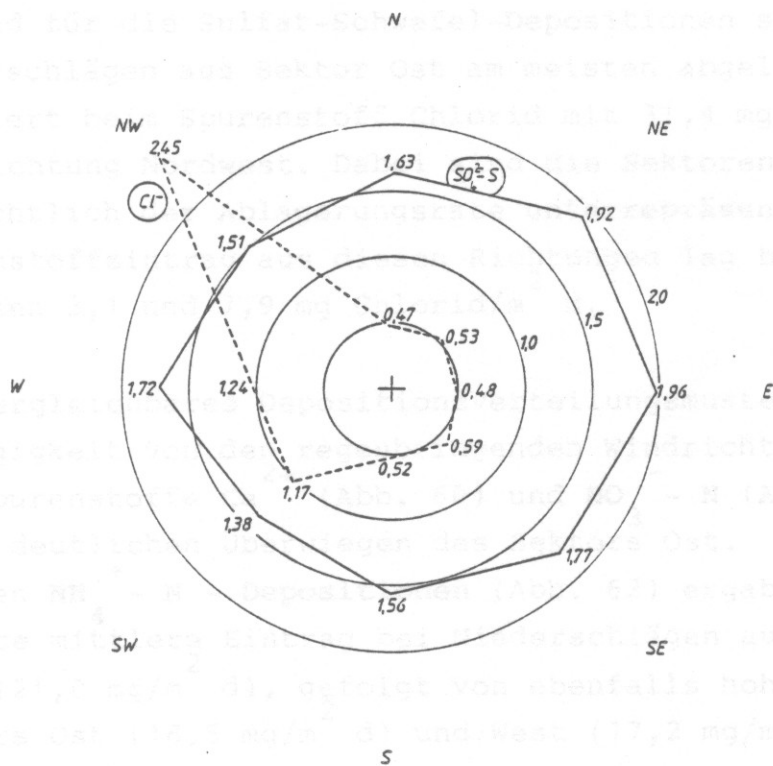


Abb. 55 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen SO_4^{2-} -S und Cl^- (in mg/l) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

niedrige Werte aus SW (0,44 mg/l) und NW (0,44 mg/l) gegenüber.

Die höchsten Werte der NH_4^+ - N - Konzentrationen (Abb. 57) wurden für die Sektoren West (1,33 mg/l) und SW (1,35 mg/l) ermittelt, die niedrigsten Werte für den Sektor NW (0,76 mg/l).

Relativ hohe Ca^{2+} - Konzentrationen (Abb. 58) wurden für die Sektoren E bis S mit Werten zwischen 0,9 bis 0,8 mg/l bestimmt, die niedrigsten im Sektors NW (0,46 mg/l).

In Abb. 59 sind die windrichtungsabhängigen mittleren nassen Spurenstoffdepositionen für Chlorid und Sulfat-Schwefel dargestellt.

Bei Niederschlägen aus E wurden an SO_4^{2-} - S im Sektorenmittel 24,4 mg/m² d abgelagert. Relativ geringe nasse Spurenstoffdepositionen traten auf bei Niederschlägen aus Richtung SE (8,6 mg/m² d).

Während für die Sulfat-Schwefel-Depositionen somit bei Niederschlägen aus Sektor Ost am meisten abgelagert wird, dominiert beim Spurenstoff Chlorid mit 31,4 mg/m² d die Windrichtung Nordwest. Dabei sind die Sektoren N - E - S hinsichtlich der Ablagerungsrate unterrepräsentiert: der Spurenstoffeintrag aus diesen Richtungen lag bei Werten zwischen 3,1 und 7,9 mg Chlorid/m² d.

Ein vergleichbares Depositionsverteilungsmuster in Abhängigkeit von den regenbringenden Windrichtungen zeigen die Spurenstoffe Ca^{2+} (Abb. 60) und NO_3^- - N (Abb. 61) mit einem deutlichen Überwiegen des Sektors Ost.

Bei den NH_4^+ - N - Depositionen (Abb. 62) ergab sich der höchste mittlere Eintrag bei Niederschlägen aus Richtung Nord (21,0 mg/m² d), gefolgt von ebenfalls hohen Werten des Sektors Ost (18,5 mg/m² d) und West (17,2 mg/m² d).

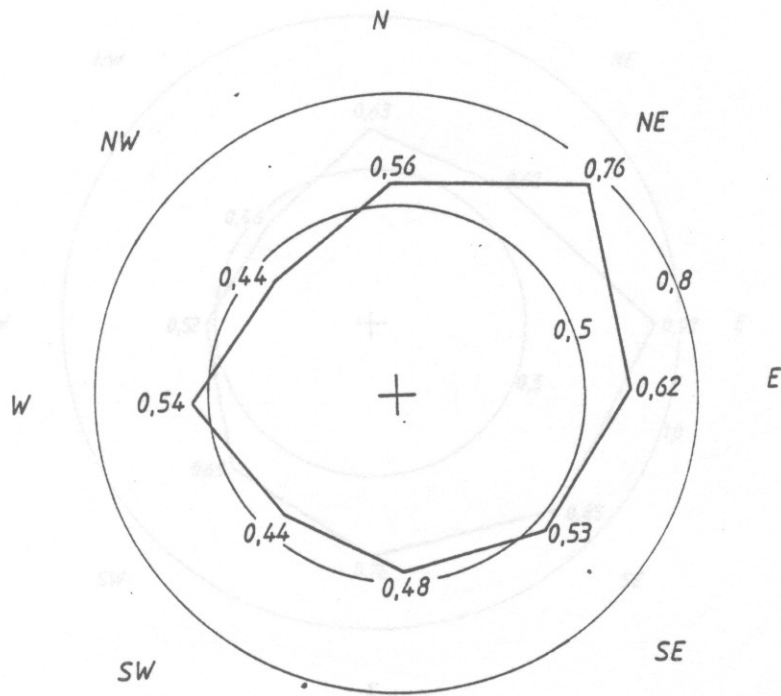


Abb. 56 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen $\text{NO}_3^- - \text{N}$ (in mg/l) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

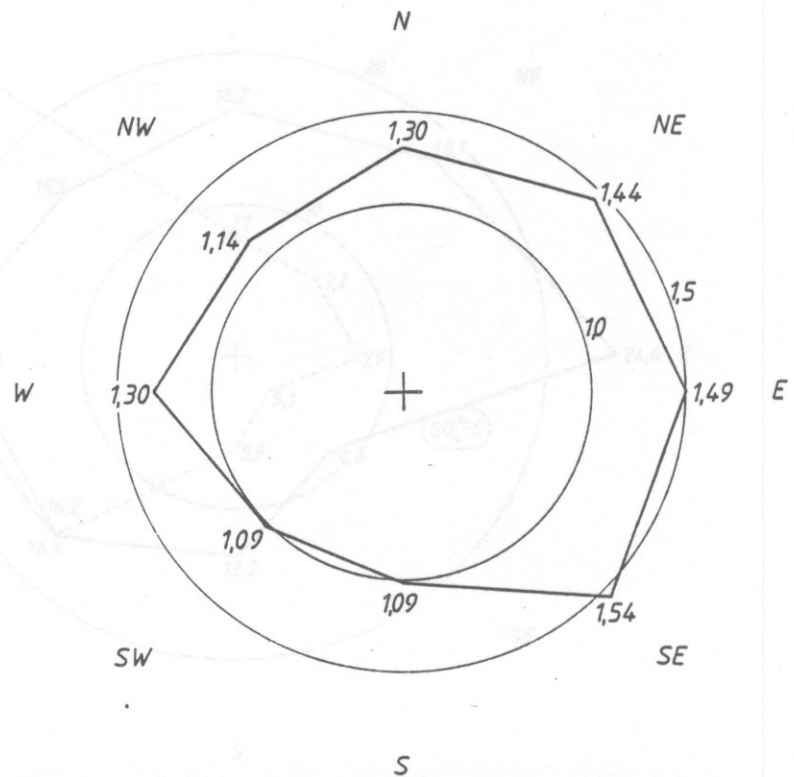


Abb. 57 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ (in mg/l) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

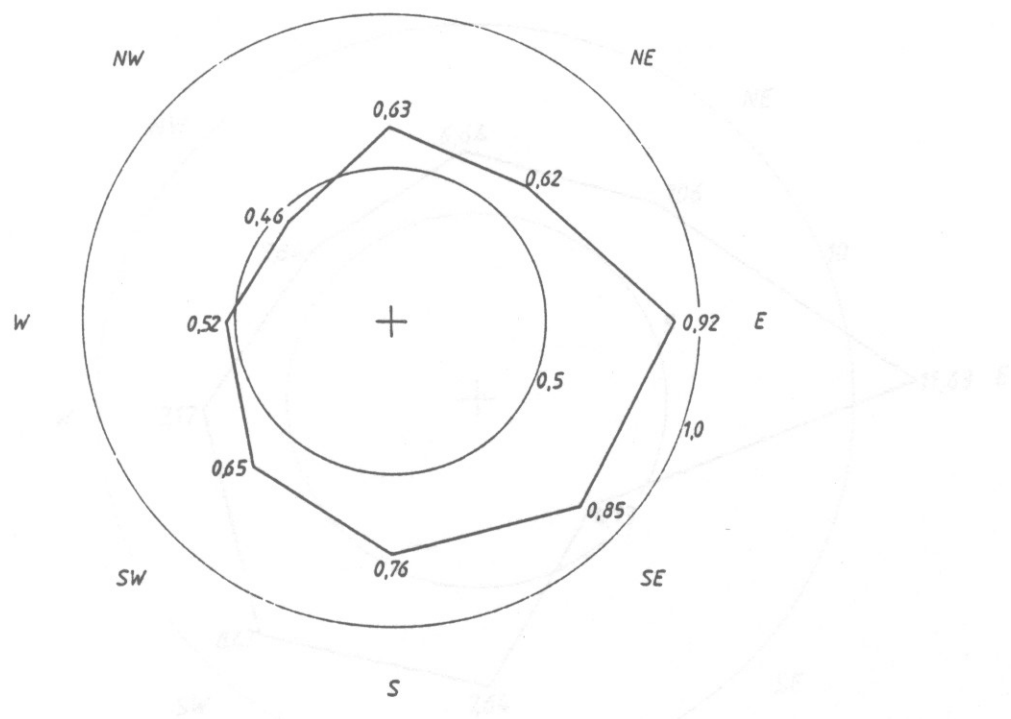


Abb. 58 Windrichtungsabhängige Verteilung der gewichteten Spurenstoffkonzentrationen Ca²⁺ (in mg/l) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

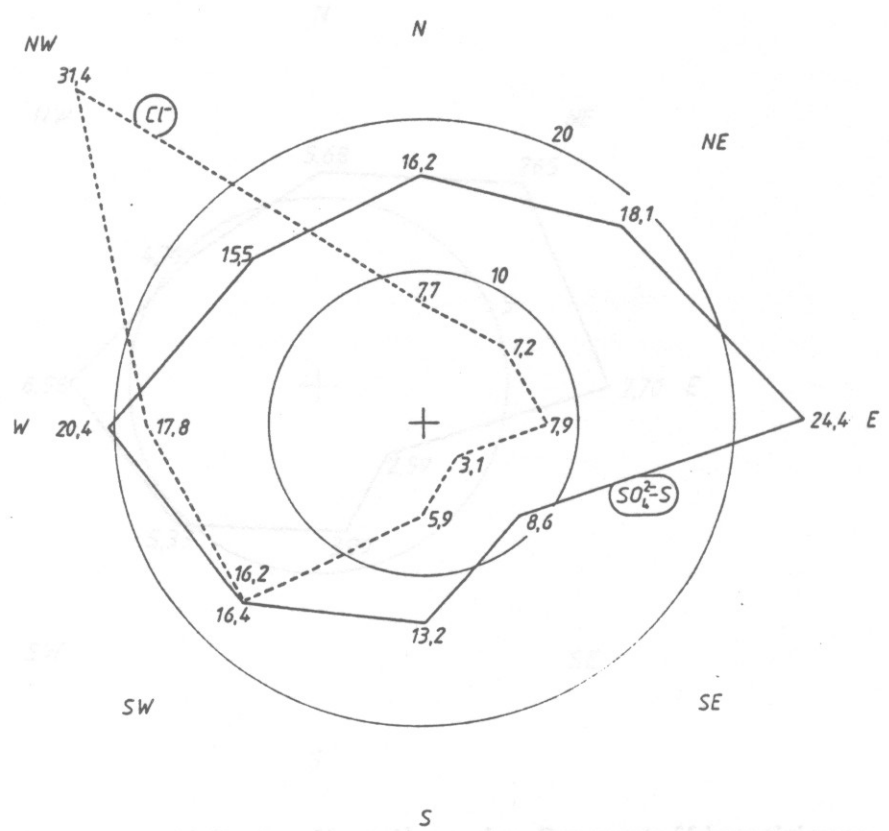


Abb. 59 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen SO₄²⁻ - S und Cl⁻ (in mg/m² d) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

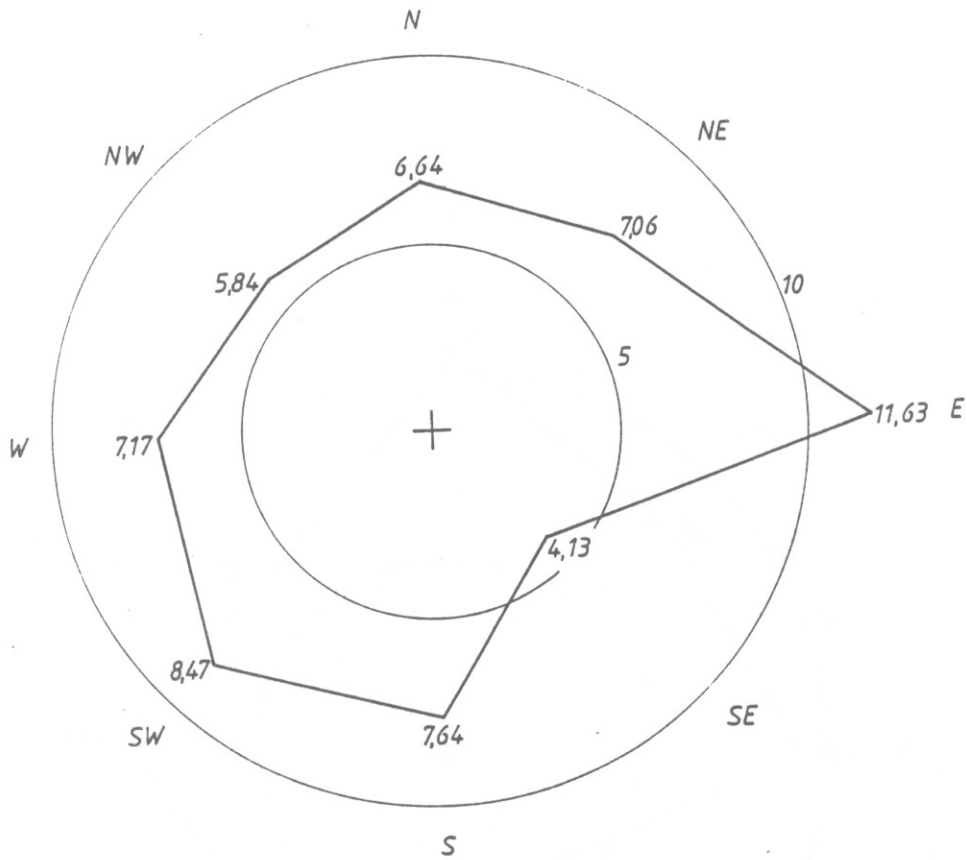


Abb. 60 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen Ca^{2+} (in mg/m^2 d) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

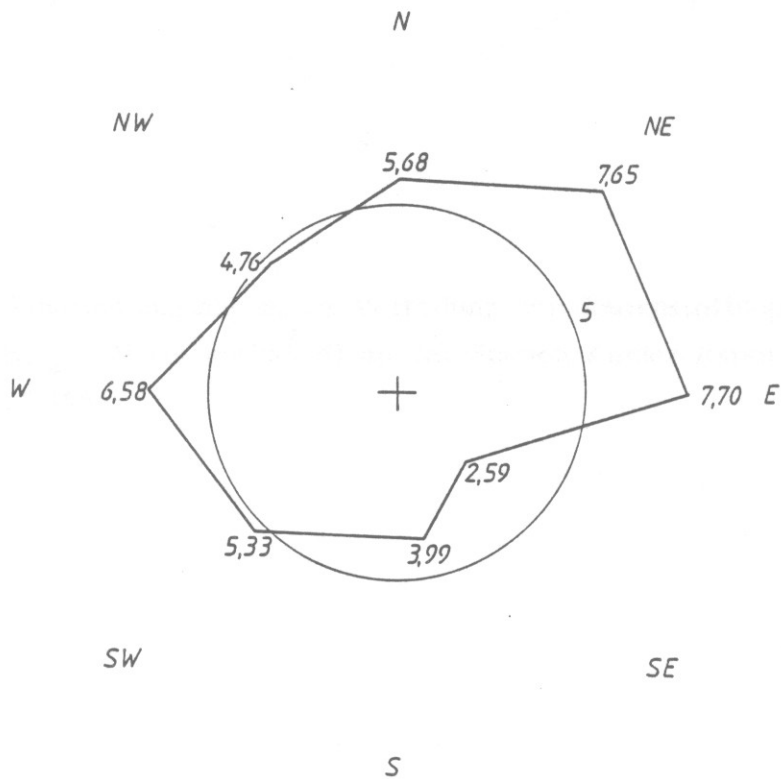


Abb. 61 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen $\text{NO}_3^- - \text{N}$ (in mg/m^2 d) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

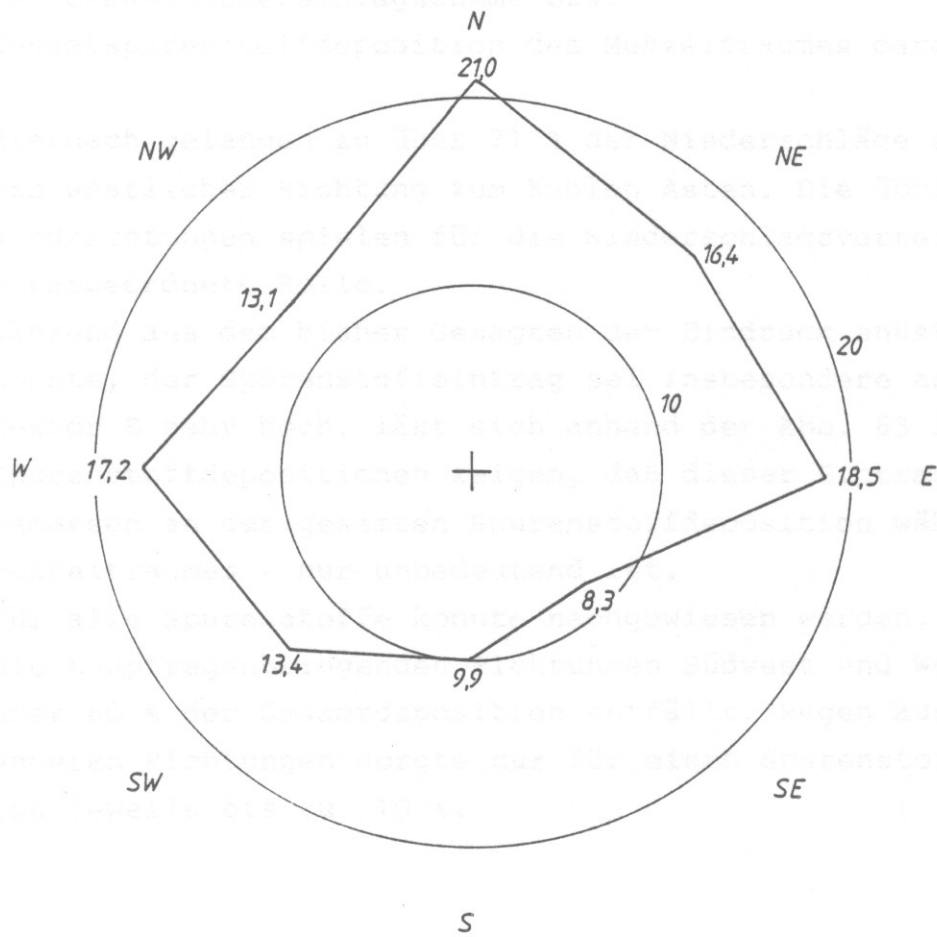


Abb. 62 Windrichtungsabhängige Verteilung der Spurenstoffdepositionen $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ (in $\text{mg}/\text{m}^2 \text{ d}$) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

In Abb. 63 a und b sind die windrichtungsabhängigen Niederschlagssummen und Spurenstoffdepositionen in Prozenten der Gesamtniederschlagssumme bzw. Gesamtspurenstoffdeposition des Meßzeitraumes dargestellt.

Hiernach gelangen zu über 71 % der Niederschläge aus südwest bis westlicher Richtung zum Kahlen Asten. Die übrigen Windrichtungen spielen für die Niederschlagsverteilung eine untergeordnete Rolle.

Während aus dem bisher Gesagten der Eindruck entstehen konnte, der Spurenstoffeintrag sei insbesondere aus dem Sektor E sehr hoch, läßt sich anhand der Abb. 63 für die Spurenstoffdepositionen zeigen, daß dieser Eintrag - gemessen an der gesamten Spurenstoffdeposition während des Meßzeitraumes - nur unbedeutend ist.

Für alle Spurenstoffe konnte nachgewiesen werden, daß auf die hauptregenbringenden Richtungen Südwest und West jeweils über 60 % der Gesamtdeposition entfällt. Regen aus den anderen Richtungen sorgte nur für einen Spurenstoffeintrag von jeweils bis zu 10 %.



Abb. 63 a - Windrichtungsabhängige Niederschlagssummen (Nd) und Spurenstoffdepositionen (SO_2 , S, Cl) in Prozenten der Gesamtniederschlagssumme bzw. der Gesamtdeposition des Meßzeitraumes (11/1963 - 11/1964) an der Station Kahler Asten.

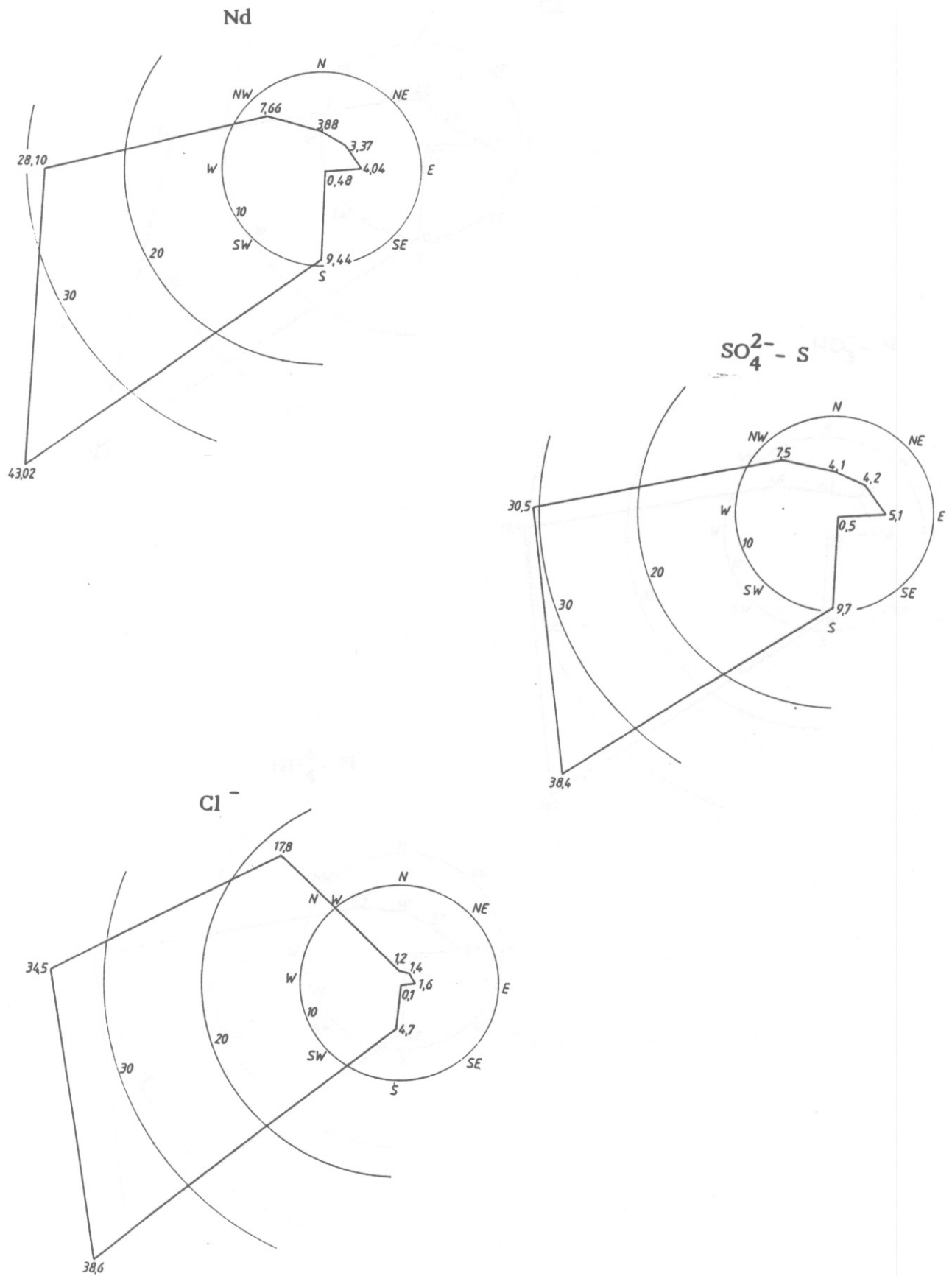
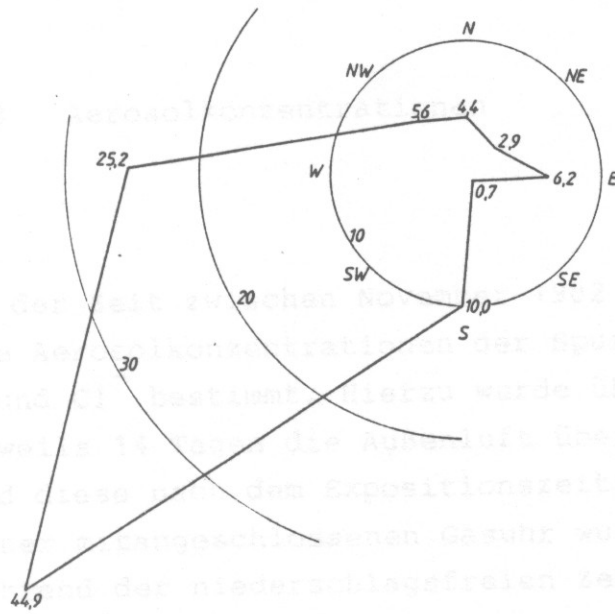
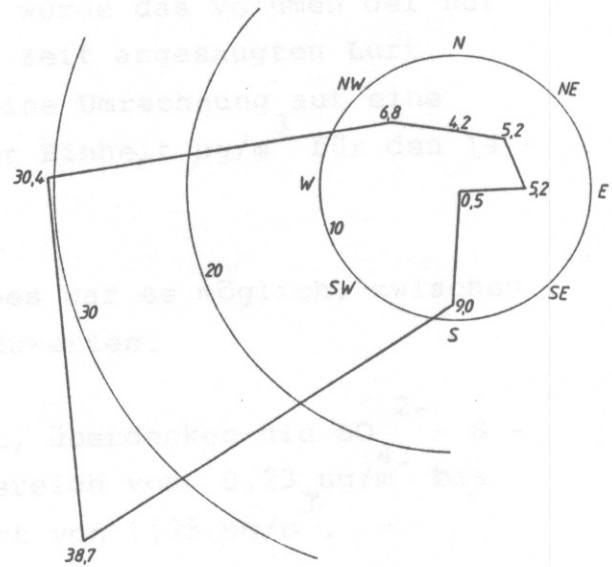


Abb. 6. Windrichtungsabhängige Niederschlagssummen (Nd) und Spurenstoffdepositionen (SO₄²⁻-S, Cl⁻) in Prozenten der Gesamtniederschlagssumme bzw. der Gesamtdeposition des Meßzeitraumes (11/1982 - 11/1984) an der Station Kahler Kasten

Ca²⁺



NO₃⁻-N



NH₄⁺-N

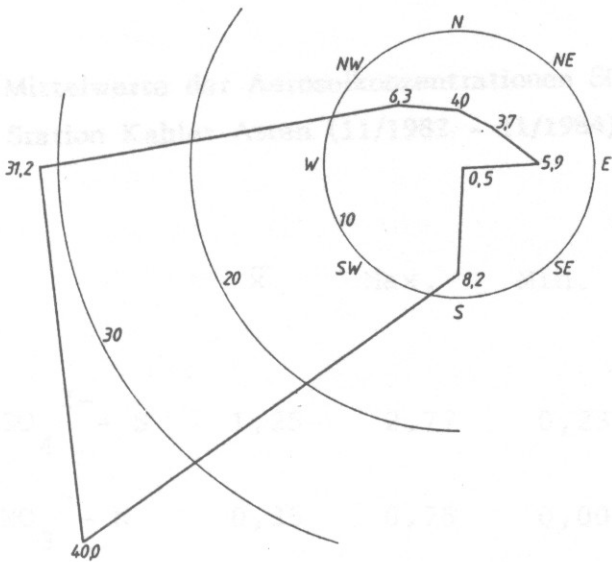


Abb. 63 b Windrichtungsabhängige Spurenstoffdepositionen (Ca²⁺, NO₃⁻-N, NH₄⁺-N) in Prozenten der Gesamtdosition des Meßzeitraumes (11/1982 - 11/1984) an der Station Kahler Asten

2.8 Aerosolkonzentrationen

In der Zeit zwischen November 1982 und November 1984 wurden die Aerosolkonzentrationen der Spurenstoffe $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ und Cl^- bestimmt. Hierzu wurde über einen Zeitraum von jeweils 14 Tagen die Außenluft über zwei Filter angesaugt und diese nach dem Expositionszeitraum analysiert. Mit Hilfe einer mitangeschlossenen Gasuhr wurde das Volumen der während der niederschlagsfreien Zeit angesaugten Luft bestimmt, so daß anschließend eine Umrechnung auf eine Spurenstoffkonzentration mit der Einheit $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für den 14 - Tageszeitraum erfolgen konnte.

Im Verlauf des o.g. Meßzeitraumes war es möglich, zwischen 52 und 48 Zweiwochenproben auszuwerten.

Wie Tabelle 12 zu entnehmen ist, überdecken die $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ - Aerosolkonzentrationen einen Bereich von $0,23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $2,77 \mu\text{g}/\text{m}^3$, bei einem Mittelwert von $1,25 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Tab. 12 Mittelwerte der Aerosolkonzentrationen $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ und Cl^- an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984) (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

	\bar{x}	Max.	Min.	δ	n
$\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$	1,25	2,77	0,23	0,61	50
$\text{NO}_3^- - \text{N}$	0,35	0,75	0,00	0,22	48
Cl^-	0,28	0,83	0,00	0,23	52

Die relativ hohe Standardabweichung (47 % des Mittelwertes) für SO_4^{2-} - S verdeutlicht die z.T. recht hohe Schwankung der Einzelwerte; allerdings ist die Variabilität für den Spurenstoff SO_4^{2-} - S im Vergleich zu den beiden anderen Spurenstoffkonzentrationen noch verhältnismäßig niedrig.

Für NO_3^- - N wurde eine mittlere Aerosolkonzentration von $0,35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gefunden, der höchste 14-Tageswert, der gemessen wurde, erreichte $0,75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (März 1983), das Minimum lag bei $0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Oktober 1983). Die Schwankung des Mittelwertes betrug 63 %.

Für die Aerosolkonzentration an **Chlorid** wurden im Durchschnitt $0,28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet, der höchste Wert mit $0,83 \mu\text{g}/\text{m}^3$ trat an der Wende Februar/März 1983 auf; kein Chlorid im Schwebstaub wurde im Februar/März 1984 gemessen. Die Variabilität des Mittelwertes lag bei 85 %.

In Abb. 64 wurden die zu Monatswerten zusammengefaßten 14-Tages-Messungen des Untersuchungszeitraumes dargestellt. Das höchste Monatsmittel der SO_4^{2-} - S - Aerosolkonzentration wurde mit $2,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für den Monat Juli ermittelt, der niedrigste Wert mit $0,35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Dezember 1983. Der Verlauf der NO_3^- - N - Aerosolkonzentrationen wies hohe Monatsmittelwerte im März 1983 mit $0,61 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Juni 1983 mit $0,55 \mu\text{g}/\text{m}^3$, März 1984 mit $0,54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und September $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf. Die geringsten Aerosolkonzentrationen wurden für den Oktober 1983 mit $0,04 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und den Dezember 1983 mit $0,08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet.

Die Monatsmittel der Chlorid-Aerosolkonzentrationen bewegten sich zwischen $0,56 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Oktober 1984) und $0,06 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Februar 1984).

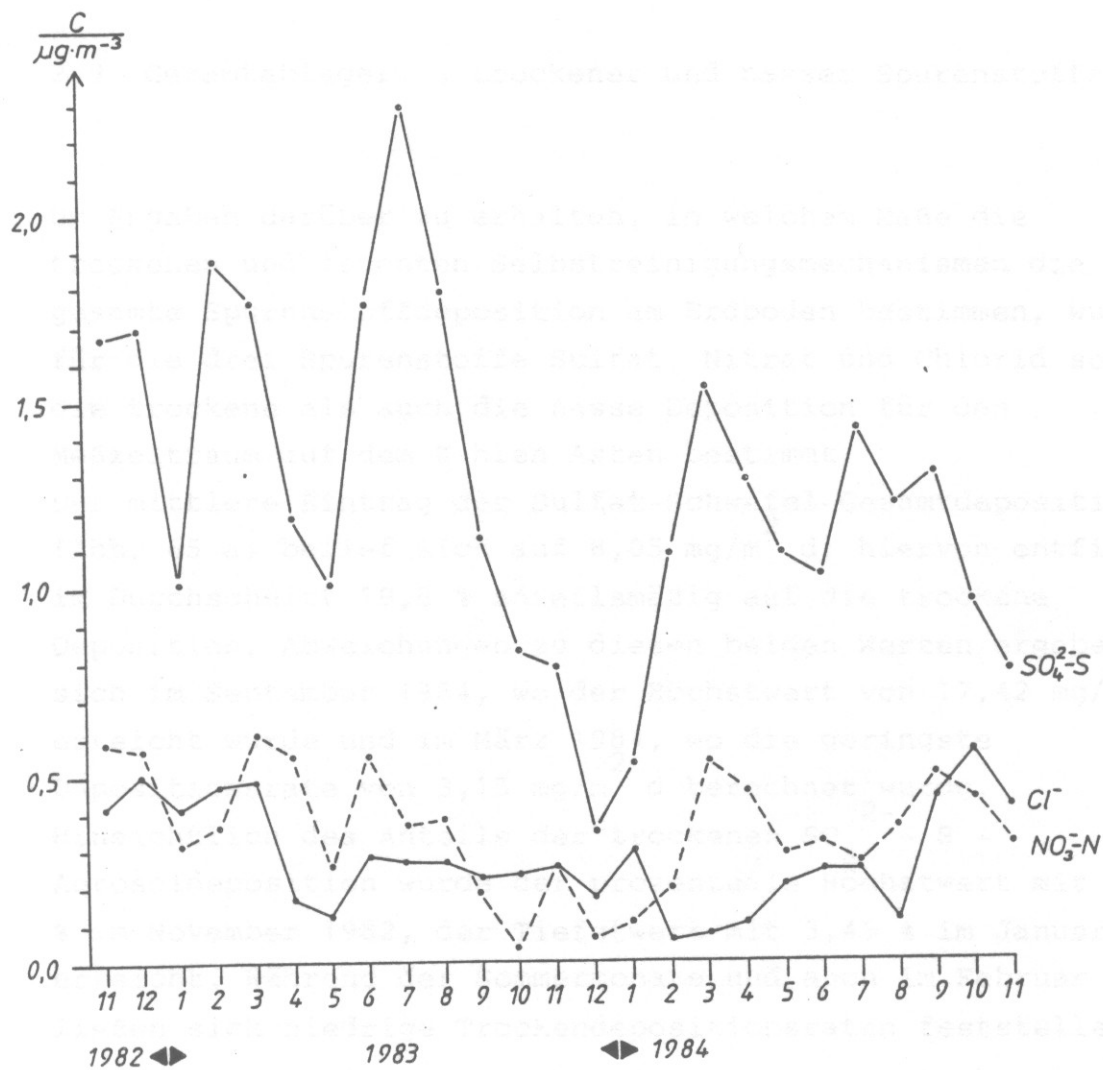


Abb. 64 Monatsmittelwerte der Aerosolkonzentrationen ($\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$, $\text{NO}_3^- \text{-N}$ und Cl^-) an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

2.9 Gesamtablagerung trockener und nasser Spurenstoffe

Um Angaben darüber zu erhalten, in welchem Maße die trockenen und feuchten Selbstreinigungsmechanismen die gesamte Spurenstoffdeposition am Erdboden bestimmen, wurden für die drei Spurenstoffe Sulfat, Nitrat und Chlorid sowohl die trockene als auch die nasse Deposition für den Meßzeitraum auf dem Kahlen Asten bestimmt.

Der mittlere Eintrag der Sulfat-Schwefel-Gesamtdeposition (Abb. 65 a) belief sich auf $8,05 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; hiervon entfielen im Durchschnitt 19,8 % anteilmäßig auf die trockene Deposition. Abweichungen zu diesen beiden Werten ergaben sich im September 1984, wo der Höchstwert von $17,42 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ erreicht wurde und im März 1984, wo die geringste Depositionsrate von $3,15 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ berechnet wurde. Hinsichtlich des Anteils der trockenen $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ - Aerosoldeposition wurde der prozentuale Höchstwert mit 41,1 % im November 1982, der Tiefstwert mit 3,45 % im Januar 1984 erreicht. Während der Sommermonate und auch im Februar ließen sich niedrige Trockendepositionsraten feststellen.

Die mittlere Ablagerungsrate für $\text{NO}_3^- - \text{N}$ (Abb. 65 b) erreichte einen Wert von $2,4 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; 22,3 % hiervon gelangten auf trockenem Wege zur Erdoberfläche. Abgesehen von den wegen Meßausfällen nicht zu berücksichtigenden Monatswerten September und Oktober 1983 ist der Verlauf der trockenen und nassen Gesamtablagerung an $\text{NO}_3^- - \text{N}$ relativ uneinheitlich. Hohen Monatswerten von bis zu $5,42 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ (September 1984) standen niedrigste Ablagerungsraten im November 1983 mit $1,04 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ gegenüber. Auch der prozentuale Anteil lediglich der trockenen Deposition schwankt von Monat zu Monat recht stark. Während im Juni 1984 42,6 % als höchster Wert erreicht wurden,

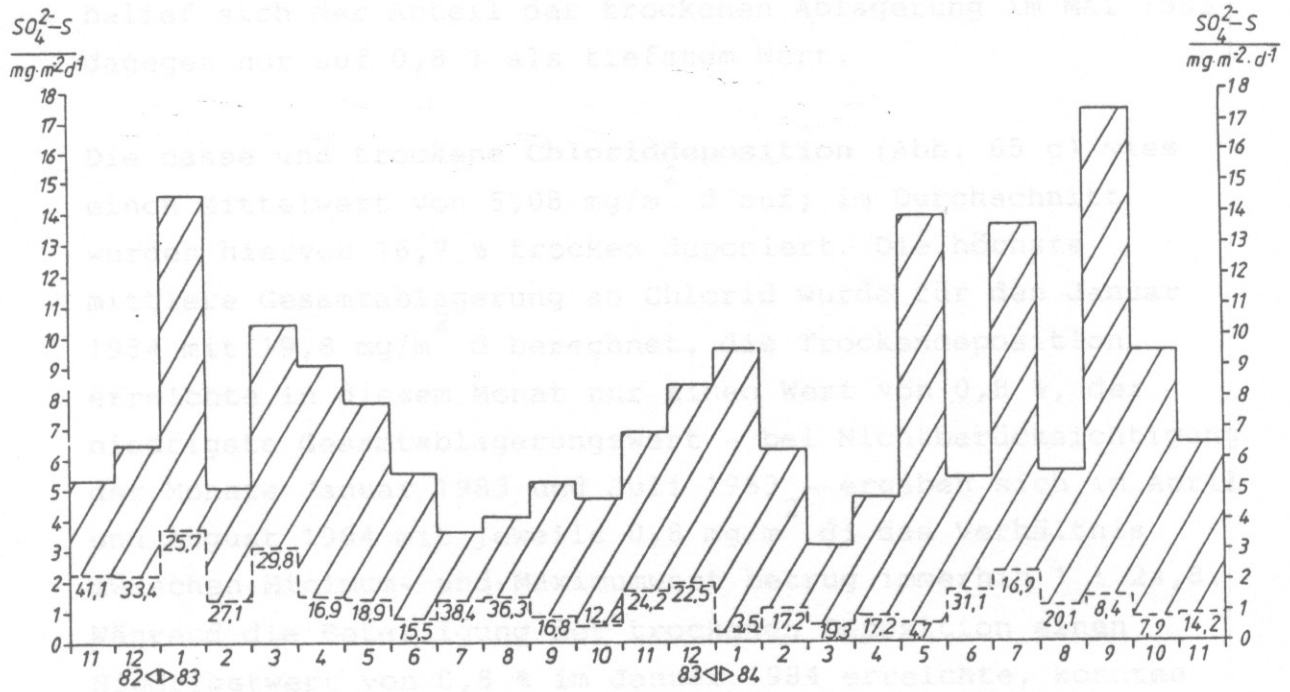


Abb. 65 a Mittlere monatliche Gesamtdeposition an SO₄²⁻ - S (Aerosol plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

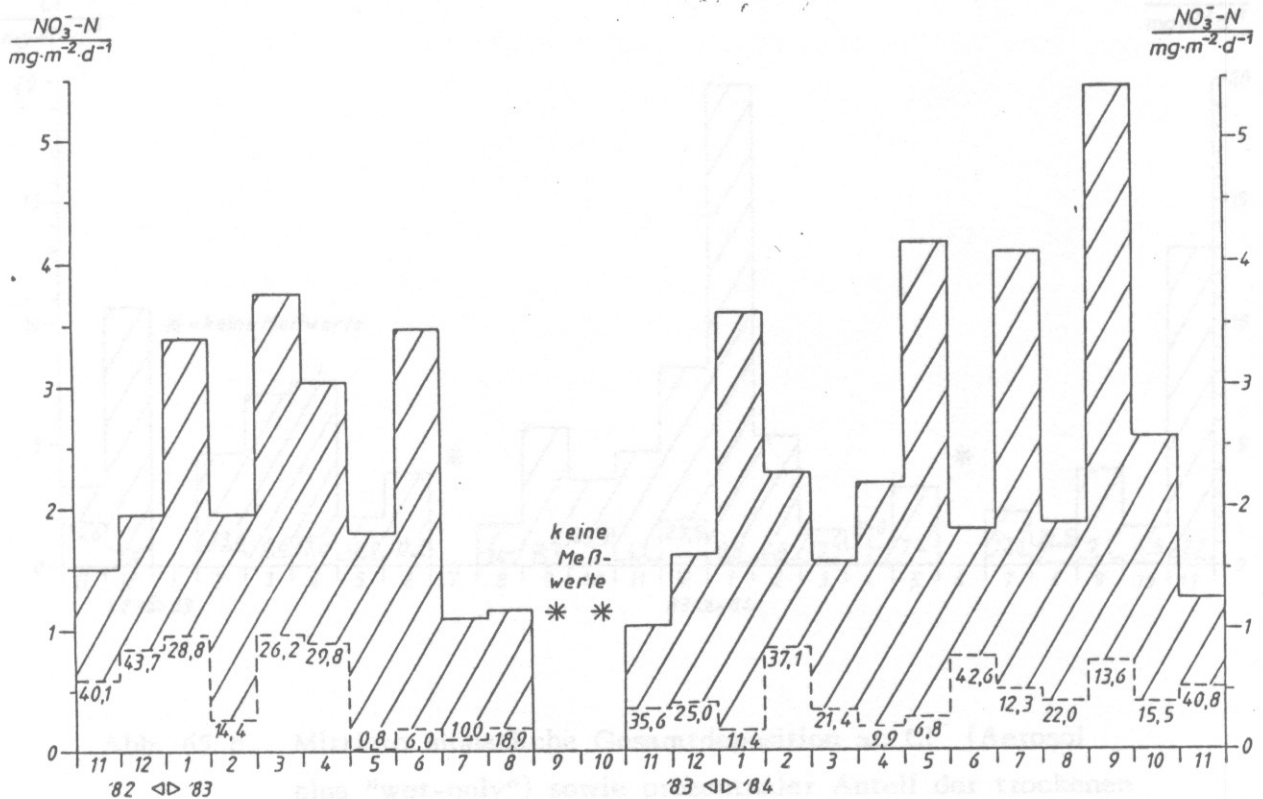


Abb. 65 b Mittlere monatliche Gesamtdeposition an NO₃⁻ - N (Aerosol plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

belieft sich der Anteil der trockenen Ablagerung im Mai 1983 dagegen nur auf 0,8 % als tiefstem Wert.

Die nasse und trockene **Chloriddeposition** (Abb. 65 c) wies einen Mittelwert von $5,08 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ auf; im Durchschnitt wurden hiervon 16,7 % trocken deponiert. Die höchste mittlere Gesamtablagerung an Chlorid wurde für den Januar 1984 mit $19,8 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ berechnet, die Trockendeposition erreichte in diesem Monat nur einen Wert von 0,8 %, der niedrigste Gesamtablagerungswert - bei Nichtberücksichtigung der Monate Januar 1983 und Juli 1983 - ergaben sich im April und August 1984 mit jeweils $0,8 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; das Verhältnis zwischen Minimum- und Maximumwert betrug immerhin 1 : 24,8. Während die Beteiligung der trockenen Deposition einen Niedrigstwert von 0,8 % im Januar 1984 erreichte, konnten als höchster Wert 54,6 % für November 1982 berechnet werden.

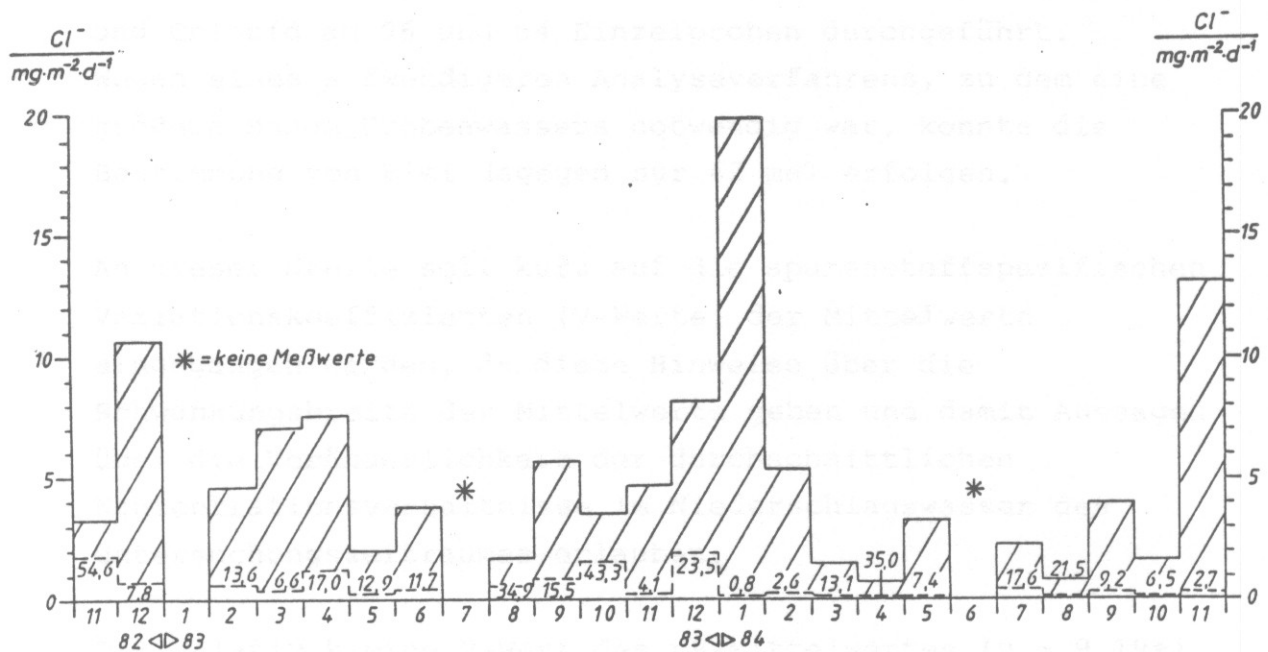


Abb. 65 c Mittlere monatliche Gesamtablagerung an Cl^- (Aerosol plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosolablagerung an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

3. Ergebnisse der Messungen an der Meßstelle Bochum

Die Messungen erfolgten am Standort Bochum in der Zeit von Januar 1983 bis Februar 1984.

3.1 Niederschläge und Spurenstoffkonzentrationen

Für die Analyse der Regenwasserinhaltsstoffe am Standort Bochum im Belastungsgebiet Ruhrgebiet-Mitte standen maximal 124 Einzelproben des Meßzeitraumes Januar 1983 bis Februar 1984 zur Verfügung. Die gewichteten Mittelwerte der Spurenstoffkonzentrationen sind in Tab. 13 enthalten. Von allen Proben konnte der pH-Wert, die elektr. Leitfähigkeit, die aus den pH-Werten berechneten H^+ -Ionenkonzentrationen und die Gehalte an Sulfat-Schwefel bestimmt werden. Nachweise auf Nitrat-Stickstoff und Calcium wurden in 124 und 102 Fällen, die auf Ammonium-Stickstoff und Chlorid an 96 und 84 Einzelproben durchgeführt. Wegen eines aufwendigeren Analyseverfahrens, zu dem eine größere Menge Probenwassers notwendig war, konnte die Bestimmung von Blei dagegen nur 62 mal erfolgen.

An dieser Stelle soll kurz auf die spurenstoffspezifischen Variationskoeffizienten (V-Werte) der Mittelwerte eingegangen werden, da diese Hinweise über die Schwankungsbreite der Mittelwerte geben und damit Aussagen über die Veränderlichkeit der durchschnittlichen Konzentrationsverhältnisse im Niederschlagswasser des Untersuchungszeitraumes erlauben.

Der relativ kleine V-Wert des pH-Mittelwertes ($v = 9,19\%$) darf nicht darüber hinwegtäuschen, daß es sich hierbei um ein logarithmisches Maß der H^+ -Ionenkonzentrationen handelt.

	pH	H ⁺	LF	SO ₄ ²⁻ -S	NO ₃ ⁻ -N	NH ₄ ⁺ -N	Cl ¹	Ca ²⁺	Pb ²⁺
\bar{x} gew.	4,16	0,069	67,2	2,09	0,62	1,64	2,18	1,33	0,04

Tab. 13 Gewichtete Mittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffkonzentrationen (in mg/l), des pH-Wertes und der elektrischen Leitfähigkeit (in μ S/cm) an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

Die geringste Variabilität wiesen die elektr. Leitfähigkeit mit 63,5 %, die NH₄⁺-N-Konzentrationen mit 65,0 % und die SO₄²⁻-S-Konzentrationen mit 68,8 % auf. Die höchste mittlere Schwankung wurde für die Cl⁻-Konzentrationen mit 120,1 % und für die Pb²⁺-Konzentrationen mit 116,5 % berechnet. Die Werte der H⁺-Ionen-, NO₃⁻-N- und der Ca²⁺-Konzentrationen lagen zwischen $v = 80$ % und $v = 86$ %. Im Gegensatz zu den Variabilitäten der anderen Spurenstoffe lassen die relativ geringen Schwankungen von NH₄⁺-N und SO₄²⁻-S eine homogenere Belastung des Regenwassers am Industriestandort Bochum erkennen.

Die gewichteten Monatsmittelwerte und die monatlichen Niederschlagssummen sind in Abb. 66 dargestellt.

Die H⁺-Ionenkonzentrationen wiesen ein ausgeprägtes Maximum im Monat Mai mit 0,13 mg/l auf. Relativ niedrige Konzentrationen wurden dagegen in den Wintermonaten gemessen.

Die Spurenstoffe NH₄⁺-N, NO₃⁻-N, Pb²⁺ und SO₄²⁻-S erreichten die höchsten Konzentrationen im Niederschlagswasser während der Sommermonate, und zwar NH₄⁺-N im Juli mit annähernd 3 mg/l, NO₃⁻-N im Juni und Juli mit 1,2 bzw. 1,3 mg/l, Pb²⁺ im Juni mit 0,12 mg/l und SO₄²⁻-S ebenfalls in den Monaten Juni und Juli mit 3 mg/l.

Im Gegensatz zu den höheren Konzentrationen der Spurenstoffe NH₄⁺-N, NO₃⁻-N und SO₄²⁻-S in den Sommermonaten Mai bis August, stellt der Juniwert der Bleikonzentrationen keinen Mittelwert, sondern nur einen außergewöhnlich hohen Einzelwert dar.

Die Monatsmittelwerte der Chlorid- und Calciumkonzentrationen zeigten hingegen andere Verteilungen während des Zeitraumes.

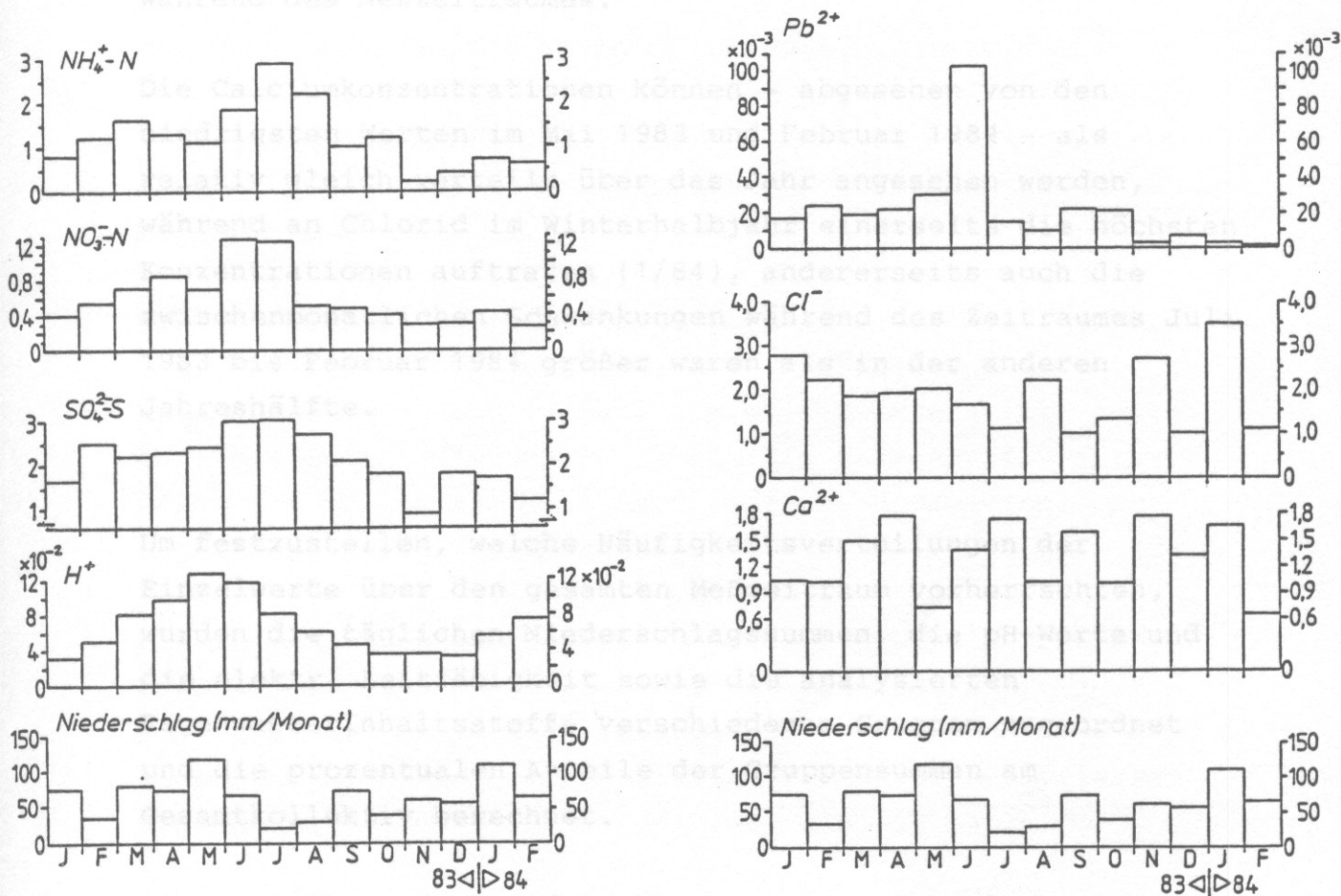


Abb. 66 Gewichtete Monatsmittelwerte von "wet-only" Spurenstoffkonzentrationen (in mg/l) an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

Das Verteilungsmaximum der pH-Werte entfällt mit 25 % der Gesamtwerte auf den Bereich pH = 3,8 - 4,0. pH-Werte zwischen pH = 3,4 - 3,6 wurden in 4 % der Fälle, solche über pH = 5,0 in nur 3 % der Fälle gemessen.

Die Werte der elektr. Leitfähigkeit erstreckten sich über eine Spanne von 10 - 300 $\mu S/cm$; der Bereich, in dem die

Die Monatsmittelwerte der Chlorid- und Calciumkonzentrationen zeigten hingegen andere Verteilungen während des Meßzeitraumes.

Die Calciumkonzentrationen können - abgesehen von den niedrigsten Werten im Mai 1983 und Februar 1984 - als relativ gleich verteilt über das Jahr angesehen werden, während an Chlorid im Winterhalbjahr einerseits die höchsten Konzentrationen auftraten (1/84), andererseits auch die zwischenmonatlichen Schwankungen während des Zeitraumes Juli 1983 bis Februar 1984 größer waren als in der anderen Jahreshälfte.

Um festzustellen, welche Häufigkeitsverteilungen der Einzelwerte über den gesamten Meßzeitraum vorherrschten, wurden die täglichen Niederschlagssummen, die pH-Werte und die elektr. Leitfähigkeit sowie die analysierten Regenwasserinhaltsstoffe verschiedenen Gruppen zugeordnet und die prozentualen Anteile der Gruppensummen am Gesamtkollektiv berechnet.

Die Verteilung der Niederschlagssummen zeigt ein Maximum mit über 55 % der Tage für den Niederschlagssummenbereich $> 0 - 6$ mm/d. Mit Größenzunahmen der Häufungsklasse nimmt der Anteil der Niederschlagssummen ab; für den Bereich $18 - 21$ mm/d konnte eine etwas höhere Anzahl der Werte ermittelt werden als in den benachbarten Gruppen.

Das Verteilungsmaximum der pH-Werte entfällt mit 25 % der Gesamtwerte auf den Bereich $\text{pH} = 3,8 - 4,0$. pH-Werte zwischen $\text{pH} = 3,4 - 3,6$ wurden in 4 % der Fälle, solche über $\text{pH} = 5,0$ in nur 3 % der Fälle gemessen.

Die Werte der elektr. Leitfähigkeit erstreckten sich über eine Spanne von $10 - 300 \mu\text{S/cm}$; der Bereich, in dem die

meisten Werte auftraten, lag zwischen 20 und 80 $\mu\text{S}/\text{cm}$, das Maximum in der Gruppe 50 - 60 $\mu\text{S}/\text{cm}$.

Die Gehalte an Sulfat-Schwefel im Niederschlagswasser reichten bis zu einer Konzentration von 11 mg/l; der größte Teil der Werte entfiel auf die Klassen 0,5 - 3,5 mg/l, wobei das Maximum der Häufigkeitsverteilung zwischen 2,0 - 2,5 mg/l mit über 20 % lag.

Die Konzentrationsspanne der Nitrat-Stickstoff-Konzentrationen erstreckte sich von > 0 bis 4,2 mg/l; Konzentrationen von 1,4 mg/l traten außerordentlich selten auf. Die größte Häufung wurde für die Konzentrationsklasse 0,2 - 0,6 mg/l ermittelt; über 40 % der Gesamtwerte entsprachen dieser Größenklasse.

Die NH_4^+ -N-Konzentrationen überdeckten einen Bereich zwischen 0,2 bis 5,0 mg/l, wobei sowohl eine Häufung der Werte bis zu 1,0 mg/l festzustellen war als auch eine solche zwischen 1,0 und 1,8 mg/l. Über 70 % aller analysierten Proben erreichten Werte von weniger als 1,8 mg/l.

Die Chloridkonzentrationen bewegten sich in einem Bereich von 0 bis 23 mg/l. In der Klasse zwischen 0,5 und 3,0 mg/l traten die meisten Werte auf.

Die Verteilung der Calciumkonzentrationen weist ein Häufungsmaximum für den Konzentrationsbereich 1,0 - 1,5 mg/l auf. 24 % aller Bochumer Werte entfallen auf diese Klasse. Abgesehen von einigen wenigen Ausnahmen liegen 85 % aller gemessenen Werte in der Gruppe $\geq 3,0$ mg/l.

Die Bleikonzentrationen erzielten Werte von bis zu 290 $\mu\text{g}/\text{l}$; ein Häufungsmaximum wurde für den Konzentrationsbereich 10 - 20 $\mu\text{g}/\text{l}$ mit über 37 % der analysierten Proben erreicht.

3.2 Spurenstoffdepositionen der 'wet-only'- Niederschläge

Die Spurenstoffdepositionen wurden aus den gewichteten Spurenstoffkonzentrationen und den monatlichen Niederschlagssummen berechnet und anschließend auf Tagessummenwerte reduziert.

Die Mittelwerte der Depositionsraten für den Meßzeitraum sind in Tab. 14 enthalten.

Hiernach wurden rund $3 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ Calcium, rund $5 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ Chlorid, $3,2 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ Ammonium-Stickstoff, $1,3 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ Nitrat-Stickstoff sowie $4,5 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ Sulfat-Schwefel dem Boden zugeführt. Blei und Wasserstoffionen wurden in einer Größenordnung von 67 bzw. $165 \text{ } \mu\text{g/m}^2 \text{ d}$ abgelagert.

Wie die Verhältniszahlen der Minima- und Maximawerte in Tab. 14 zeigen, kann insbesondere für die Spurenstoffe Blei, Chlorid und H^+ -Ionen nicht von einer gleichmäßig über das Jahr verteilten Ablagerung an diesem Meßstandort ausgegangen werden.

Den Verlauf der Monatsmittelwerte der 'wet-only'-Spurenstoffdepositionen zeigt Abb. 67.

Relativ hohe Depositionsraten wurden in den Frühjahrsmonaten erreicht, und zwar an $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ (zwischen 3 und $4 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$), $\text{NO}_3^- - \text{N}$ ($2 - 3 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$), $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ ($6 - 10 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) und H^+ ($0,20 - 0,50 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$).

Im Sommer, Herbst und Winter wurden - mit Ausnahme des Januar 1984 wegen der relativ hohen Monatsniederschlagssumme - wesentlich niedrigere Ablagerungsraten gemessen als oben aufgeführt. So lag die Depositionsrate an Blei - abgesehen von der der Monate Mai und Juni ($0,1 - 0,25 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$) - unter $0,1 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ und die an Chlorid über das Jahr zwischen 1 und

8 mg/m² d; im regenreichen Januar 1984 erreichte das Monatsmaximum an Chlorid dagegen mehr als 14 mg/m² d.

Die Calciumdeposition war über die einzelnen Monate des Jahres recht heterogen verteilt:

niedrigsten Werten zwischen 1 und 1,5 mg/m² d für die Monate Februar, Juli, August und Oktober 1983 sowie für den Februar 1984 stand der höchste Monatsmittelwert mit 6,3 mg/m² d im Januar 1984 gegenüber.

	H ⁺	SO ₄ ²⁻ -S	NO ₃ ⁻ -N	NH ₄ ⁺ -N	Cl ⁻	Ca ²⁺	Pb ²⁺
\bar{x}	0,165	4,47	1,32	3,23	5,04	2,98	0,067
Max	0,53	9,30	3,09	7,76	15,15	6,29	0,280
Min	0,064	2,27	0,57	1,53	1,31	1,09	0,0194
Min:Max = 1:	8,3	4,1	5,4	5,1	11,6	5,8	14,4

Tab. 14 Mittelwerte, Maxima und Minima von "wet-only" - Spurenstoffdepositionen an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984; in mg/m² . d)



Abb. 67 Monatsmittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffdepositionen (in mg/m² d) an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

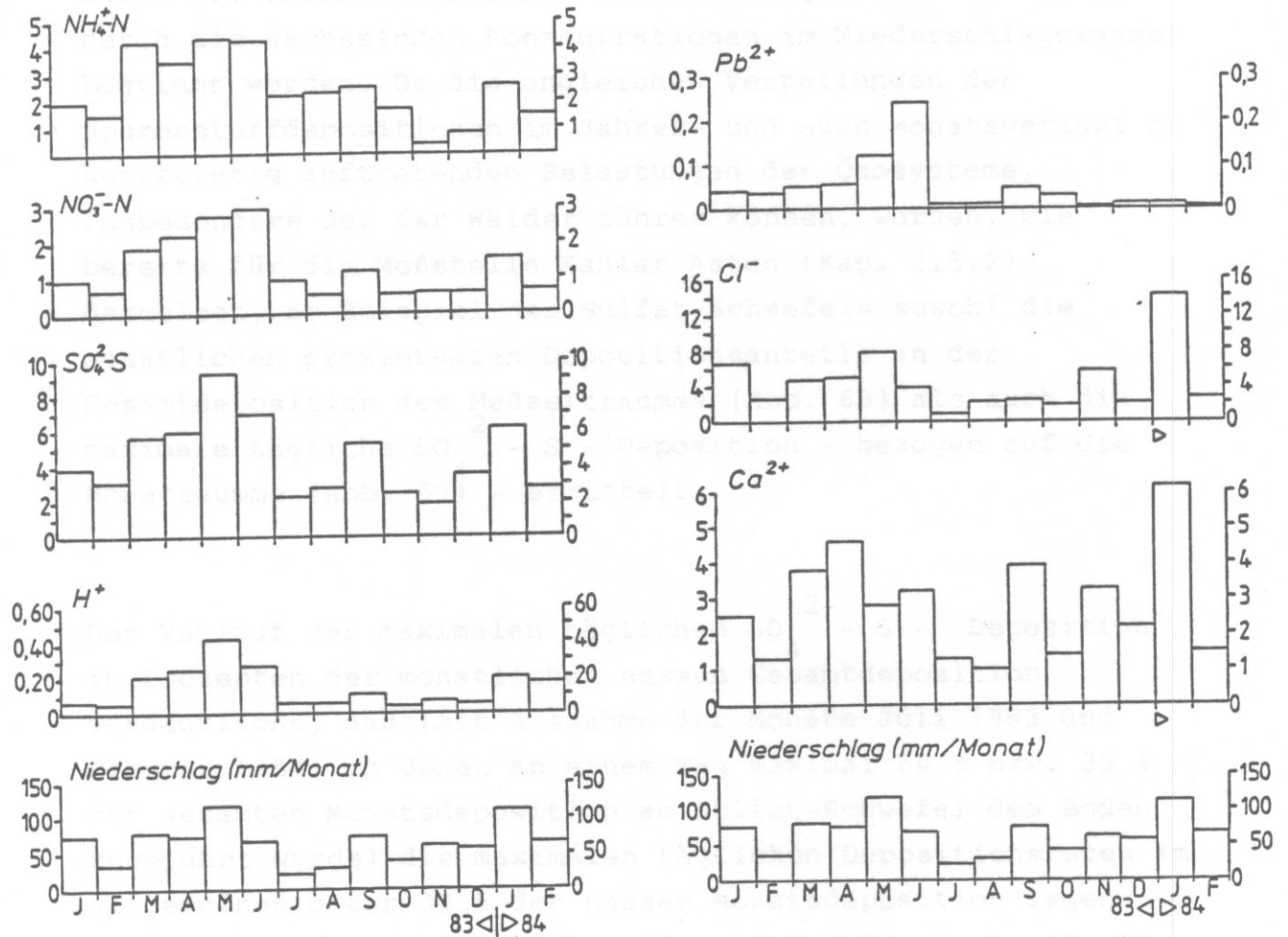


Abb. 67 Monatsmittelwerte von "wet-only" - Spurenstoffdepositionen (in mg/m² d) an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

3.2.1 Episoden nasser Spurenstoffdepositionen

Die feuchten Spurenstoffdepositionen sind weder über das Jahr noch innerhalb eines Monats gleich verteilt, sondern unterliegen zum Teil relativ großen Schwankungen, die primär durch die unterschiedlichen Niederschlagssummen und sekundär durch die wechselnden Konzentrationen im Niederschlagswasser bestimmt werden. Da die ungleichen Verteilungen der Spurenstoffdepositionen im Jahres- und auch Monatsverlauf zu kurzfristig auftretenden Belastungen der Ökosysteme, insbesondere der der Wälder führen können, wurden, wie bereits für die Meßstelle Kahler Asten (Kap. 2.5.2) dargelegt, am Beispiel des Sulfat-Schwefels sowohl die monatlichen prozentualen Depositionsanteile an der Gesamtdeposition des Meßzeitraumes (Abb. 68) als auch die maximale tägliche SO_4^{2-} - S - Deposition - bezogen auf die Monatssumme (Abb. 69) - ermittelt.

Der Verlauf der maximalen täglichen SO_4^{2-} - S - Deposition in Prozenten der monatlichen nassen Gesamtdeposition verdeutlicht, daß (mit Ausnahme der Monate Juli 1983 und Februar 1984, in denen an einem Tag maximal 60 % bzw. 35 % der gesamten Monatsdeposition an Sulfat-Schwefel dem Boden zugeführt wurde) die maximalen täglichen Depositionsraten im allgemeinen unter 30 % der nassen Monatsdeposition lagen. Im April und September sanken sie sogar auf weniger als 10 %, in den Monaten Februar, Juni, August und Oktober 1983 sowie Januar 1984 erreichten sie etwa 20 %. Die mittlere maximale tägliche SO_4^{2-} - S - Depositionsrate wurde zu 21,4 % bestimmt.

Derjenige Monat, in dem der größte Teil des Schwefels an der Gesamtdeposition über die feuchte Spurenstoffsenke an der Station Bochum abgelagert wurde (Abb. 68), war der Mai 1983 mit über 15 %. Die geringsten Werte traten im trockenen

Sommer 1983 im Juli und August mit 3,8 % bzw. 4,5 % auf. Der eingetragene Verlauf der prozentualen Niederschlagssummen, bezogen auf die Gesamtsumme des Meßzeitraumes, zeigt den engen Zusammenhang zwischen der monatlichen Schwefeldepositionsrate und den entsprechenden Niederschlagssummen.

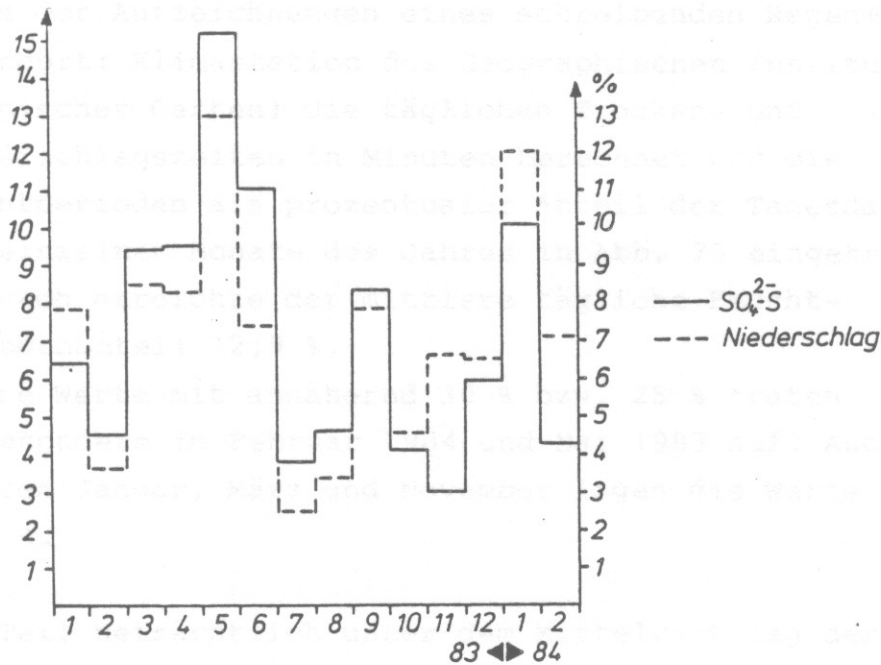


Abb. 68 Monatlicher prozentualer Anteil der SO_4^{2-} -S-Deposition an der "wet-only"-Gesamtdeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

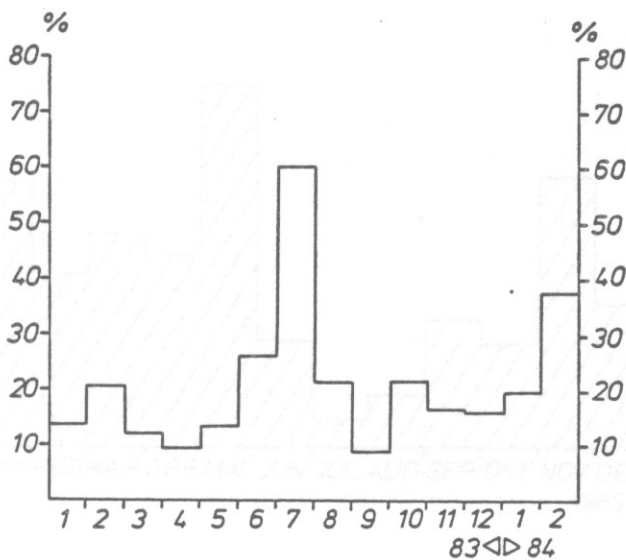


Abb. 69 Maximale tägliche SO_4^{2-} -S-Deposition in Prozenten der monatlichen "wet-only" - Gesamtdeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

3.3 Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feucht- und Trockenperioden

Um festzustellen, wie lange Feucht- und Trockenperioden während des Untersuchungszeitraumes andauerten, wurden mit Hilfe der Aufzeichnungen eines schreibenden Regenmessers (Standort: Klimastation des Geographischen Instituts, Botanischer Garten) die täglichen Trocken- und Niederschlagszeiten in Minuten berechnet und die Feuchtperioden als prozentualer Anteil der Tagesdauer für die einzelnen Monate des Jahres in Abb. 70 eingetragen. Hiernach erreichte der mittlere tägliche Feuchtperiodenanteil 12,9 %. Höhere Werte mit annähernd 30 % bzw. 25 % traten insbesondere im Februar 1984 und Mai 1983 auf. Auch in den Monaten Januar, März und November lagen die Werte über 12,9 %. Zum Teil beträchtlich unter dem Mittelwert lag der Feuchtperiodenanteil in den Monaten Juni bis Oktober, wobei sich im Juli der außerordentlich niedrige Wert von nur 1,8 % ergab. Aber auch im Februar und Dezember 1983 sowie im Januar 1984 war der Mittelwert unterschritten.

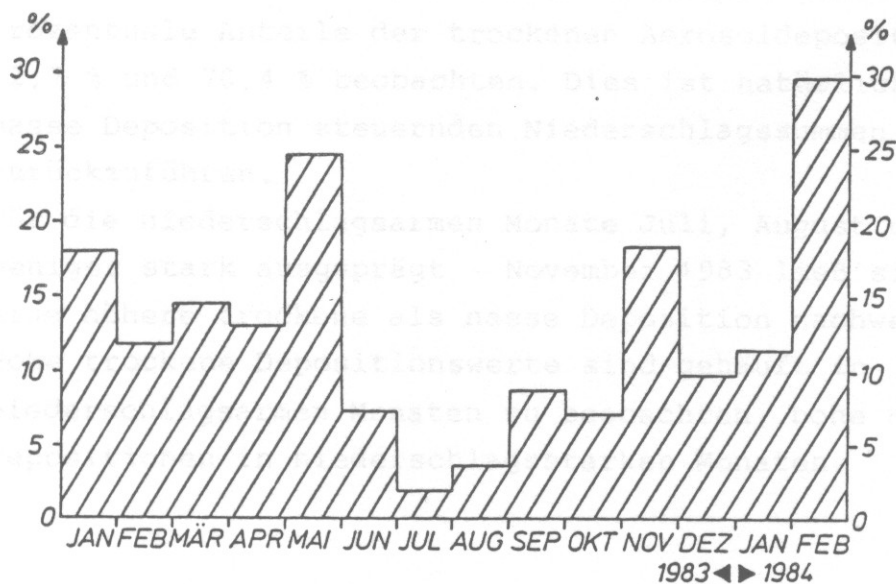


Abb. 70 Mittlerer täglicher prozentualer Anteil an Feuchtperioden an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

3.4 Gesamtablagerung trockener und nasser Spurenstoffe

Für die mit dem Trocken-/Naßsammler aufgefangenen Spurenstoffe Sulfat, Nitrat und Chlorid wurden während des Meßzeitraumes (1/83 bis 2/84) die dem Boden zugeführten gesamten Ablagerungen aus den trockenen und nassen Depositionen auf Monatsbasis berechnet.

Abb. 71 zeigt den Verlauf der (trockenen und nassen) SO_4^{2-} -S - Gesamtdeposition sowie die prozentualen Anteile der trockenen Aerosoldepositionen an der Gesamtdeposition. Im Durchschnitt lag die tägliche trockene und nasse SO_4^{2-} -S - Ablagerung bei $6,6 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; höchste Werte wurden im Mai 1983 und Januar 1984 festgestellt, wo $10,65 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ bzw. $9,41 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$ niedergingen.

Während jedoch der hohe Wert des Monats Mai zu rund 87,3 % durch die nasse Deposition und nur zu 12,7 % durch die trockene Deposition verursacht war, erreichte der Anteil der trockenen Deposition im Januar 1984 34,3 %, so daß 65,7 % des Sulfat-Schwefels auf feuchtem Wege abgelagert wurden. Das Verhältnis der Werte von trockener zu nasser Ablagerung ist außerordentlich unregelmäßig auf die Monate des Jahres verteilt. So lassen sich in den einzelnen Monaten prozentuale Anteile der trockenen Aerosoldeposition zwischen 12,7 % und 70,4 % beobachten. Dies ist natürlich auf die die nasse Deposition steuernden Niederschlagssummen zurückzuführen.

Für die niederschlagsarmen Monate Juli, August und - etwas weniger stark ausgeprägt - November 1983 ließ sich sogar eine höhere trockene als nasse Deposition nachweisen. Hohe trockene Depositionswerte sind gehäuft in niederschlagsarmen Monaten zu beobachten, hohe nasse Depositionen in niederschlagsstarken Monaten.

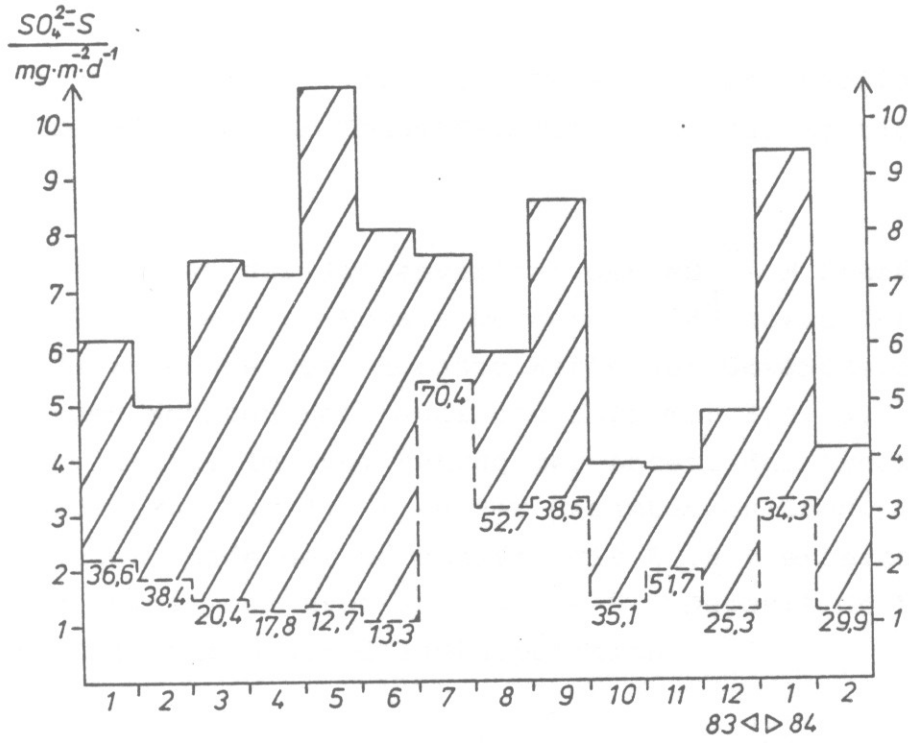


Abb. 71 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an $SO_4^{2-}-S$ (Aerosolsulfat plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

Im Mittel ist die trockene Aerosol-Spurenstoffdeposition zu rund 34 % an der Gesamtdeposition an der Station Bochum beteiligt.

Abb. 72 ist der Jahresverlauf der NO_3^- -N Gesamtdeposition mit Ausnahme der Monate Dezember 1983 sowie Februar und März 1984 zu entnehmen. Höchste Werte der Gesamtdeposition wurden in den Monaten Mai, Juni und Juli mit 3,4, 3,2 und 2,8 mg/m^2 d erreicht. Im Juni betrug der Anteil der trockenen Deposition nur 4,3 % an der Gesamtdeposition, im Juli dagegen wurde der Höchstwert mit 65,5 % erreicht. Der Anteil der trockenen NO_3^- -N - Deposition betrug im Mittel 26,8 % der Gesamtdeposition.

Einen etwa gleich hohen Anteil wie der Spurenstoff NO_3^- -N, besaß **Chlorid** mit einem mittleren Trockenablagerungswert von 29,2 % an der Gesamtdeposition (Abb. 73).

An Chlorid wurden im Durchschnitt 5,14 mg/m^2 d abgelagert, wobei im Mai 1983 der höchste Monatswert 8,8 mg/m^2 d betrug. An diesem Wert war die trockene Deposition jedoch nur zu 10,4 % beteiligt.

Der größte Anteil der trockenen Deposition wurde dagegen im niederschlagsarmen Monat Juli 1983 mit 56,6 % erreicht. Die Monate November, Dezember 1983 und Januar 1984 konnten wegen mehrerer Meßausfälle nicht berücksichtigt werden.

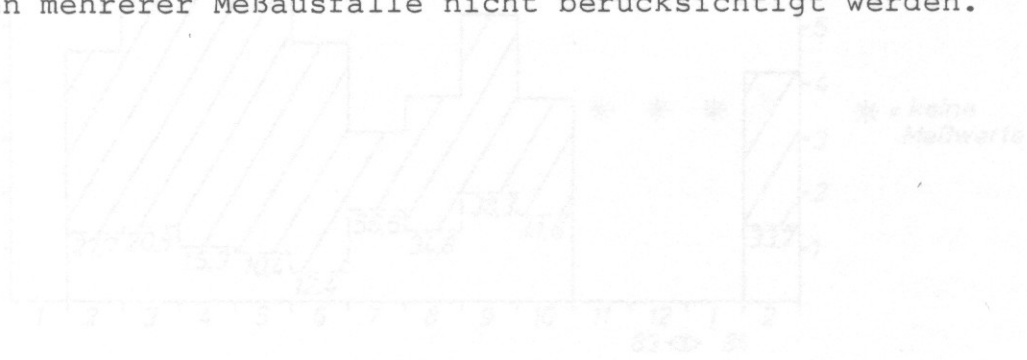


Abb. 73 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an Cl^- (Aerosolchlorid plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Bochum (2/1983 - 2/1984)

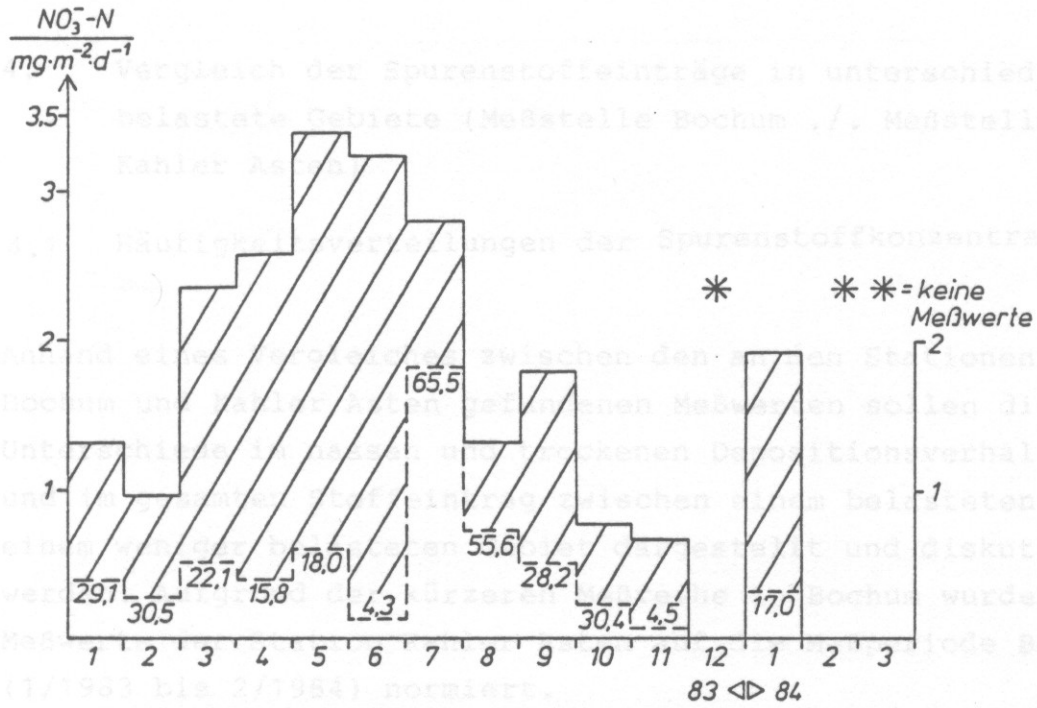


Abb. 72 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an $NO_3^- - N$ (Aerosolnitrat plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

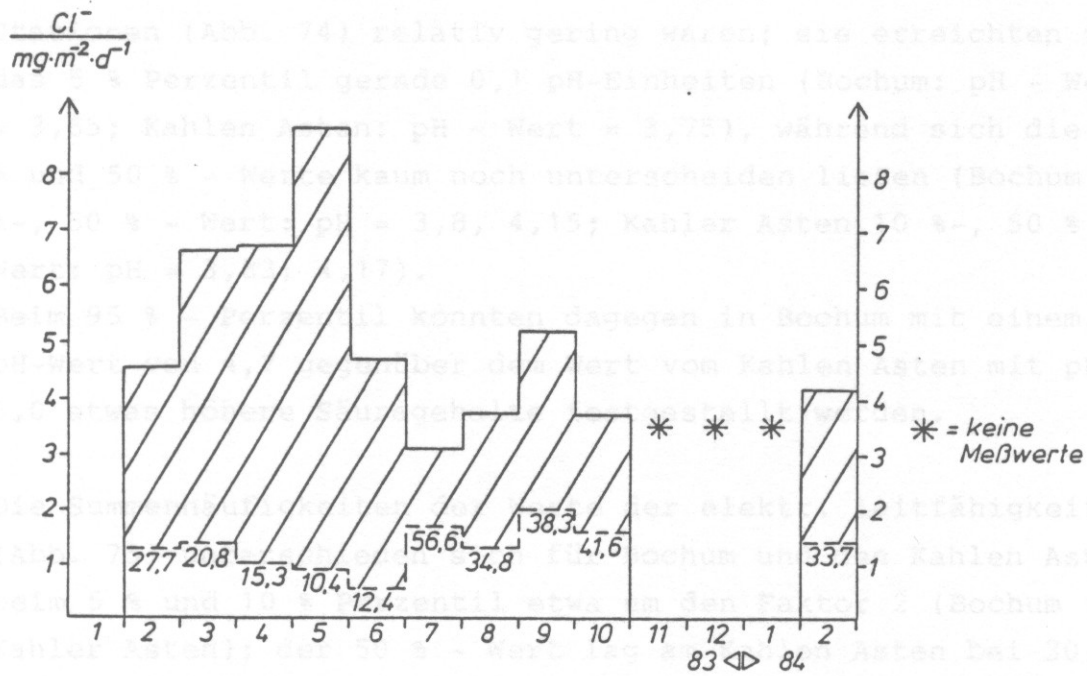


Abb. 73 Mittlere monatliche Gesamtdeposition an Cl^- (Aerosolchlorid plus "wet-only") sowie prozentualer Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Station Bochum (2/1983 - 2/1984)

4. Vergleich der Spurenstoffeinträge in unterschiedlich belastete Gebiete (Meßstelle Bochum ./ . Meßstelle Kahler Asten)

4.1 Häufigkeitsverteilungen der Spurenstoffkonzentrationen

Anhand eines Vergleiches zwischen den an den Stationen Bochum und Kahler Asten gefundenen Meßwerten sollen die Unterschiede im nassen und trockenen Depositionsverhalten und im gesamten Stoffeintrag zwischen einem belasteten und einem weniger belasteten Gebiet dargestellt und diskutiert werden. Aufgrund der kürzeren Meßreihe in Bochum wurden die Meßwerte der Station Kahler Asten auf die Meßperiode Bochums (1/1983 bis 2/1984) normiert.

Die Analyse der Häufigkeitsverteilungen ergab, daß die Unterschiede der Summenhäufigkeiten der pH - Werte an beiden Stationen (Abb. 74) relativ gering waren; sie erreichten für das 5 % Perzentil gerade 0,1 pH-Einheiten (Bochum: pH - Wert = 3,65; Kahler Asten: pH - Wert = 3,75), während sich die 10 % und 50 % - Werte kaum noch unterscheiden ließen (Bochum 10 %-, 50 % - Wert: pH = 3,8, 4,15; Kahler Asten 10 %-, 50 % - Wert: pH = 3,83; 4,17).

Beim 95 % - Perzentil konnten dagegen in Bochum mit einem pH-Wert von 4,7 gegenüber dem Wert vom Kahler Asten mit pH = 5,0 etwas höhere Säuregehalte festgestellt werden.

Die Summenhäufigkeiten der Werte der elektr. Leitfähigkeit (Abb. 75) unterschieden sich für Bochum und den Kahler Asten beim 5 % und 10 % Perzentil etwa um den Faktor 2 (Bochum : Kahler Asten); der 50 % - Wert lag am Kahler Asten bei 30 $\mu\text{S/cm}$, in Bochum bei 55 $\mu\text{S/cm}$, der 95 % Wert in Bochum bei 140 $\mu\text{S/cm}$ und auf dem Kahler Asten bei 95 $\mu\text{S/cm}$.

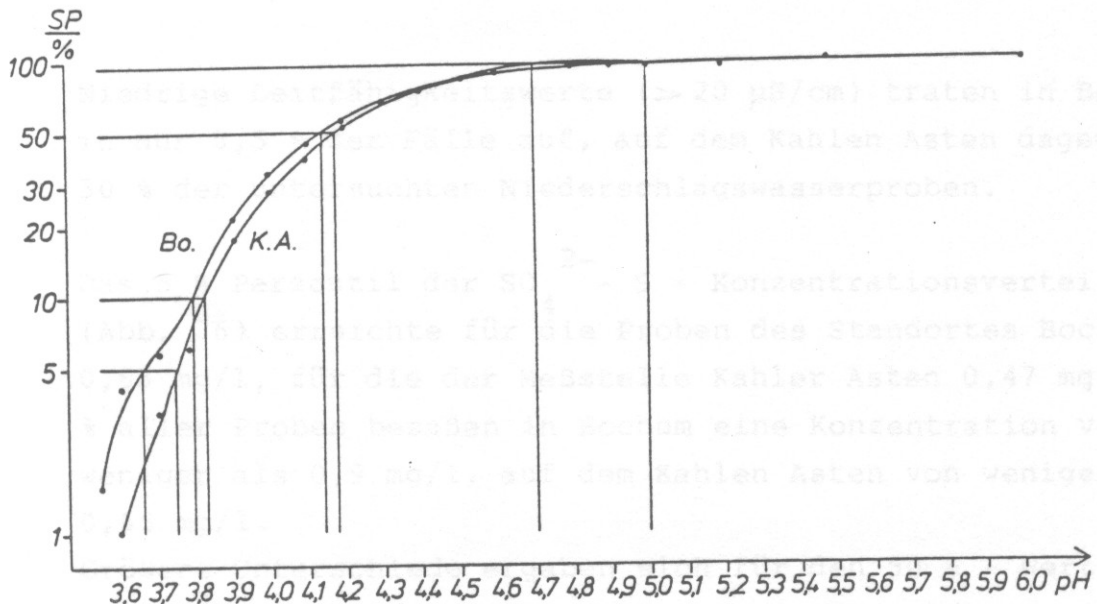


Abb. 74 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der pH-Werte an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

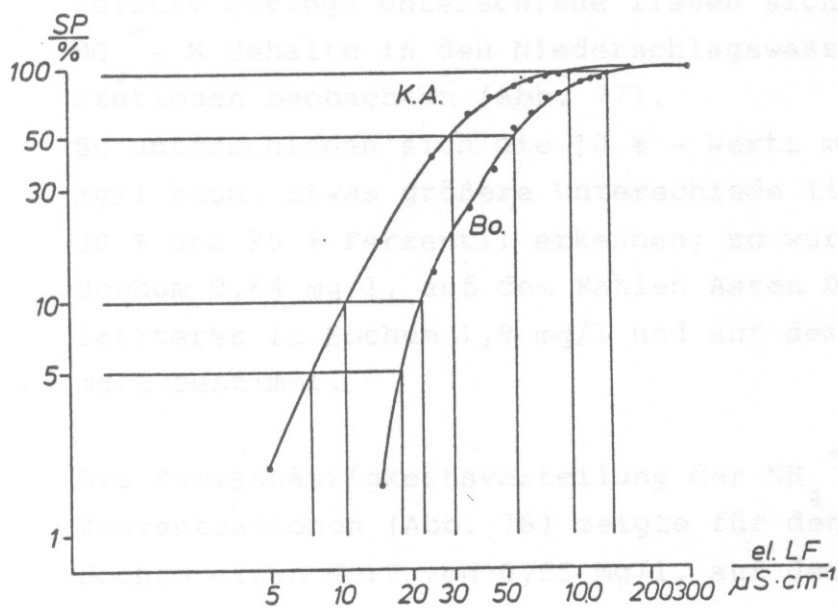


Abb. 75 Kumulative Häufigkeitsverteilungen der elektrischen Leitfähigkeiten an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

Niedrige Leitfähigkeitswerte ($> 20 \mu\text{S}/\text{cm}$) traten in Bochum in nur 6,5 % der Fälle auf, auf dem Kahlen Asten dagegen bei 30 % der untersuchten Niederschlagswasserproben.

Das 5 % Perzentil der SO_4^{2-} - S - Konzentrationsverteilung (Abb. 76) erreichte für die Proben des Standortes Bochum 0,65 mg/l, für die der Meßstelle Kahler Asten 0,47 mg/l; 10 % aller Proben besaßen in Bochum eine Konzentration von weniger als 0,9 mg/l, auf dem Kahlen Asten von weniger als 0,65 mg/l.

Größere Unterschiede ergaben sich für den 50 % - Wert, der in Bochum 2,3 mg/l und am Kahlen Asten 1,2 mg/l erreichte. Das 95 % - Perzentil wurde für Bochum zu 5,75 mg/l, am Kahlen Asten zu 3,2 mg/l bestimmt.

Relativ geringe Unterschiede ließen sich beim Vergleich der NO_3^- - N Gehalte in den Niederschlagswasserproben beider Stationen beobachten (Abb. 77).

So unterschieden sich die 10 % - Werte mit 0,21 bzw. 0,24 mg/l kaum. Etwas größere Unterschiede ließen sich für das 50 % und 95 % Perzentil erkennen; so wurden für ersteres in Bochum 0,64 mg/l, auf dem Kahlen Asten 0,44 mg/l und für letzteres in Bochum 1,9 mg/l und auf dem Kahlen Asten 1,3 mg/l bestimmt.

Die Summenhäufigkeitsverteilung der NH_4^+ - N - Konzentrationen (Abb. 78) zeigte für den 10 % - Wert in Bochum einen Wert von 0,55 mg/l, auf dem Kahlen Asten von 0,34 mg/l.

50 % der Konzentrationen erreichten in Bochum 1,3 mg/l, an der Station Kahler Asten 0,8 mg/l. Das 95 %-Perzentil wurde für Bochum zu 3,6 mg/l und für den Kahlen Asten zu 2,5 mg/l errechnet.

Niedrige Konzentrationen ($< 1 \text{ mg/l}$) an Ammonium-Stickstoff traten demnach in Bochum nur in 34 % der Proben auf; auf dem Kahlen Asten wurden dagegen 65 % erreicht.

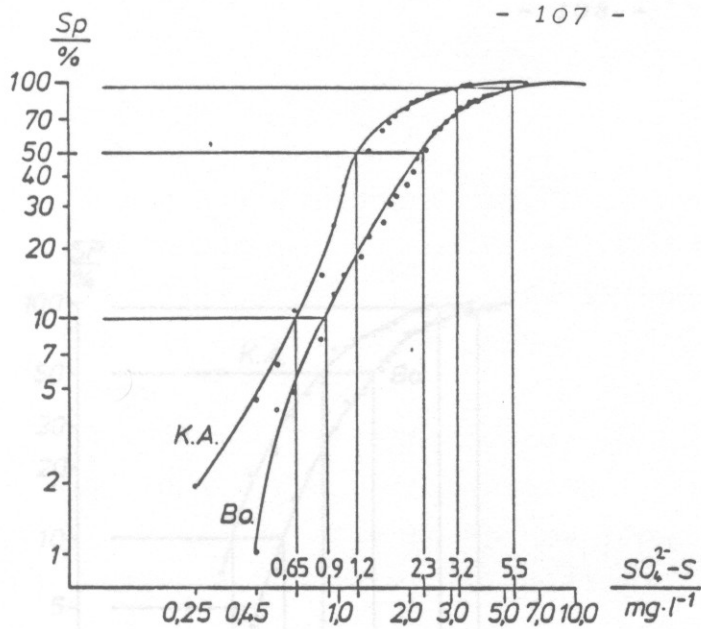


Abb. 76 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der SO_4^{2-} - S - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

Abb. 77 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der NO_3^- - N - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

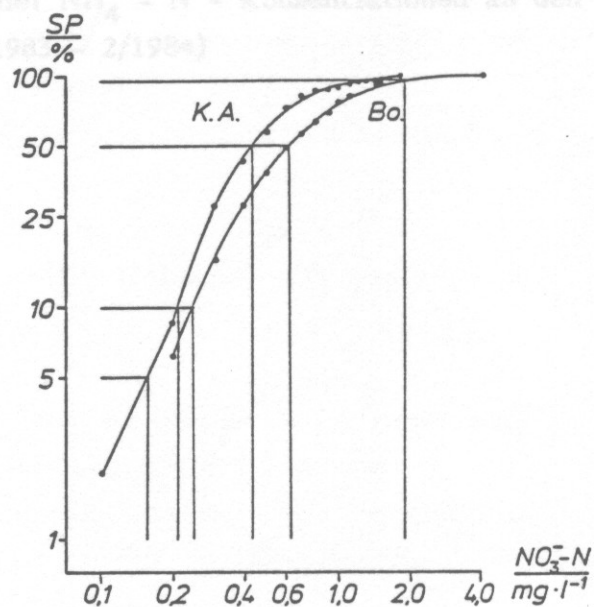


Abb. 77 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der NO_3^- - N - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

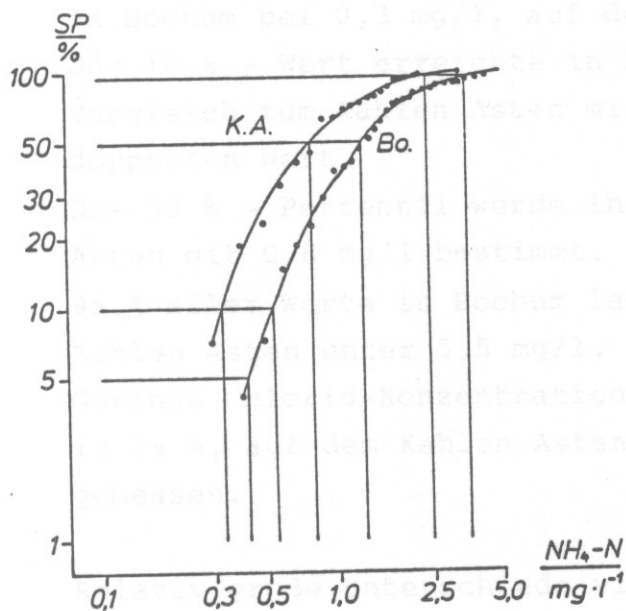


Abb. 78 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der NH_4^+ - N - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

5 % - Perzentil der Calciumkonzentrationen (Abb. 79) lag in Bochum bei 0,1 mg/l, auf dem Kahler Asten bei 0,17 mg/l. Das 10 % - Perzentil wurde in Bochum mit 0,46 mg/l im Vergleich mit dem Kahler Asten mit 0,2 mg/l mehr als den doppelten Gehalt erreicht. Das 30 % - Perzentil wurde in Bochum zu 2,0 mg/l, am Kahler Asten zu 1,0 mg/l erreicht. Die 50 % - Perzentile in Bochum lagen unter 7,8 mg/l, auf dem Kahler Asten unter 1,5 mg/l. Die 100 % - Konzentrationen (∞ mg/l) wurden in Bochum mit 4,4 mg/l erreicht, der Kahler Asten dagegen in 47 % der Fälle mit 1,6 mg/l.

Es wird festgestellt werden, daß zum Beispiel sehr niedrige Ca^{2+} - Konzentrationen (von weniger als 1 mg/l) an der Station Bochum in nur 31 % der Tagesniederschläge beobachtet wurden, während gerade diese geringen Ca^{2+} - Gehalte am Kahler Asten mit 95 % der Sommerhäufigkeit eher die Regel waren.

Das 5 % - Perzentil der Chloridkonzentrationen (Abb. 79) lag in Bochum bei 0,3 mg/l, auf dem Kahlen Asten bei 0,17 mg/l. Der 10 % - Wert erreichte in Bochum mit 0,46 mg/l im Vergleich zum Kahlen Asten mit 0,2 mg/l mehr als den doppelten Wert.

Das 50 % - Perzentil wurde in Bochum zu 2,0 mg/l, am Kahlen Asten mit 0,8 mg/l bestimmt.

95 % aller Werte in Bochum lagen unter 7,8 mg/l, auf dem Kahlen Asten unter 5,5 mg/l.

Geringe Chlorid-Konzentrationen (<1 mg/l) wurden in Bochum in 24 %, auf dem Kahlen Asten dagegen in 57 % der Fälle gemessen.

Relativ große Unterschiede wiesen auch die Summenhäufigkeiten der Calciumkonzentrationen (Abb. 80) an beiden Stationen auf. Während auf dem Kahlen Asten 5 % der Proben Ca^{2+} - Konzentrationen unter 0,3 mg/l, in Bochum unter 0,13 mg/l aufwiesen, der 10 % - Wert in Bochum bei 0,46 mg/l, am Kahlen Asten bei 0,16 mg/l lag, erreichte das 50 % - Perzentil in Bochum 1,4 mg/l und am Kahlen Asten 0,42 mg/l (Verhältnis: 3,3 : 1).

95 % des Probengutes wiesen in Bochum Gehalte auf von weniger als 4,4 mg/l, am Kahlen Asten dagegen nur von 1,6 mg/l.

Es kann festgestellt werden, daß zum Beispiel sehr niedrige Ca^{2+} - Konzentrationen (von weniger als 1 mg/l) an der Station Bochum in nur 32 % der Tagesniederschläge beobachtet wurden, während gerade diese geringen Ca^{2+} - Gehalte am Kahlen Asten mit 85 % der Summenhäufigkeit eher die Regel waren.

Abb. 80 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der Ca^{2+} - Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

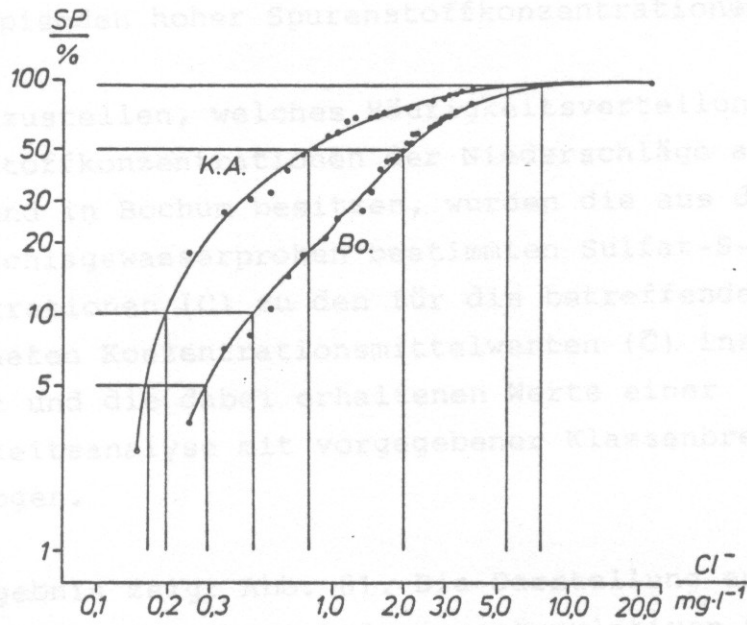


Abb. 79 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der Cl^- -Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

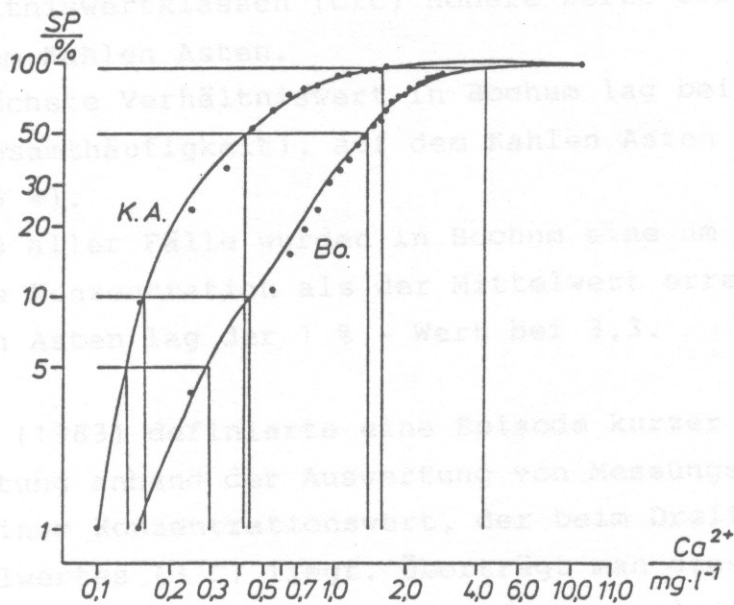


Abb. 80 Kumulative Häufigkeitsverteilungen (SP) der Ca^{2+} -Konzentrationen an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

4.2 Episoden hoher Spurenstoffkonzentrationen in rund 2,5 % der Niederschlagsfälle auf.

Um festzustellen, welches Häufigkeitsverteilungsmuster die Spurenstoffkonzentrationen der Niederschläge auf dem Kahlen Asten und in Bochum besitzen, wurden die aus den täglichen Niederschlagswasserproben bestimmten Sulfat-S-Konzentrationen (C) zu den für die betreffenden Standorte berechneten Konzentrationsmittelwerten (\bar{C}) ins Verhältnis gesetzt und die dabei erhaltenen Werte einer Häufigkeitsanalyse mit vorgegebener Klassenbreite von 0,25 unterzogen.

Das Ergebnis zeigt Abb. 81. Die Darstellung endet für die Werte beider Stationen bei einem kumulativen Summenwert von 50 %; dies geschah deshalb, weil nur die Häufigkeiten besonders hoher Konzentrationsverhältnisse von ökologischer Relevanz sind.

Der Darstellung ist zu entnehmen, daß in Bochum für alle Verhältniswertklassen (C/\bar{C}) höhere Werte erreicht werden als auf dem Kahlen Asten.

Der höchste Verhältniswert in Bochum lag bei 4,02 (= 0,8 % der Gesamthäufigkeit), auf dem Kahlen Asten bei 3,8 (= 0,6 %).

In 1 % aller Fälle wurden in Bochum eine um rund 3,8-fach höhere Konzentration als der Mittelwert erreicht, für den Kahlen Asten lag der 1 % - Wert bei 3,3.

SMITH (1983) definierte eine Episode kurzer aber hoher Belastung anhand der Auswertung von Messungen in Norwegen mit einem Konzentrationswert, der beim Dreifachen des Mittelwertes ($3C$) liegt. Überträgt man dieses von SMITH willkürlich festgesetzte Maß auf die vorliegenden, für die Stationen Kahler Asten und Bochum ermittelten Ergebnisse (Abb. 81), so trat ein $3C$ -Wert am Kahlen Asten in etwa 1,5

% der Niederschlagsfälle, ein solcher in Bochum in rund 2,5 % der Niederschlagsfälle auf.

Niederschlagsepisoden

Das bedeutet, daß auf dem Kahlen Asten an 1,5 % der Regentage und in Bochum an 2,5 % der Regentage damit zu rechnen ist, daß Sulfatkonzentrationen im Niederschlagswasser auftreten, die dreimal so hoch sind wie die für die beiden Stationen über den Meßzeitraum berechneten Mittelwerte.

Während der höchste mittlere Wert mit 38,4 % (11,6 Stunden) der Tagesdauer auf dem Kahlen Asten im Monat Januar 1983 auftrat, wurden in Bochum im Februar 1984 maximal 29,9 % (7,7 Stunden) erreicht.

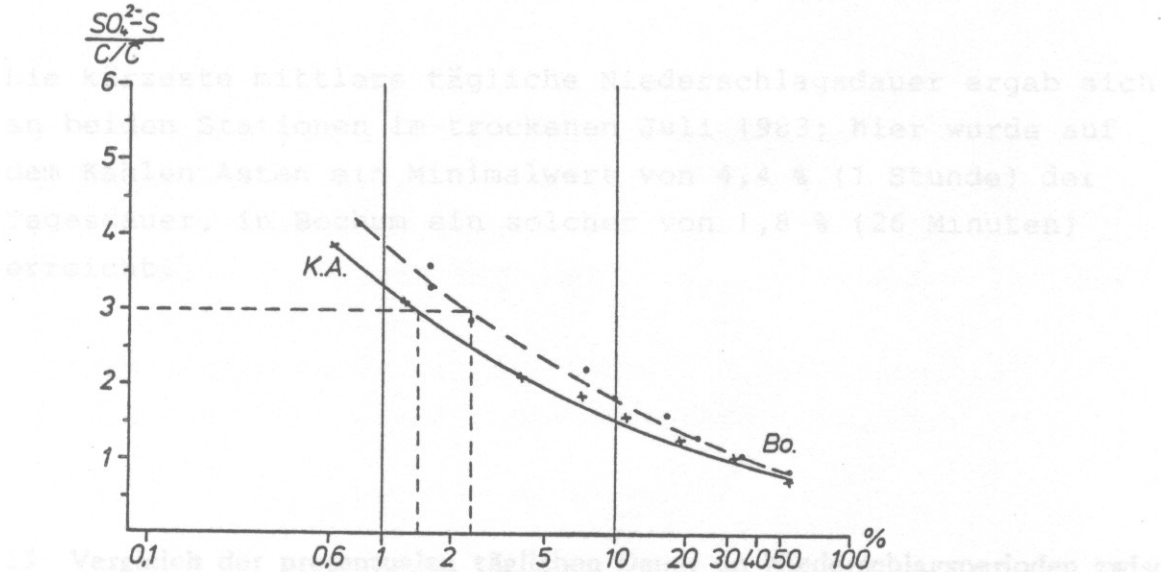


Abb. 81 Verhältnswerte zwischen den $SO_4^{2-} S$ - Konzentrationen täglicher Niederschlagswasserproben (C) und den daraus berechneten Mittelwerten (\bar{C}) der Meßstationen Bochum und Kahler Asten in Summenprozenten (1/1983 - 2/1984)

	Max.	Min.	Max.	Min.
Kahler Asten	38,4	4,4	1/83	7/83
Bochum	29,9	1,8	2/84	7/83

4.3 Mittlere tägliche Dauer an Niederschlagsepisoden

Um festzustellen, wie repräsentativ die während der Messzeiträume auf dem Kahlen Asten und an der Station Bochum sind, wurden an der Messstelle Bochum 94 1/2 Wärend der höchste mittlere Wert mit 48,4 % (11,6 Stunden) der Tagesdauer auf dem Kahlen Asten im Monat Januar 1983 auftrat, wurden in Bochum im Februar 1984 maximal 29,9 % (7,2 Stunden) erreicht.

Die kürzeste mittlere tägliche Niederschlagsdauer ergab sich an beiden Stationen im trockenen Juli 1983; hier wurde auf dem Kahlen Asten ein Minimalwert von 4,4 % (1 Stunde) der Tagesdauer, in Bochum ein solcher von 1,8 % (26 Minuten) erreicht.

Auch in diesen Fall kann der gesamte Messzeitraum als repräsentativ für Langfristwerte angesehen werden.

Tab. 15 Vergleich der prozentualen täglichen Dauer an Niederschlagsperioden zwischen den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)

	\bar{x}	Max.	Min.	Eintrittszeit	
				Max.	Min.
Kahler Asten	21,5	48,4	4,4	1/83	7/83
Bochum	12,9	29,9	1,8	2/84	7/83

4.4 Repräsentativität der Niederschlagssummen

Um festzustellen, wie repräsentativ die während der beiden Meßzeiträume auf dem Kahlen Asten und an der Station Bochum gefallenen Niederschlagssummen waren, wurden die aktuellen Werte der entsprechenden Meßzeiträume mit den langjährigen verglichen.

Im Untersuchungszeitraum wurden an der Meßstelle Bochum 94 % der langjährigen Niederschlagssummen erreicht.

Eine Aussage über die nasse Spurenstoffdeposition für den Untersuchungszeitraum kann damit als repräsentativ angesehen werden.

Auch an der Station Kahler Asten stimmte die langjährige Niederschlagssumme mit der aktuellen des Untersuchungszeitraumes gut überein. Letztere lag nur um 2 % unter dem langjährigen Wert der Niederschlagssumme für den Untersuchungszeitraum.

Auch in diesem Fall kann der gesamte Meßzeitraum als repräsentativ für Langfristwerte angesehen werden.

4.5 Kumulative Niederschlagssummen und Spurenstoffdepositionen

Damit der Stoffeintrag an beiden Standorten besser miteinander verglichen werden kann, wurden jeweils Summenkurven für den gesamten Meßzeitraum aus den Monatssummen der Niederschläge und den entsprechenden Spurenstoffdepositionen gebildet.

In Abb. 82 und 83 sind die addierten Monatssummen der Niederschläge und der Spurenstoffdepositionen enthalten. Der Darstellung ist zu entnehmen, daß der Kahle Asten mit 1724

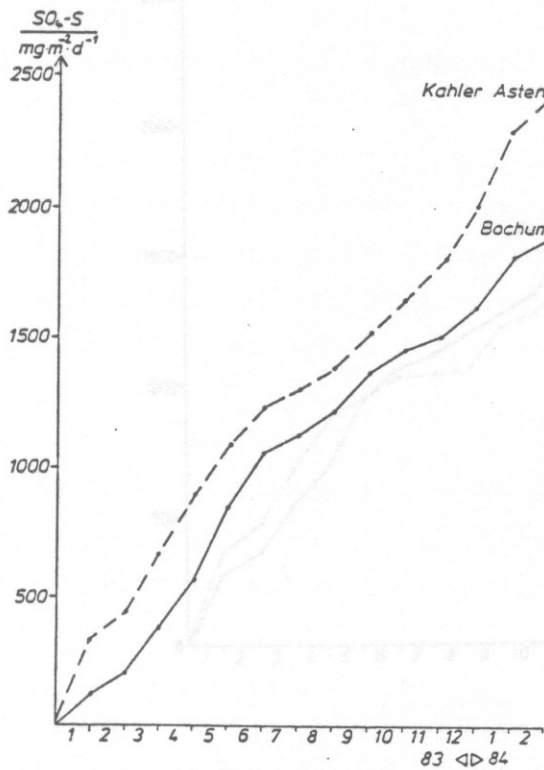
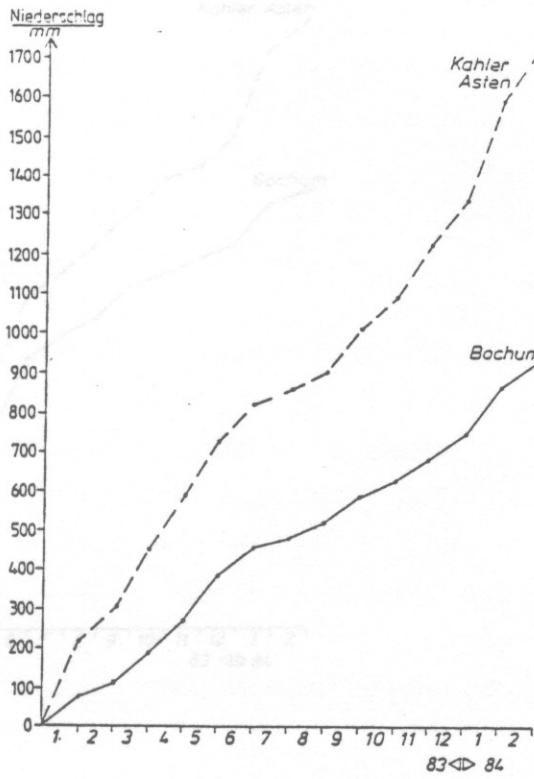


Abb. 82 Kumulative Niederschlagssummen und Spurenstoffdepositionen ($\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$) an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)

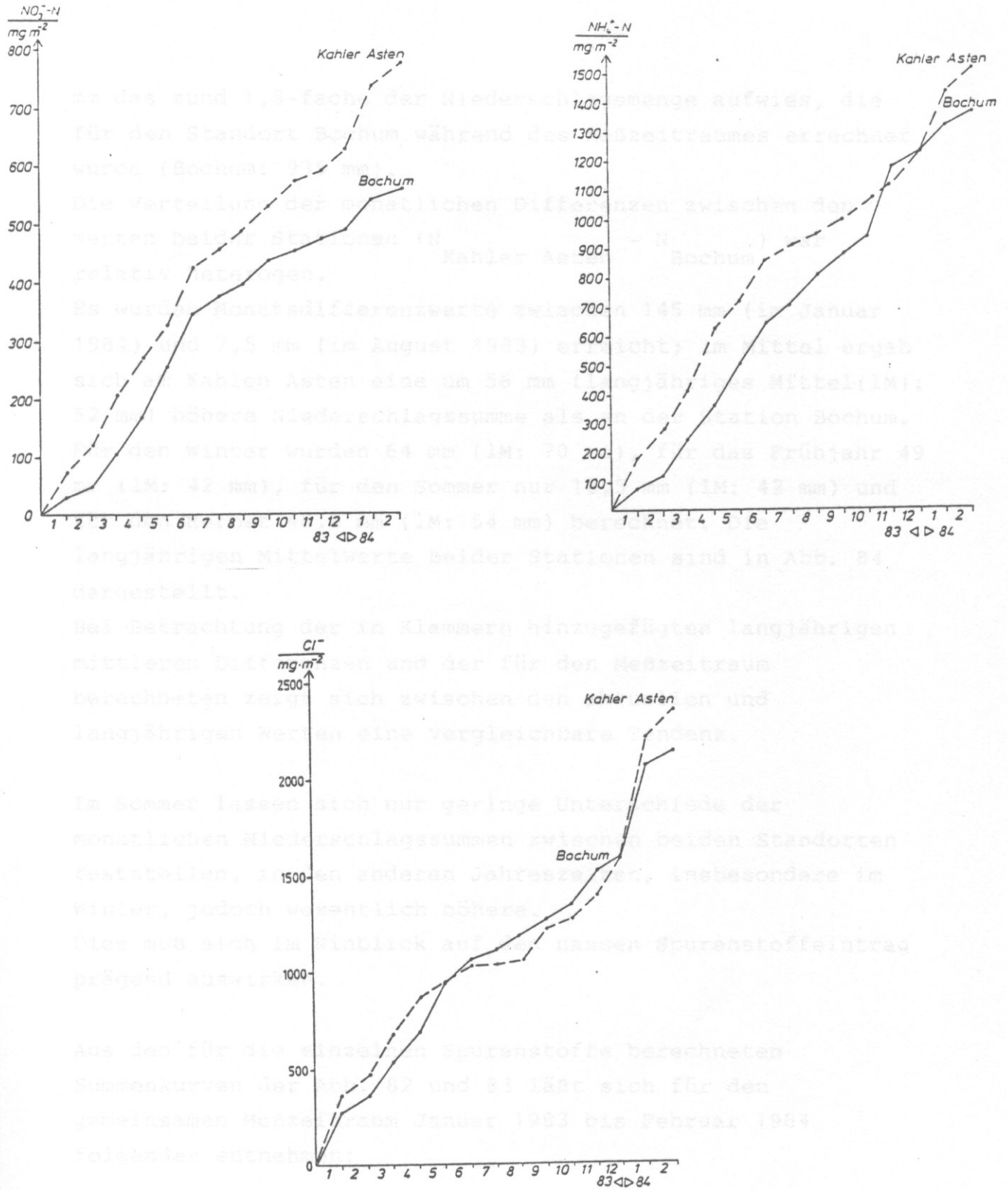


Abb. 83 Kumulative Spurenstoffdepositionen ($\text{NO}_3^- - \text{N}$, $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, Cl^-) an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)

mm das rund 1,8-fache der Niederschlagsmenge aufwies, die für den Standort Bochum während des Meßzeitraumes errechnet wurde (Bochum: 935 mm).

Die Verteilung der monatlichen Differenzen zwischen den Werten beider Stationen ($N_{\text{Kahler Asten}} - N_{\text{Bochum}}$) war relativ heterogen.

Es wurden Monatsdifferenzwerte zwischen 145 mm (im Januar 1984) und 7,5 mm (im August 1983) erreicht; im Mittel ergab sich am Kahlen Asten eine um 56 mm (langjähriges Mittel (LM): 52 mm) höhere Niederschlagssumme als an der Station Bochum. Für den Winter wurden 64 mm (LM: 70 mm), für das Frühjahr 49 mm (LM: 42 mm), für den Sommer nur 16,5 mm (LM: 42 mm) und für den Herbst 48,5 mm (LM: 54 mm) berechnet. Die langjährigen Mittelwerte beider Stationen sind in Abb. 84 dargestellt.

Bei Betrachtung der in Klammern hinzugefügten langjährigen mittleren Differenzen und der für den Meßzeitraum berechneten zeigt sich zwischen den aktuellen und langjährigen Werten eine vergleichbare Tendenz.

Im Sommer lassen sich nur geringe Unterschiede der monatlichen Niederschlagssummen zwischen beiden Standorten feststellen, in den anderen Jahreszeiten, insbesondere im Winter, jedoch wesentlich höhere.

Dies muß sich im Hinblick auf den nassen Spurenstoffeintrag prägend auswirken.

Aus den für die einzelnen Spurenstoffe berechneten Summenkurven der Abb. 82 und 83 läßt sich für den gemeinsamen Meßzeitraum Januar 1983 bis Februar 1984 folgendes entnehmen:

Sulfat-Schwefel wird auf dem Kahlen Asten in höherem Maße abgelagert als in Bochum; der Verhältnswert zwischen beiden Stationen betrug 1,3 : 1.

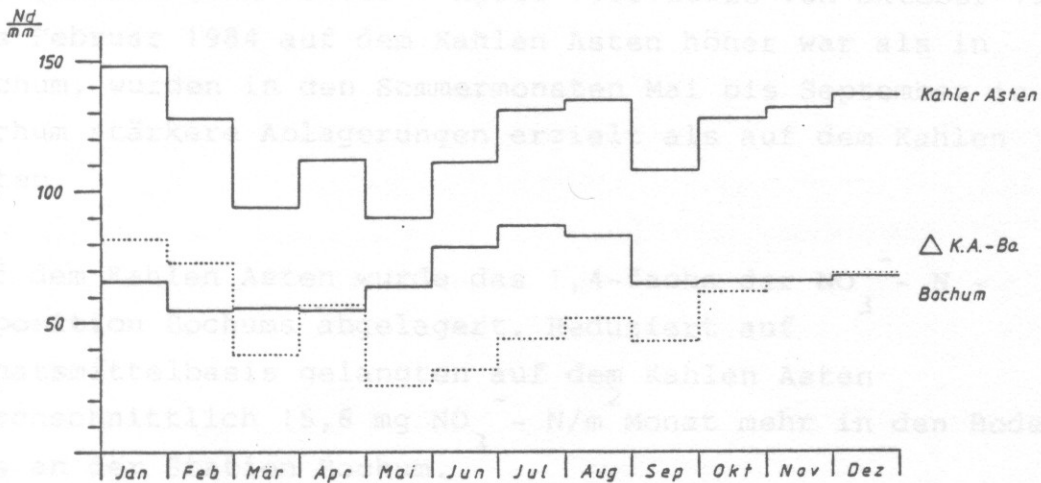


Abb. 84 Langjährige Monatsmittelwerte der Niederschläge an den Stationen Bochum und Kahler Asten

Die größte Abweichung zwischen beiden Stationen wurde im Januar 1983 beobachtet, wo die Depositionsraten auf dem Kahler Asten mit 136,6 mg $\text{NH}_4^+ - \text{N}/\text{m}^2$ das Sechsfache derer in Bochum ausmachten. Im April 1983 lag jedoch die Depositionsraten in Bochum mit rund 1 mg $\text{NO}_3^- - \text{N}/\text{m}^2$ geringfügig über der des Kahler Asten; im Mai desselben Jahres stieg sie weiter an, und zwar wurden in diesem Monat in Bochum 30 mg $\text{NO}_3^- - \text{N}$ mehr abgelagert, im November waren die Ablagerungsraten beider Stationen wieder gleich hoch.

Die Ablagerungsrate für $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ ist auf dem Kahler Asten ebenfalls geringfügig höher als in Bochum (Verhältnis 1,1 : 1). In den Monaten Januar, Februar, April, Juni und Dezember 1983 sowie im Januar und Februar 1984 wurde auf dem Kahler Asten im Vergleich zu Bochum mehr $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ auf nassen Wege abgelagert, in den anderen Monaten war die Depositionsraten in Bochum gegenüber der des Kahler Asten erhöht. Extreme Unterschiede ergaben sich z.B. im Januar 1983, wo auf dem Kahler Asten mit 136,6 mg $\text{NH}_4^+ - \text{N}/\text{m}^2$ das Sechsfache dessen abgelagert wurde, was in Bochum dem Boden zugeführt wurde. Andererseits konnte jedoch auch an der Station Bochum mit 221 mg m^{-2} im November 1981 eine sehr hohe Ablagerungsrate

Während die SO_4^{2-} - S - Depositionsrates in den Winter- und Frühjahrsmonaten Januar - April 1983 sowie von Oktober 1983 bis Februar 1984 auf dem Kahlen Asten höher war als in Bochum, wurden in den Sommermonaten Mai bis September in Bochum stärkere Ablagerungen erzielt als auf dem Kahlen Asten.

Auf dem Kahlen Asten wurde das 1,4-fache der NO_3^- - N - Deposition Bochums abgelagert. Reduziert auf Monatsmittelbasis gelangten auf dem Kahlen Asten durchschnittlich $15,6 \text{ mg NO}_3^- \text{ - N/m}^2$ Monat mehr in den Boden als an der Station Bochum.

Die größte Abweichung zwischen beiden Stationen wurde im Januar 1984 erreicht; in diesem Monat wurde auf dem Kahlen Asten $56 \text{ mg NO}_3^- \text{ - N/m}^2$ mehr Nitrat-Stickstoff deponiert als in Bochum. Dagegen unterschieden sich die Raten an beiden Standorten im Juli 1983 nicht.

Im April 1983 lag jedoch die Depositionsrates in Bochum mit rund $1 \text{ mg NO}_3^- \text{ - N/m}^2$ geringfügig über der des Kahlen Asten; im Mai desselben Jahres stieg sie weiter an, und zwar wurden in diesem Monat in Bochum $30 \text{ mg NO}_3^- \text{ - N}$ mehr abgelagert, im November waren die Ablagerungsrates beider Stationen wieder gleich hoch.

Die Ablagerungsrates für NH_4^+ - N ist auf dem Kahlen Asten ebenfalls geringfügig höher als in Bochum (Verhältnis 1,1 : 1). In den Monaten Januar, Februar, April, Juni und Dezember 1983 sowie im Januar und Februar 1984 wurde auf dem Kahlen Asten im Vergleich zu Bochum mehr NH_4^+ - N auf nassem Wege abgelagert, in den anderen Monaten war die Depositionsrates in Bochum gegenüber der des Kahlen Asten erhöht. Extreme Unterschiede ergaben sich z.B. im Januar 1983, wo auf dem Kahlen Asten mit $180,6 \text{ mg NH}_4^+ \text{ - N/m}^2$ das Sechsfache dessen abgelagert wurde, was in Bochum dem Boden zugeführt wurde. Andererseits konnte jedoch auch an der Station Bochum mit 233 mg/m^2 im November 1983 eine sehr hohe Ablagerungsrates

festgestellt werden; sie war 3,6-fach höher als diejenige auf dem Kahlen Asten.

Die Summenhäufigkeit der **Chloriddepositionen** wies für den Kahlen Asten zwar einen geringfügig höheren Wert auf als für Bochum (Verhältnis 1,1 : 1), dennoch aber waren die Depositionsraten - bei monatlichem Vergleich - einander sehr ähnlich, wie auch dem Verlauf der beiden Summenkurven zu entnehmen ist.

Im Mittel wichen die Depositionsraten nur um $15 \text{ mg Cl}^- / \text{m}^2$ im Monat voneinander ab, wobei es außerordentlich unterschiedlich war, ob die Ablagerungsrate der einen oder anderen Station überwog.

In den Herbst- und Wintermonaten wurden auf dem Kahlen Asten etwas höhere Raten als in Bochum festgestellt; in den Sommermonaten - bei kleiner werdender Niederschlagsdifferenz zwischen beiden Standorten - wurde in Bochum etwas mehr an Chlorid dem Boden zugeführt als auf dem Kahlen Asten.

Die höheren Monatsdepositionen in Bochum während des Sommers können darauf zurückgeführt werden, daß für die Ablagerung der Spurenstoffe nicht die Niederschlagsmenge ausschlaggebender Faktor, sondern die Spurenstoffkonzentration die die Depositionsrate bestimmende Größe war. Letztere war in Bochum höher als auf dem Kahlen Asten. Die Niederschlagssumme änderte hieran nichts, da in den Sommermonaten die Differenzen der Niederschlagssummen zwischen beiden Standorten nur sehr gering waren.

In denjenigen Monaten, in denen die Niederschlagssummen des Kahlen Asten gegenüber dem Standort Bochum erhöht waren, verschob sich das Ablagerungsverhältnis wieder zugunsten des weniger belasteten Standortes.

In diesem Zusammenhang wurde am Beispiel des Spurenstoffes Schwefel untersucht, welche Abhängigkeit zwischen der

minus Bochum) und der $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ - Deposition an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

monatlichen Niederschlagsdifferenz (Kahler Asten minus Bochum) und dem Überwiegen der Sulfatdeposition auf dem Kahlen Asten bzw. Bochum besteht.

Wie Abb. 85 zeigt, läßt sich dieser Zusammenhang mit Hilfe einer linearen Regression annähern.

Bei Niederschlagsdifferenzen von durchschnittlich mehr als 40 mm (Kahler Asten minus Bochum) überwiegt die nasse Schwefeldeposition auf dem Kahlen Asten gegenüber Bochum.

Liegt der monatliche Unterschied dagegen unter 40 mm, wird an der Station Bochum mehr Sulfat abgelagert als auf dem Kahlen Asten.

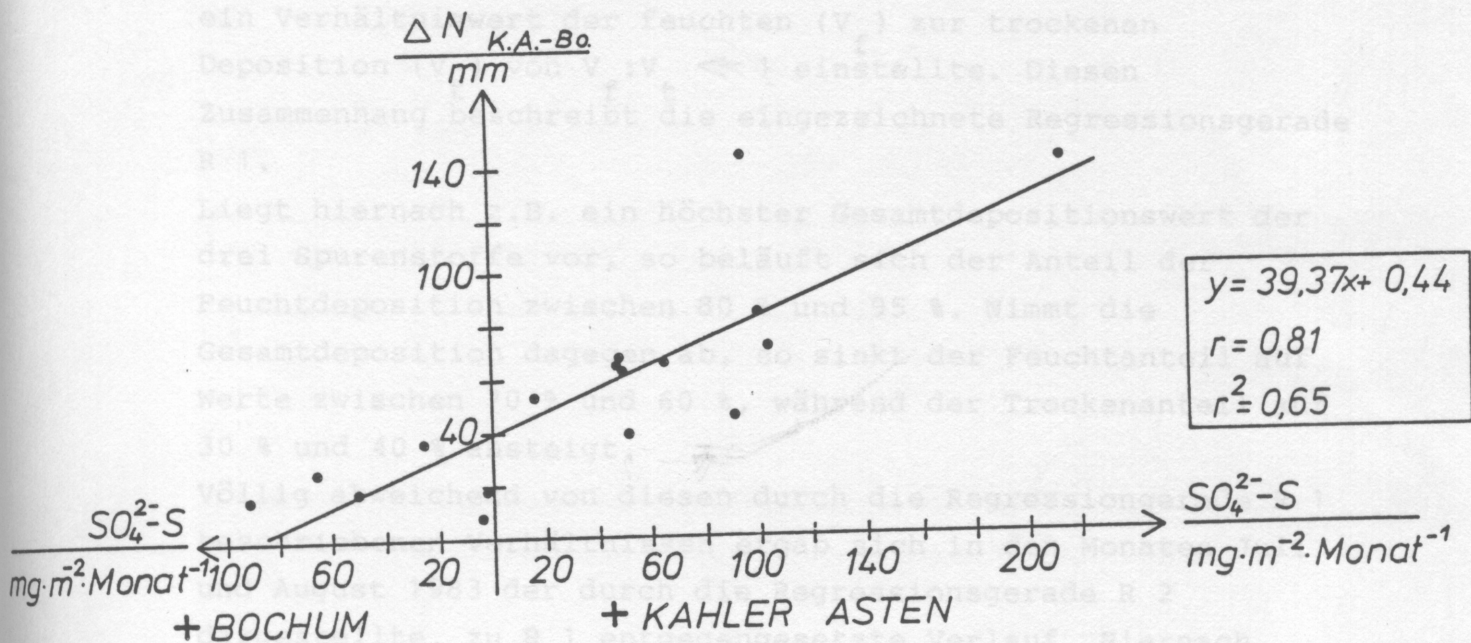


Abb. 85 Zusammenhang zwischen der monatlichen Niederschlagsdifferenz (Kahler Asten minus Bochum) und der $SO_4^{2-}-S$ - Deposition an den Stationen Kahler Asten und Bochum (1/1983 - 2/1984)

4.6 Abhängigkeit der Gesamtdeposition von der Trocken- und Feuchtdeposition

Hohe Stoffeinträge an beiden Stationsstandorten wurden im allgemeinen durch ein Überwiegen der feuchten Deposition hervorgerufen.

Um die Abhängigkeit der Gesamtdeposition von der trockenen und nassen Deposition feststellen zu können, wurden für beide Meßstellen die Gesamtdepositionen (trocken plus naß) zu den prozentualen Anteilen der Trocken- und Naßdeposition in Beziehung gesetzt.

Bei der für die Station Bochum dargestellten Auswertung (Abb. 86) zeigt sich, daß hohe Spurenstoffdepositionen an Sulfat, Nitrat und Chlorid dann erreicht werden, wenn sich ein Verhältniswert der feuchten (V_f) zur trockenen Deposition (V_t) von $V_f : V_t \ll 1$ einstellte. Diesen Zusammenhang beschreibt die eingezeichnete Regressionsgerade R 1.

Liegt hiernach z.B. ein höchster Gesamtdepositionswert der drei Spurenstoffe vor, so beläuft sich der Anteil der Feuchtdeposition zwischen 80 % und 95 %. Nimmt die Gesamtdeposition dagegen ab, so sinkt der Feuchtanteil auf Werte zwischen 70 % und 60 %, während der Trockenanteil auf 30 % und 40 % ansteigt.

Völlig abweichend von diesen durch die Regressionsgerade R 1 beschriebenen Verhältnissen ergab sich in den Monaten Juli und August 1983 der durch die Regressionsgerade R 2 dargestellte, zu R 1 entgegengesetzte Verlauf. Hiernach konnten, obwohl die beiden Monate ausgesprochen trocken waren (Juli: 19 mm Niederschlag; August: 27 mm Niederschlag), relativ hohe Gesamtablagerungswerte ermittelt werden, bei deren Zustandekommen jedoch die trockene Deposition die dominierende Rolle spielte und nicht, wie es

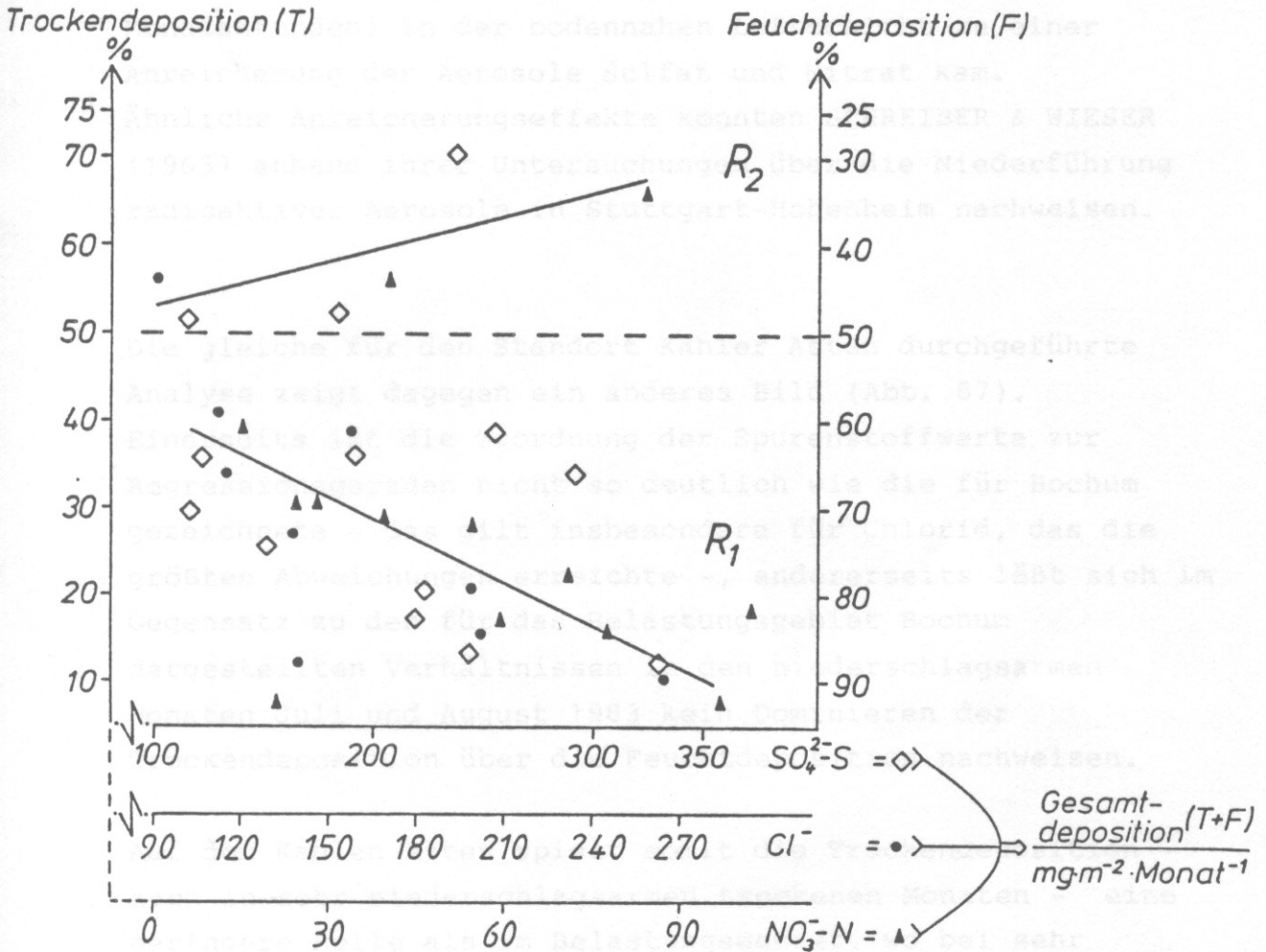


Abb. 86 Abhängigkeit der Gesamtdosition von der Trocken- und Feuchtdeposition an der Station Bochum (1/1983 - 2/1984)

für die Einträge dieser Spurenstoffe ansonsten im Durchschnitt zu beobachten war, die nasse Deposition. Dies wird darauf zurückgeführt, daß es bei dem außergewöhnlich hohen Anteil an Trockenstunden (98 % der Monatsstunden) in der bodennahen Luftschicht zu einer Anreicherung der Aerosole Sulfat und Nitrat kam. Ähnliche Anreicherungs-effekte konnten SCHREIBER & WIESER (1965) anhand ihrer Untersuchungen über die Niederführung radioaktiver Aerosole in Stuttgart-Hohenheim nachweisen.

Die gleiche für den Standort Kahler Asten durchgeführte Analyse zeigt dagegen ein anderes Bild (Abb. 87). Einerseits ist die Zuordnung der Spurenstoffwerte zur Regressionsgeraden nicht so deutlich wie die für Bochum gezeichnete - das gilt insbesondere für Chlorid, das die größten Abweichungen erreichte -, andererseits läßt sich im Gegensatz zu den für das Belastungsgebiet Bochum dargestellten Verhältnissen in den niederschlagsarmen Monaten Juli und August 1983 kein Dominieren der Trockendeposition über die Feuchtdeposition nachweisen.

Auf dem Kahlen Asten spielt somit die Trockendeposition - auch in sehr niederschlagsarmen trockenen Monaten - eine geringere Rolle als im Belastungsgebiet, wo bei sehr geringen Niederschlagsmengen die Trockendeposition der Aerosolspurenstoffe Sulfat und Nitrat die Naßdeposition übertrifft.

Feuchtdeposition an der Station Kahler Asten (11/1983 - 11/1984)

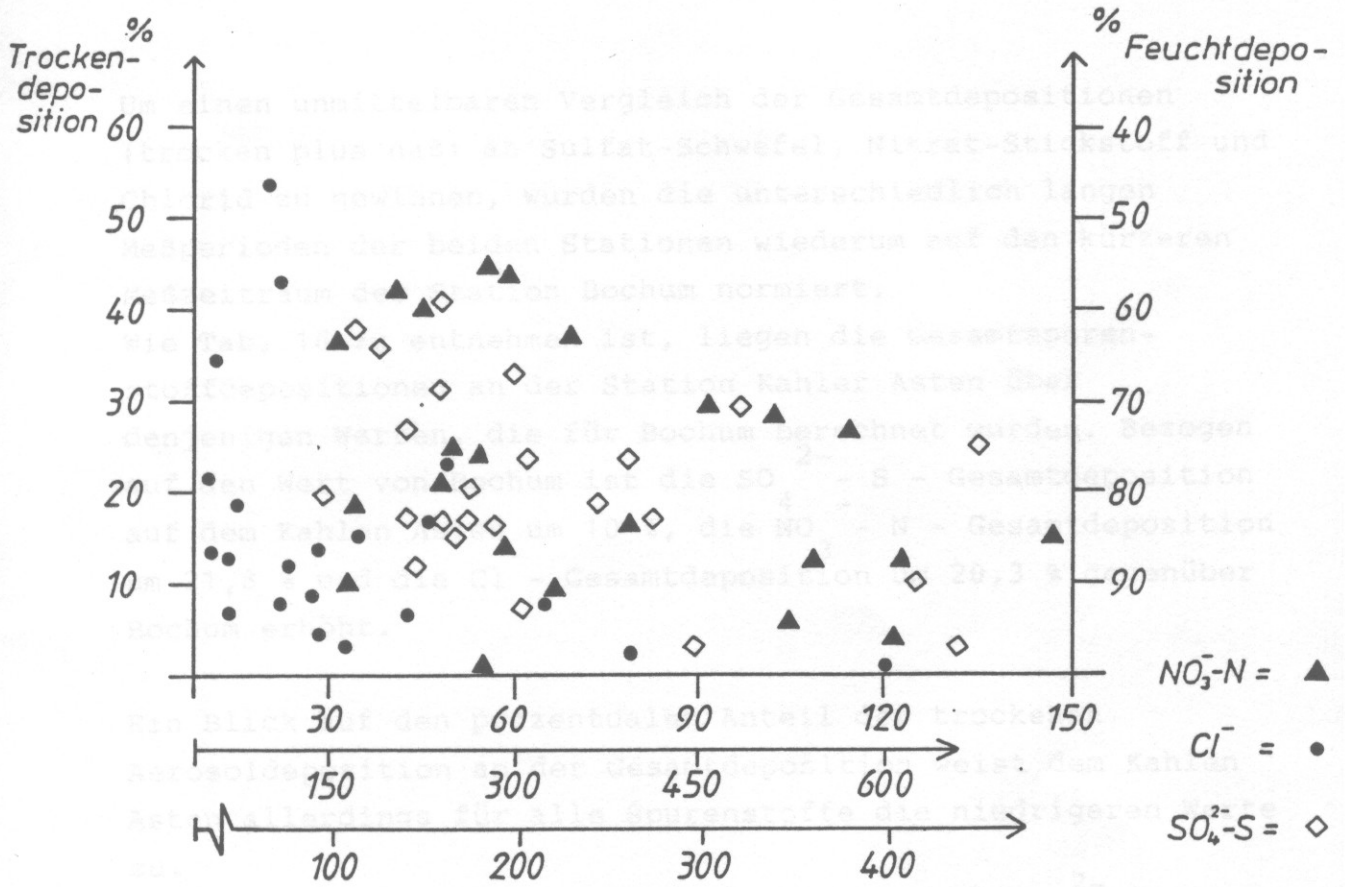


Abb. 87 Abhängigkeit der Gesamtdeposition von der Trocken- und Feuchtdeposition an der Station Kahler Asten (11/1982 - 11/1984)

Darüber hinaus weisen die in Spalte 3 (Tab. 16) enthaltenen Standardabweichungen der Mittelwerte der trockenen Deposition für den Kahler Asten wesentlich geringere Ausmaße auf als für Bochum. Für $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ werden gegenüber Bochum 6,9 % für $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 6,5 % und für Cl^- 2,6 % erreicht. Da diese Standardabweichungen aus den Monatswerten berechnet wurden,

4.7 Vergleich der gesamten Spurenstoffablagerung

Um einen unmittelbaren Vergleich der Gesamtdepositionen (trocken plus naß) an Sulfat-Schwefel, Nitrat-Stickstoff und Chlorid zu gewinnen, wurden die unterschiedlich langen Meßperioden der beiden Stationen wiederum auf den kürzeren Meßzeitraum der Station Bochum normiert.

Wie Tab. 16 zu entnehmen ist, liegen die Gesamtspurenstoffdepositionen an der Station Kahler Asten über denjenigen Werten, die für Bochum berechnet wurden. Bezogen auf den Wert von Bochum ist die SO_4^{2-} - S - Gesamtdeposition auf dem Kahlen Asten um 10 %, die NO_3^- - N - Gesamtdeposition um 21,8 % und die Cl^- - Gesamtdeposition um 20,3 % gegenüber Bochum erhöht.

Ein Blick auf den prozentualen Anteil der trockenen Aerosoldeposition an der Gesamtdeposition weist dem Kahlen Asten allerdings für alle Spurenstoffe die niedrigeren Werte zu.

Hier werden zwischen 15,5 % (Cl^-) und 21,8 % (SO_4^{2-} - S) erreicht. Im Vergleich zu Bochum liegen die Werte des Anteils der trockenen Deposition aller drei Spurenstoffe somit zwischen 6,5 % (NO_3^- - N) und 13,7 % (Cl^-) unter den Werten von Bochum.

Der Eintrag durch die Aerosoldeposition spielt am Kahlen Asten demnach eine untergeordnetere Rolle als im Industriegebiet.

Darüber hinaus weisen die in Spalte 3 (Tab. 16) enthaltenen Standardabweichungen der Mittelwerte der trockenen Deposition für den Kahlen Asten wesentlich geringere Ausmaße auf als für Bochum. Für SO_4^{2-} - S werden gegenüber Bochum 6,9 %, für NO_3^- - N 6,5 % und für Cl^- 2,6 % erreicht. Da diese Standardabweichungen aus den Monatswerten berechnet wurden,

spiegeln sie auch die zwischenmonatlichen Schwankungen des Anteils der trockenen Deposition wider, die auf dem Kahlen Asten homogener auftritt als in Bochum.

Das bedeutet, daß die ohnehin schon geringere Trockendeposition auf dem Kahlen Asten gleichförmiger über den Meßzeitraum verteilt ist als die Trockendeposition im Belastungsgebiet Bochum.

für die molaren Konzentrationen der Ionen SO_4^{2-} , NO_3^- und Cl^- berechnet.

Die Auswertung, die am Beispiel der Niederschlagswasserproben des Standortes Bochum durchgeführt wurde, ergab einen Korrelationskoeffizienten $r = 0,98$.

	$\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$			$\text{NO}_3^- \text{-N}$			Cl^-		
	\bar{x}_z	$\bar{x}_{\text{str.}}$	$\sigma_{\text{str.}}$	\bar{x}_z	$\bar{x}_{\text{str.}}$	$\sigma_{\text{str.}}$	\bar{x}_z	$\bar{x}_{\text{str.}}$	$\sigma_{\text{str.}}$
Kahler Asten	7,26	21,8	9,4	2,35	20,3	11,8	6,18	15,5	12,9
Bochum	6,60	34,1	16,3	1,93	26,8	18,2	5,14	29,2	15,5
K.A. - Bo.	0,66	-12,3	-6,9	0,42	-6,5	-6,4	1,04	-13,7	-2,6

Niederschlagswasseranalysen, die sie im Bereich der Whitcomb Air Station (USA) durchgeführt, einen Korrelationskoeffizienten von $r = 0,95$. Diese Analyse zeigt, daß der größte Anteil an Sulfat- und Nitrate aus signifikanten Teil als Schwefel- und Salpetersäure vorliegen.

Ein Vergleich der relativen Anionenäquivalente im

Tab. 16 Gesamtdeposition und prozentualer Anteil der trockenen Deposition der Spurenstoffe $\text{SO}_4^{2-}\text{-S}$, $\text{NO}_3^- \text{-N}$ und Cl^- an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)

Tab. 17 Prozentuale Anteile der Anionenäquivalente im Niederschlagswasser an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)

	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-
Bochum	65,5	18,5	16,0
Kahler Asten	57,6	23,1	19,3

Während sich an beiden Standorten die Beträge an SO_4^{2-} nur wenig unterscheiden, weisen die Anionenäquivalente von NO_3^-

4.8 Anteile der Ionen am Säuregehalt der Niederschläge

Auf dem Kahler Asten ist der NO_3^- - Anteil gegenüber Bochum

Zur Bestimmung der Hauptsäurelieferanten im Niederschlagswasser wurden die Äquivalentwerte für H^+ , NH_4^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- und Cl^- bestimmt und der Korrelationskoeffizient für die molaren Konzentrationen der Ionen $\text{H}^+ + \text{NH}_4^+ = 2 \text{SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ berechnet.

Die Auswertung, die am Beispiel der Niederschlagswasserproben des Standortes Bochum durchgeführt wurde, ergab einen Korrelationskoeffizienten von $r = 0,88$.

WILSON et al. (zit. in PERSEKE 1982) erhielten aus Niederschlagswasseranalysen, die sie im Bereich der Whitefacemountains (USA) durchführten, einen Korrelationskoeffizienten von $r = 0,95$.

Beide Untersuchungen zeigen, daß die analysierten Sulfate und Nitrate zum signifikanten Teil als Schwefel- und Salpetersäure vorliegen.

Ein Vergleich der relativen Anionenäquivalente im Niederschlagswasser ergibt für die Standorte Bochum und Kahler Asten im Durchschnitt folgende Verteilung (Tab. 17):

Der etwas einheitlichere Anteil an Cl^- in Bochum gegenüber dem Nenn von Kahler Asten dürfte industriellbedingt sein. Die durchweg höheren Werte an beiden Stationen insbesondere

Tab. 17 Prozentuale Anteile der Anionenäquivalente im Niederschlagswasser an den Stationen Bochum und Kahler Asten (1/1983 - 2/1984)

	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-
Bochum	55,5	18,5	26,0
Kahler Asten	57,6	23,1	19,3

Auch bei den NO_3^- - Anteilen weisen die Niederschlagswasserproben am Kahler Asten etwas größere Differenzen zwischen den Jahreszeiten auf, als dies am Standort Bochum der Fall ist.

Während sich an beiden Standorten die Beträge an SO_4^{2-} nur wenig unterscheiden, weisen die Anionenäquivalente von NO_3^- etwas größere Unterschiede auf.

Auf dem Kahlen Asten ist der NO_3^- - Anteil gegenüber Bochum erhöht, beim Chlorid verhält es sich umgekehrt.

Der höhere NO_3^- - Wert am weniger belasteten Sauerlandstandort könnte möglicherweise mit einer im Vergleich zum Ruhrgebiet höheren Düngung in der Soester und Warburger Börde zusammenhängen, der höhere Chloridwert in Bochum ist vermutlich industriebedingt.

Eine jahreszeitliche Zuordnung der Anionenäquivalente beider Stationen zeigt (Abb. 88), daß der Anteil an SO_4^{2-} im Sommer in Bochum gegenüber den anderen Jahreszeiten erhöht ist, auf dem Kahlen Asten jedoch im Herbst und Frühjahr höhere Anteile auftreten als im Sommer und Winter. Die deutlichste jahreszeitliche Abhängigkeit weist aber der Chloridanteil auf.

An beiden Meßstellen sind die Anteile dieses Spurenstoffs im Winter und Herbst wesentlich höher als im Sommer und Frühjahr.

In diesem Zusammenhang ist darauf hinzuweisen, daß die jahreszeitlichen Unterschiede am Kahlen Asten größer sind (Winter: 31,5 %, Frühjahr: 12,8 %) als an der Station Bochum (Winter: 32,7 %, Sommer: 17,8 %).

Der etwas einheitlichere Anteil an Cl^- in Bochum gegenüber den Werten vom Kahlen Asten dürfte industriebedingt sein. Die durchweg höheren Werte an beiden Stationen insbesondere im Winter sind verursacht durch ein Überwiegen advektiver Wetterlagen mit häufigerem 'sea-spray' Eintrag als in den anderen Jahreszeiten.

Auch die NO_3^- - Anteile zeigen deutliche jahreszeitliche Unterschiede: für den Sommer und abgestuft für das Frühjahr wurden sowohl in Bochum als auch auf dem Kahlen Asten wesentlich höhere Werte berechnet als für den Winter, was möglicherweise auf Düngungsmaßnahmen im Frühjahr und Sommer zurückzuführen ist.

Auch bei den NO_3^- - Anteilen weisen die Niederschlagswasserproben am Kahlen Asten etwas größere Differenzen zwischen den Jahreszeiten auf, als dies am Standort Bochum der Fall ist.

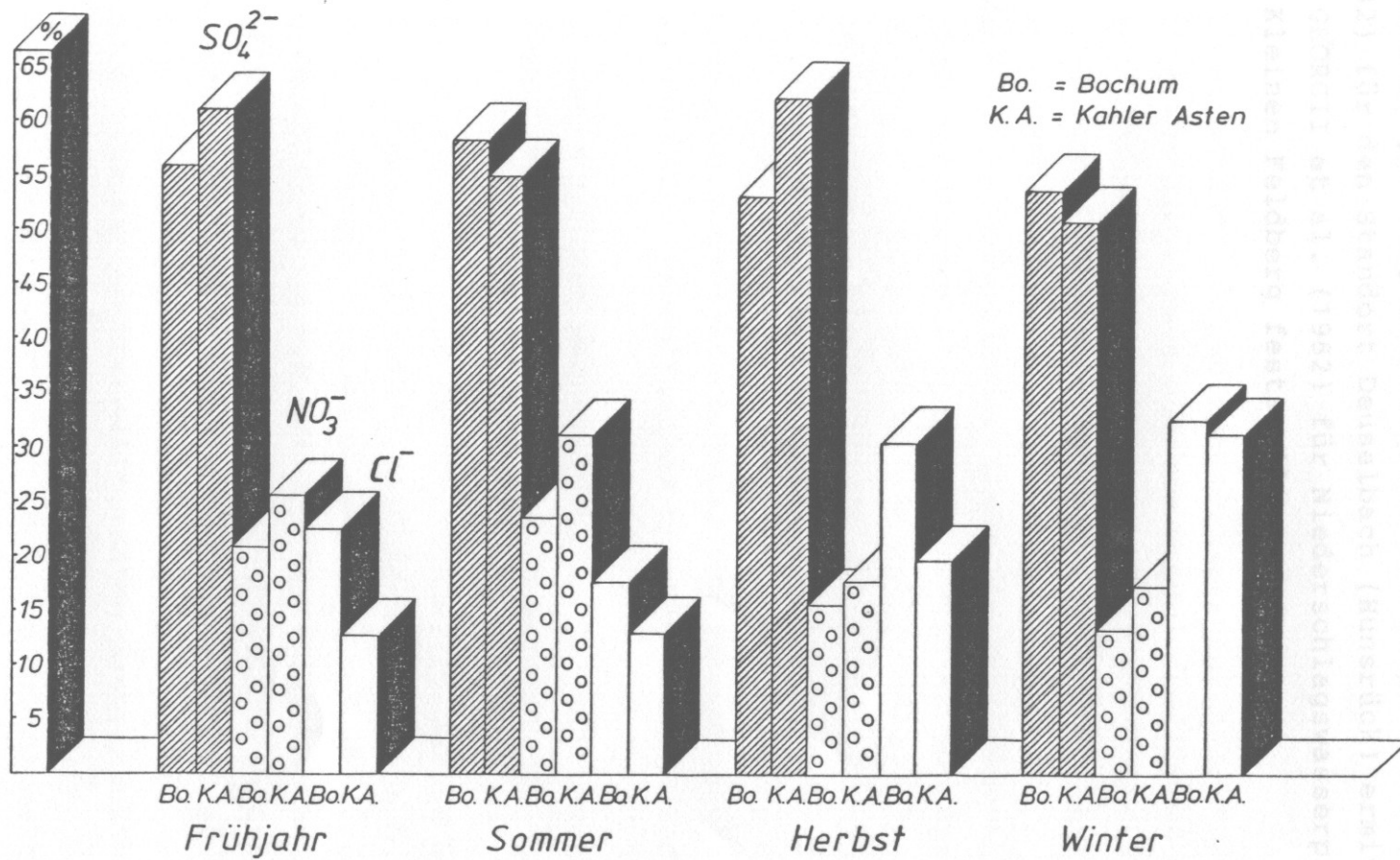


Abb. 88 Anteile der Anionenäquivalente im Niederschlagswasser an den Stationen Bochum und Kahler Asten nach Jahreszeiten (1/1983 - 2/1984)

3. Diskussion der Ergebnisse

Prinzipiell kann jedoch festgestellt werden, daß diese Ergebnisse gut vergleichbar sind mit denjenigen, die PERSEKE (1982) für den Standort Deuselbach (Hunsrück) ermittelte und die GEORGII et al. (1982) für Niederschlagswasserproben auf dem Kleinen Feldberg feststellten.

Das sauerländische Untersuchungsgebiet erhält mit Ausnahme der Einleitung durch wenige industrielle Anlagen in den Tälern von Ruhr und Lahn Einträge atmosphärischer Spurenstoffe überwiegend über den Lufttransport.

Daraus resultieren für das "Gebietsmittel" sowohl relativ niedrige Depositionsraten der untersuchten Spurenstoffe (durch 'bulk'-Niederschläge) als auch niedrige Immissionsraten an Schwefel- und Stickstoffverbindungen.

Bei der Betrachtung der einzelnen Stationswerte der 16 Messstationen wurden jedoch deutliche Inhomogenitäten des Immissionsfeldes in zeitlicher und räumlicher Hinsicht evident.

Hierauf soll später, nach Diskussion der mittleren Gebietsbelastung, näher eingegangen werden.

Die aus den Einzel- und den Stationsmittelwerten berechneten Gebietsmittelwerte ('bulk'-Niederschläge; pH = 4,22, elektr. Leitfähigkeit = 43 µS/cm, $\text{SO}_4^{2-} + \text{S}^{2-} = 1,6 \text{ mg/l}$, $\text{NO}_3^- + \text{N} = 0,64 \text{ mg/l}$, $\text{Cl}^- = 1,6 \text{ mg/l}$) entsprechen denjenigen, die z.B. BLOCK & BAPTELS (1983) im Südsauerland an der Station Olpe fanden bzw. denjenigen Werten, die MÜLLER et al. (1982) für ländliche Gebiete in Norddeutschland angeben.

Die durch die Variationskoeffizienten ausgedrückte räumliche Variabilität der $\text{SO}_4^{2-} + \text{S}^{2-}$ -, $\text{NO}_3^- + \text{N}$ - und Cl^- -Konzentrationen lag bei unter 20 % der Mittelwerte; für Fluorid wurde ein höherer Wert von 35 % erreicht. Hinsichtlich der räumlichen Verteilung der

5. Diskussion der Ergebnisse auch der Depositionen kann man mit Ausnahme von Fluorid von einer relativ homogenen Konzentrationsverteilung im Untersuchungsgebiet während des Meßzeitraumes (Mai - November) ausgehen.

5.1 'bulk'- Niederschläge und Immissionsraten In den höheren Lagen des Rothaargebietes höhere Niederschlagssummen gemessen werden als in den Tieflagen, sind für diese Jahreszeit räumlich

1. Das sauerländische Untersuchungsgebiet erhält mit Ausnahme der Einleitung durch wenige industrielle B. für die Kleinemittenten in den Tälern von Ruhr und Lenne Einträge atmosphärischer Spurenstoffe überwiegend über den Ferntransport. Hieraus resultieren für das "Gebietsmittel" sowohl relativ niedrige Depositionsraten der untersuchten Spurenstoffe (durch 'bulk'-Niederschläge) als auch niedrige Immissionsraten an Schwefel- und Stickstoffverbindungen.

Unter Zugrundelegung der einzelnen Stationswerte der 16 Meßstationen wurden jedoch deutliche Inhomogenitäten des Immissionsfeldes in zeitlicher und räumlicher Hinsicht evident. Hierauf soll später, nach Diskussion der mittleren Gebietsbelastung, näher eingegangen werden.

Die aus den Einzel- und den Stationsmittelwerten berechneten Gebietsmittelwerte ('bulk'- Niederschläge; pH = 4,22, elektr. Leitfähigkeit = 43 $\mu\text{S}/\text{cm}$, $\text{SO}_4^{2-} - \text{S} = 1,6 \text{ mg}/\text{l}$, $\text{NO}_3^- - \text{N} = 0,64 \text{ mg}/\text{l}$, $\text{Cl}^- = 1,6 \text{ mg}/\text{l}$) entsprechen denjenigen, die z.B. BLOCK & BARTELS (1983) im Südsauerland an der Station Olpe fanden bzw. denjenigen Werten, die MÜLLER et al. (1982) für ländliche Gebiete in Norddeutschland angeben.

Die durch die Variationskoeffizienten ausgedrückte räumliche Variabilität der $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ -, $\text{NO}_3^- - \text{N}$ - und Cl^- Konzentrationen lag bei unter 20 % der Mittelwerte; für Fluorid wurde ein höherer Wert von 36 % erreicht.

Hinsichtlich der räumlichen Verteilung der

Spurenstoffkonzentrationen als auch der Depositionen kann man mit Ausnahme von Fluorid von einer relativ homogenen Konzentrationsverteilung im Untersuchungsgebiet während des Meßzeitraumes (Mai - November) ausgehen.

Da allerdings im Winter insbesondere in den Höhenlagen des Rothaargebirges höhere Niederschlagssummen gemessen werden als in den Tieflagen, sind für diese Jahreszeit räumliche Unterschiede nicht auszuschließen.

Die Messungen an den einzelnen Stationen zeigen z.B. für die pH - Werte, daß die Abweichungen zum sauren Bereich zwar relativ gering sind, diejenigen zum basischen Bereich jedoch z.T. mehr als 3 pH-Einheiten überschreiten können; über ähnlich große Amplituden berichten GEORGII et al. 1984.

Unterschiede im Säuregehalt des Niederschlagswassers der Sauerlandstationen im Vergleich zur Station in Bochum ließen sich weder für den ersten Teil des Forschungsvorhabens (KUTTLER 1983 a) noch für die nunmehr vorliegende Auswertung des gesamten Meßzeitraumes feststellen.

Hingegen waren die Werte der elektr. Leitfähigkeit an der Station Bochum um 35 %, die SO_4^{2-} - S - Konzentrationen um 56 %, die NO_3^- - N - Konzentrationen um 33 %, die Chloridkonzentrationen um 81 % und die Fluoridkonzentrationen um 52 % höher als die Mittelwerte des Sauerlandes.

Auch die Spurenstoffdepositionen waren in Bochum im Durchschnitt erhöht (Sulfat-Schwefel um 21 %, Chlorid um 51 %, Fluorid um 19 %); Nitrat-Stickstoff zeigte allerdings keinen Unterschied zwischen dem Belastungsgebiet und dem Sauerland.

Die im Vergleich zu den Konzentrationen niedrigeren Prozentsätze der Depositionen lassen sich damit erklären, daß in Bochum höhere Konzentrationen bei geringeren Niederschlagssummen vorherrschten, während sich im sauerländischen Untersuchungsgebiet niedrigere

Konzentrationen und höhere Niederschlagssummen einstellten, was auf die Depositionsraten ausgleichend wirkt.

So ließen sich zum Beispiel höchste Chloridwerte im Sauerland an der ostnordöstlich von Arnsberg gelegenen Station Lattenberg (Standort Nr. 2 des sauerländischen Meßnetzes) unweit einer südlich des Standortes im Ruhrtal betriebenen Flüssigzellulosefabrik nachweisen; aufgrund der im Vergleich zu anderen Stationen geringeren Niederschläge im Meßzeitraum stellte sich jedoch an dieser Station nicht auch die höchste Depositionsraten ein; diese ergab sich an der mit 765 m ü.NN wesentlich höher liegenden Station Hunau (Station Nr. 9), an der die größeren Eintragsraten auf höhere Niederschlagssummen zurückgeführt werden müssen. Deutlich über dem Gebietsmittelwert liegende Fluoridkonzentrationen wurden im Nordsauerländer Oberland (Station Nr. 14) ermittelt. Diese vom niedrigergelegenen Gebietsmittelwert deutlich nach oben abweichende Fluoridbelastung könnte durch die Emissionen einer westlich gelegenen Ziegelei verursacht sein; denn Fluorid ist nicht nur in den Abgasen von Aluminium-, Stahl-, Glas- und Phosphatdüngerfabriken enthalten, sondern auch in den Emissionen von Ziegelei- und Keramikbetrieben (STERN 1976).

2. Wesentlich größere zeitliche und räumliche Unterschiede wiesen die Immissionsraten (SAM-Stationen) der überwiegend aus der Gasphase abgelagerten Schwefel- und Stickstoffverbindungen im Gegensatz zu den Niederschlagswasserkonzentrationen im Sauerland auf.

Da sich die Immissionsrate aus der Immissionskonzentration und dem Windweg zusammensetzt, läßt sich ohne Messung der Windgeschwindigkeit nicht entscheiden, ob für die an der jeweiligen Meßstelle ermittelte Immissionsrate hohe bzw. niedrige Konzentrationen oder niedrige bzw. hohe

Windgeschwindigkeiten verantwortlich sind. Für die Beantwortung der dieser Arbeit zugrundeliegenden Fragestellung, bei der es im wesentlichen um die Ermittlung der durchschnittlichen Gebietsbelastung an gasförmigen Immissionen geht, spielt diese Differenzierung keine Rolle.

An zwei Standorten wurden - im Vergleich zum Gebietsmittelwert - relativ hohe Schwefel-Immissionsraten gemessen, und zwar an Station 2 (Lattenberg) und an Station 13 (Rothloh).

Die hohen Werte in Lattenberg könnten, da der Standort relativ windgeschützt lag, auf die SO_2 -haltigen Emissionen der etwa 2 km entfernten Flüssigzellulosefabrik in Wildshausen im Ruhrtal zurückzuführen sein, diejenigen in Rothloh, wo ebenfalls höhere mittlere Schwefel-Immissionsraten auftraten, müßten mit einer durch die hohe und freie Lage des Standortes bedingten höheren Windgeschwindigkeit bei wahrscheinlich niedrigeren Immissionskonzentrationen zusammenhängen.

Hierauf weisen auch die an dieser Station gemessenen, über dem Gebietsmittelwert liegenden Stickstoff - Immissionsraten hin.

Im Meßgebiet verhielten sich kleinster und größter Stationsmittelwert für Schwefel im Meßzeitraummittel wie 1 : 4,6, für Stickstoff wie 1 : 3,8. Erhöhte Belastungen durch Schwefel in einem landwirtschaftlich genutzten Gebiet um Königsutter wurden von DÄMMGEN (1984) mit gleicher Meßmethode nachgewiesen.

Vom Mittelwert abweichende größere Faktoren wurden im Sauerland für Schwefel im Herbst (1 : 7) und Winter (1 : 5) festgestellt.

Neben der größeren räumlichen Unterschiedlichkeit in der Immissionsstruktur des Sauerlandes während der kalten Jahreszeit sind darüber hinaus die absoluten Werte im Winter doppelt so hoch wie im Sommer.

Dies dürfte sich auf zwei Ursachen zurückführen lassen: einerseits auf einen mit sinkenden Temperaturen ansteigenden häuslichen Wärmebedarf und daraus resultierenden höheren bodennahen SO_2 -Emissionen (KUTTLER 1983 b), andererseits auf das vermehrte Auftreten austauscharmer Wetterlagen im Winter und in den Übergangsjahreszeiten mit Temperaturinversionen, die den Abtransport von Schadstoffen hemmen.

Letztgenannter Grund erscheint insbesondere deshalb wesentlich, weil im Sauerland gehäuft Temperaturinversionen in Höhen zwischen 400 - 600 m in den Übergangsjahreszeiten und im Winter auftreten (KUTTLER 1979). Diese führen zu einem Anstieg der Schadstoffgehalte unterhalb der Sperrschicht.

Die in dieser Arbeit angeführten Stationen waren in unterschiedlichen Höhenlagen des Untersuchungsgebietes eingerichtet worden; hieraus kann die insbesondere im Winter auftretende große Heterogenität im Immissionsfeld erklärt werden.

Dies läßt sich besonders deutlich durch einen Vergleich der Werte der Station 2 (Lattenberg in 420 m ü.NN) mit denen der Station 8 (Kahler Asten 845 m ü.NN) zeigen.

Während die Sommerwerte beider Standorte nur geringfügig voneinander abweichen (Lattenberg: $6,3 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; Kahler Asten $4,8 \text{ mg/m}^2 \text{ d}$; Verhältnis 1 : 1,3), unterscheiden sich die Herbst- und Winterwerte wie 1 : 2,3 bzw. 1 : 2,2.

Dieser Zusammenhang gilt auch - in wechselnder Intensität ausgeprägt - für andere Vergleichsstandorte des Untersuchungsgebietes.

Jahreszeitliche Unterschiede sind im gesamten Meßgebiet sowohl für die Schwefel- als auch die Stickstoff-Immissionsraten deutlich erkennbar, was im Hinblick auf eine jahreszeitliche bioklimatische Differenzierung sehr wichtig ist; denn die monatliche

Auswertung ergab, daß auch ein in die Rubrik "wenig an der belastet" eingeordneter Raum relativ hohe winterliche Schwefel-Immissionsraten bei großer räumlicher Inhomogenität aufweisen kann.

Das wurde insbesondere für die Meßergebnisse des Februar 1983 bestätigt, jenes Monats, in dem an fast allen Standorten die höchsten Werte (an Station 2 im Januar 1983) im Untersuchungsgebiet festgestellt wurden. Eine auf Monatsbasis erfolgte Probenahme läßt eine wetterlagenabhängige Auswertung nicht zu. Das dürfte jedoch für den Februar 1983 anders sein. Damals herrschten häufig Hochdruckwetterlagen mit schwachem Wind aus östlicher Richtung vor.

Die am Ostrand der Gebirgseinheiten errichteten oder sonstwie ostexponiert angelegten Standorte in Höhenlage und im Innern des Untersuchungsgebietes verfügten über besonders hohe Immissionsraten. Verantwortlich dafür könnten Emissionen gewesen sein, die östlich des Meßgebietes, möglicherweise in der DDR und der ČSSR liegen. Diese Vermutung wird dadurch erhärtet, daß im Februar 1983 an der in der Nähe der tschechischen Grenze gelegenen Meßstelle des Umweltbundesamtes in Hof "mit $118 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ein neuer Höchstwert für das Monatsmittel erreicht" wurde (fünfjähriges Mittel für Februar: $88 \mu\text{g}/\text{m}^3$) (UBA 2/83, S. 63). Die hohe Belastung in diesem Monat in Hof zeigte sich im einzelnen auch darin, daß 3 Tagesmittelwerte (TM) zwischen 120 und $140 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 3 TM zwischen 140 - $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ lagen und 8 TM über $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ SO_2 erreichten. Der höchste SO_2 -Tagesmittelwert belief sich an der Meßstelle Hof in diesem Monat (16.2.) auf $297 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Vergleich zu den Werten der anderen Stationen des UBA in mittleren Höhenlagen (Meinerzhagen, Usingen, Weinsheim, Deuselbach, Ansbach, Rottenburg) lagen die Werte im Bayerischen Wald um das 2,2 bis 5,0 fache darüber.

KLAUS (1984) führt in seinen Untersuchungen an, daß an der Meßstelle Hof die höchsten SO_2 -Konzentrationen vornehmlich bei Südostlagen auftreten.

Auf hohe Immissionswerte in ansonsten wenig belasteten Gebieten während austauscharmer Hochdrucklagen mit meist schwacher Ostströmung wird vielfach hingewiesen.

So zeigt z.B. eine Analyse der letzten Smoglage (20. 1. 1985) im Umland des Ruhrgebietes, daß im normalerweise nur wenig belasteten Eggegebirge die während dieser Zeit gemessenen erhöhten Immissionskonzentrationen an SO_2 und Schwebstaub "nicht durch das Rhein-Ruhr-Gebiet verursacht (wurden), sondern durch östlich gelegene Quellen (LIS 1/85, S.6).

Ähnlich konnten KLUG & GERTH (1980) für hohe Immissionskonzentrationen im Münsterland am 4. und 7.12. 1978 anhand von Messungen und Berechnungen mit dem Gauß-Modell feststellen, daß als Quelle der Emissionen wahrscheinlich die Industriegebiete um Leipzig und Dresden anzusehen sind. KLUG & GERTH (a.a.O.) meinen m.E. wohl die Industriegebiete zwischen Bitterfeld und Leuna.

Die Auswertung der Stickstoff-Immissionsraten im Sauerland zeigte hinsichtlich des Immissionsfeldes zwischen niedrigstem und höchstem Stationsmittelwert einen Unterschied von 1 : 3,8; damit war die Immissionsituation für gasförmige Stickstoffkomponenten im Vergleich zu Schwefel (1 : 4,6) etwas einheitlicher ausgeprägt.

Im Gegensatz zu Schwefel traten die höchsten Stationsmittelwerte für Stickstoff im Frühjahr und Sommer, die niedrigsten im Herbst auf. Im Durchschnitt wurden an den SAM-Stationen im Sommer doppelt so hohe Immissionsraten gemessen wie im Herbst und Winter. Die räumlichen Unterschiede erreichten im Meßgebiet im Frühjahr und Sommer den Faktor 6, im Herbst bzw. Winter 4,8. Während die Verteilung der Stickstoff-Immissionsraten im Sommer relativ inhomogen ist, läßt sich in der kalten Jahreszeit neben

geringeren absoluten Werten eine einheitlichere Immissionsstruktur für Stickstoff feststellen. Stickstoffverbindungen werden sowohl durch nitrathaltigen Dünger als auch verstärkt durch Kraftfahrzeuge emittiert, so daß bei Einsatz von Düngemitteln im Frühjahr und größerer Verkehrsdichte im Sommer durch den Ausflugsverkehr höhere Immissionsraten in der wärmeren Jahreszeit verursacht werden.

3. Ein Vergleich der aus 'bulk'- und 'wet-only' - Niederschlägen bestimmten Konzentrationen der Spurenstoffe SO_4^{2-} - S, NO_3^- - N, Cl^- sowie des pH-Wertes und der elektr. Leitfähigkeit bestätigen für das sauerländische Meßnetz die bereits von RIDDER & FRANTZEN (1983) und GALLOWAY & LIKENS (1978) gemachten Ergebnisse, wonach die 'bulk'- Proben höhere (nach den hier vorliegenden Untersuchungen für SO_4^{2-} - S um 10 %, für Cl^- um 5 % und für NO_3^- - N um 6 %) Konzentrationen aufweisen. Gegenüber den 'wet-only' - Proben wurden für die 'bulk'- Proben auch etwas höhere pH-Werte (0,15 pH-Einheiten) gefunden. Hierfür könnten die trockene Deposition von Ammonium und Calcium verantwortlich sein.

5.2 'Wet-only'- Niederschläge und trockene Depositionen

1. Die in Bochum und auf dem Kahlen Asten getrennt gemessenen trockenen und nassen Spurenstoffeinträge sind mit den Ergebnissen vergleichbar, die PERSEKE (1982) im Zeitraum 1979 - 1981 in belasteten und weniger belasteten Gebieten in der Bundesrepublik Deutschland an verschiedenen UBA-Meßstellen ebenfalls mit Trocken-/Naßsammlern erhielt.

Die Verteilung der SO_4^{2-} - S - Konzentrationen aus wet-only - Proben wiesen im Sommer höhere Konzentrationen auf als im Winter; maximale Werte ergaben sich im August 1983 und im April 1984 auf dem Kahlen Asten und im Juni/Juli 1983 in Bochum; in beiden Monaten führten wenige, relativ niedrige tägliche Niederschlagssummen zu den erhöhten Spurenstoffkonzentrationen. Die niedrigsten Konzentrationen wurden in Bochum im November 1983, auf dem Kahlen Asten im Januar/Februar 1984 gemessen; beide Monate waren charakterisiert durch vermehrtes Auftreten hoher täglicher Niederschlagsraten.

Unterschiedliche Niederschlagsarten und -intensitäten führen zu unterschiedlich hohen Spurenstoffgehalten im Niederschlagswasser.

GEORGII et al. (1982, S.128) fanden an verschiedenen Meßstellen in der Bundesrepublik Deutschland, "daß bei Schauern ... infolge guter Durchmischung, starker Aufwindssysteme und 'lateral entrainment' größere Spurenstoffmengen in das Wolkensystem einbezogen werden". Weitere Untersuchungen zu diesem Problem führte KINS (1982) durch. Diese Untersuchungen zeigten, daß die Sulfatkonzentrationen in Schauern an den norddeutschen Stationen etwas höhere Werte aufwiesen; in Hof und auf dem Kleinen Feldberg waren hingegen im Landregen die Sulfatkonzentrationen höher.

Untersuchungen über die Abhängigkeit der Spurenstoffkonzentrationen von der Niederschlagsmenge zeigen, daß bei kleinen Niederschlagssummen höhere Spurenstoffkonzentrationen auftreten als bei höheren Niederschlagssummen (PERSEKE 1982; KUTTLER 1982; GEORGII 1965; .

Daß eine geringe Niederschlagsmenge und eine vorausgehende mehrtägige niederschlagsfreie Zeit die Ursache für hohe Spurenstoffkonzentrationen im Regen waren, konnte anhand von

Messungen auf dem Kahlen Asten im August 1983 und April 1984 festgestellt werden.

Darüber hinaus traten auf dem Kahlen Asten gehäuft Nebellagen auf, während derer es Niederschläge gab; auch das dürfte zu höheren Spurenstoffkonzentrationen geführt haben. Hierauf weisen z.B. die Untersuchungen von GEORGII & SCHMITT (1985) hin.

Die Sommermaxima der SO_4^{2-} - S - Konzentrationen im Niederschlagswasser in Bochum entsprechen denen, die LIKENS et al. 1976 und PACK 1978 (zit. in PERSEKE 1982) ermittelten. Hohe sommerliche Sulfatkonzentrationen im Niederschlagswasser werden erklärt mit der im Sommer höheren photochemischen Produktionsrate an Sulfat.

Höchste NO_3^- - N - Konzentrationen in Bochum und auf dem Kahlen Asten wurden im Juni/Juli 1983 nachgewiesen; deutliche Unterschiede zwischen Winter- und Sommerhalbjahr ergaben sich nicht; letzteres wird auch durch die Untersuchungen von PERSEKE (1982) bestätigt.

Das in Bochum und auf dem Kahlen Asten gefundene mittlere NO_3^- - N - Konzentrationsniveau (0,6 mg/l und 0,5 mg/l) stimmt weitgehend überein mit den Werten aus dem Hunsrück (Deuselbach) und den an der Meßstelle in Essen festgestellten mittleren NO_3^- - N - Konzentrationen (< 1 mg/l PERSEKE 1982, (Tab. 18).

Auch die geringeren Amplituden der Nitrat- im Gegensatz zu den Sulfatkonzentrationen (PERSEKE a.a.O.) konnten für Bochum und den Kahlen Asten bestätigt werden.

Ebenso wie an den Meßstellen des UBA ließ sich an den in dieser Arbeit angegebenen Stationen ein ausgeprägter Jahresgang für Chlorid mit maximalen Konzentrationen im Winter (Essen: 3,5 - 5,0 mg/l; Bochum: 3,0 - 3,5 mg/l; Deuselbach: 1-2 mg/l; Kahler Asten 1,6 - 2,3 mg/l) finden. Auf die Gründe wurde bereits eingegangen.

Die für Bochum und den Standort Kahler Asten berechneten Depositionsraten, die sich durch geringere Werte im Juli und August 1982 und höherer Monatssummen im Mai 1981 und Januar 1984 auszeichneten, liegen der 10-fachen Untersuchungszeitraum typischer Niederschlagsverteilung (mg/l) (mg/l) (mg/l) ($\mu\text{g/l}$)

Die auf ein Jahr bezogene Masse $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ - Depositionsraten

	$\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ (mg/l)	$\text{NO}_3^- - \text{N}$ (mg/l)	Cl^- (mg/l)	Pb^{2+} ($\mu\text{g/l}$)
1) Schleswig	1,78	0,76	3,51	12,8
2) Braunschweig	1,96	0,87	1,30	23,2
3) Essen	2,19	0,88	2,03	47,2
4) Kl. Feldberg/Ts.	1,73	0,72	1,15	24,0
5) Frankfurt/M.	1,89	0,76	1,14	32,3
6) Hohenpeißenberg	1,35	0,72	3,64	11,6
7) Bochum	2,09	0,62	2,18	41,0
8) Kahler Asten	1,51	0,53	0,85	10,7

- 1) Die Mittelwerte zu 1 - 6 wurden aus Monatswerten von 'wet-only'-Proben berechnet; Zeitraum 8/79 bis 8/81.
Anzahl der Einzelwerte n = 22 - 25;
Monatswerte wurden entnommen aus: GEORGII et al. (1982).

Tab. 18 Mittlere gewichtete "wet-only" - Konzentrationen im Niederschlagswasser an verschiedenen Stationen (Werte 1 - 6 nach GEORGII et al. 1982)

Die mittlere maximale tägliche Depositionsraten an Kahler Asten betrug 27,4 %. Die Schwankung war sehr groß, und zwar konnte es an einem Tag mehr als 70 % der gesamten Monatsdeposition des Bodens zugeführt, gemessen an der Gesamtablagerung des Maßzeitraumes entsprach der gesamte Monatseintrag jedoch nur einem Anteil von 1,6 %.

Im Mai, wo die maximale tägliche $\text{SO}_4^{2-} - \text{S}$ - Deposition nur einen Wert von etwa 10 % erreichte, wurde jedoch aufgrund der wesentlich höheren Niederschlagsmenge fast dreimal soviel auf nassem Wege abgelagert, wie es vergleichsweise im Juli der Fall war. Allerdings lagerte sich der im Juli dem Boden zugeführte Schwefel in relativ kurzer Zeit (13 Stunden) ab, im Mai Saegen in der 10-fachen Zeit.

Die für Bochum und den Standort Kahler Asten berechneten Depositionsraten, die sich durch geringere Werte im Juli und August 1983 und höhere Monatssummen im Mai 1983 und Januar 1984 auszeichneten, folgen der für den Untersuchungszeitraum typischen Niederschlagsverteilung.

Die auf ein Jahr bezogene nasse SO_4^{2-} - S - Depositionsrates lag für Bochum bei $1,6 \text{ g/m}^2$, für den Kahlen Asten bei $2,05 \text{ g/m}^2$; PERSEKE (a.a.O.) gibt für die Bundesrepublik Deutschland Werte an, die zwischen 1 und $2 \text{ g S/m}^2 \text{ a}$ liegen.

Für NO_3^- - N nennt PERSEKE eine Depositionsrates im Jahresmittel von $0,4 - 0,8 \text{ g N/m}^2 \text{ a}$; MESZAROS et al. (1980) berechneten einen Mittelwert für Europa von $0,7 \text{ g N/m}^2 \text{ a}$; an den Meßstellen Bochum und Kahler Asten lagen die NO_3^- - N - Eintragsraten zwischen $0,5$ und $0,7 \text{ g N/m}^2 \text{ a}$.

Um feststellen zu können, in welcher zeitlichen Verteilung der Spurenstoffeintrag über die nasse Senke an den Standorten Kahler Asten und Bochum erfolgte, wurden die maximalen täglichen nassen SO_4^{2-} - S - Depositionen in Prozenten der monatlichen nassen Gesamtdeposition berechnet. Die mittlere maximale tägliche Depositionsrates am Kahlen Asten betrug $27,4 \%$. Die Schwankung war sehr groß, und zwar wurden im Juli 1983 70% , im Mai, April und September weniger als 10% erreicht.

Somit wurden zwar im Juli an einem Tag mehr als 70% der gesamten Monatsdeposition dem Boden zugeführt, gemessen an der Gesamtablagerung des Meßzeitraumes entsprach der gesamte Monatseintrag jedoch nur einem Anteil von $1,6 \%$. Im Mai, wo die maximale tägliche SO_4^{2-} - S - Deposition nur einen Wert von etwa 10% erreichte, wurde jedoch aufgrund der wesentlich höheren Niederschlagssumme fast dreimal soviel auf nassem Wege abgelagert, wie es vergleichsweise im Juli der Fall war. Allerdings lagerte sich der im Juli dem Boden zugeführte Schwefel in relativ kurzer Zeit (13 Stunden) ab, im Mai dagegen in der 10 -fachen Zeit.

Der für die Konzentrationsverteilung von SMITH (1982) angegebene Wert einer dreifach über dem Mittelwert liegenden Konzentration (3 C-Wert) trat am Kahlen Asten nur in 1,5 %, in Bochum in 2,5 % der Niederschlagsereignisse auf. Der auf dem Kahlen Asten gesammelte Niederschlag bestand zu etwa 50 % aus Schnee- bzw. Schneeregen. Eine nach der Niederschlagsart getrennte Sammlung konnte nicht erfolgen, so daß das Problem der unterschiedlichen Inkorporierung von Spurenstoffen in Schnee oder Regen unerledigt bleiben mußte. Ferner konnten wegen der auf Tagesbasis durchgeführten Probenahme keine Aussagen über die während der Dauer eines Niederschlagsereignisses stattfindenden Konzentrationsveränderungen gemacht werden.

Sequenzanalysen zeigen jedoch, daß zu Beginn eines Niederschlags die Spurenstoffkonzentrationen relativ hoch sind (GEORGII 1965), mit zunehmender Dauer abnehmen und sich auf niedrigerem Konzentrationsniveau einpendeln (BETZ 1976 in JACOBSEN et al. 1982). Hieraus kann geschlossen werden, daß nicht nur die zunehmende Verdünnung, sondern auch der bei einsetzendem Regen in der Luftschicht zwischen Wolkenbasis und Erdboden enthaltene Spurenstoffanteil ausgewaschen wird.

Das wird bestätigt durch Vergleichsmessungen zu diesem Problem auf dem Kahlen Asten und in Bochum. Dabei stellte sich heraus, daß die in Bochum ermittelte Niederschlagssumme 56 % derjenigen des Kahlen Asten betrug, der Anteil des Spurenstoffeintrags an Sulfat jedoch bei 77 %, an Nitrat bei 71 % und an Ammonium sowie an Chlorid bei jeweils 91 % des Kahlen Asten - Wertes lag. Gemessen an der geringeren Regenmenge in Bochum wurden hier höhere Stoffeinträge beobachtet. Setzt man einmal voraus, daß der größte Anteil der nassen Spurenstoffdeposition auf dem wenig belasteten Kahlen Asten überwiegend aus dem 'rain-out' resultiert, dann

müssen die in Bochum gemessenen höheren Stoffeinträge aus dem 'wash-out' der etwa 700 m mächtigen Luftschicht zwischen der Höhenlage des Kahlen Asten und der Station Bochum stammen.

Hiernach betragen die Werte des 'wash-out' - Anteils für Sulfat etwa 40 %, für Nitrat etwa 29 %, für Ammonium und Chlorid hingegen 65 % an der Gesamtdeposition in Bochum.

Vergleichsmessungen, die in Frankfurt/M. und auf dem Feldberg/Taunus durchgeführt wurden (GEORGII 1965), stimmen mit den o.g. bis auf den etwas abweichenden Sulfatwert relativ gut überein. MEURRENS & LENELLE (1976 zit. in BEILKE 1983a) weisen in diesem Zusammenhang darauf hin, daß der Anteil an ausgewaschenem Aerosol nicht unterschätzt werden darf; insbesondere ist das 'below cloud scavenging' für Partikeln $r < 1 \mu\text{m}$ wirksam (GEORGII 1983).

Nach GEORGII (1963) nehmen die Aerosol- und Gaskonzentrationen in der Luft nach einem Regenschauer zwischen 30 % und 73 % (NH_4^+ , NO_3^- , SO_4^{2-}) bzw. um 24 % (NO_2) und 48 % (NH_3) ab; dies zeigt die nicht zu vernachlässigende Wirkung des 'wash-out' - Prozesses auch hinsichtlich von Gasen in verschmutzter Luft.

PETRENCHUK & SELEZNEVA (1970) geben anhand verschiedener Messungen in der Sowjetunion für den 'wash-out' einen Anteil von 45 % bis 78 % an.

2. Mit der BERGERHOFF-Methode wurden mit Hilfe der automatisch arbeitenden Trocken-/Naßsammler in Bochum und auf dem Kahlen Asten die trockenen Depositionen an Sulfat, Nitrat und Chlorid gemessen (die trockene Deposition der gasförmigen Spurenstoffe SO_2 und NO_2 konnte nicht ermittelt werden; Abschätzungen hierzu wurden jedoch mit einer Depositionsgeschwindigkeit von $v_d = 0,8 \text{ cm/s}$ in einer früheren Arbeit vorgenommen, KÜTTLER 1982, 1983 c). Die

Sulfatdepositionsraten lagen zwischen $1,6 \text{ mg S/m}^2 \text{ d}$ (Kahler Asten) und $2,15 \text{ mg S/m}^2 \text{ d}$ (Bochum). Die Werte entsprechen denen, die PERSEKE im UBA - Meßnetz fand ($1 - 2 \text{ mg S/m}^2 \text{ d}$). Im Durchschnitt belief sich der Anteil der trockenen Deposition an der Gesamtdeposition in Bochum und auf dem Kahlen Asten für Sulfat auf $34,1 \%$ und $19,8 \%$, für Nitrat auf $26,8 \%$ und $22,3 \%$, für Chlorid auf $29,2 \%$ und $16,7 \%$. Der Eintrag über die trockene Senke ist im Belastungsgebiet höher als im weniger belasteten Gebiet. Im Sauerland hingegen ist die nasse Deposition noch stärker beteiligt als im Belastungsgebiet. Abweichungen von den Mittelwerten werden durch die Dauer der Trockenperioden zwischen den einzelnen Niederschlagsereignissen gesteuert. So ergab sich im sehr niederschlagsarmen Juli 1983 in Bochum ein Anteil der trockenen Sulfatablagerung, der $70,4 \%$ der gesamten Monatsdeposition erreichte. Während für Sulfat und Nitrat in diesem Monat die Trockendepositionen über denen der Naßdepositionen lagen, traf dies für Chlorid nicht zu. Zumindest für niederschlagsfreie Zeiten im Sommer scheint die trockene Chloriddeposition nicht die dominierende Rolle an der Gesamtablagerung zu spielen, wie sie etwa für Sulfat und Nitrat nachgewiesen wurde. Die Auswertung der mittleren Aerosolkonzentrationen an der Station Kahler Asten zeigte für Sulfat über den Meßzeitraum höchste Konzentrationen, für Nitrat und Chlorid wesentlich niedrigere. Für Sulfat wurden im Juli die höchsten, im Dezember 1983 die niedrigsten Werte gemessen. Hohe SO_4^{2-} - S - Konzentrationen werden mit hohen Einstrahlungsraten in Verbindung gebracht. Der Juli 1983 war ein sehr einstrahlungsreicher Monat (255 h Sonnenscheindauer = 141% des langj. Mittels auf dem Kahlen Asten nach Witterungsbericht NRW, DWD, Juli 1983), in dem es zu hohen photochemischen Umsatzraten kommen konnte.

Die NO_3^- -N-Aerosolkonzentrationen zeigten mehrere Häufungspunkte, und zwar im November/Dezember 1982, im Frühjahr und Sommer 1983 sowie im Frühjahr und Herbst 1984. Die Chloridkonzentrationen in der Luft wiesen in den Wintermonaten und im Frühjahr 1983 höhere Werte auf als in den Sommermonaten.

Das zur Verfügung stehende Datenmaterial erlaubte eine Abschätzung der Depositionsgeschwindigkeiten für die Spurenstoffe SO_4^{2-} -S, NO_3^- -N und Cl^- .

Für Sulfat wurde eine Depositionsgeschwindigkeit von $v_d = 1,4$ cm/s, für Nitrat betrug $v_d = 1,6$ cm/s und für Chlorid 4,5 cm/s.

Diese Werte sind höher als die anderer Untersuchungen, insbesondere höher als diejenigen, die durch Labor- und nicht durch Geländemessungen gewonnen wurden

(Zusammenstellung einzelner Werte in PERSEKE 1982).

Eine Ursache der im Rahmen dieses Projekts berechneten Depositionsgeschwindigkeiten könnte darin liegen, daß die Meßstelle auf dem Kahlen Asten recht nahe am Waldrand stand, ein Umstand, der oft zu einer stärkeren Ansammlung von Aerosolpartikeln führt, da mit zunehmender Rauigkeitslänge die Depositionsgeschwindigkeit ansteigt (SCHWELA 1977).

Auch könnten nur einige wenige große Partikeln, die höhere Depositionsgeschwindigkeiten besitzen, hierfür verantwortlich sein.

Nach DAVIES & NICHOLSON (1982) haben zwar 90 % der Sulfatpartikeln Radien von 0,05 bis 0,5 μm ; etwa 10 % weisen aber Größen zwischen 0,5 und 10 μm auf. Bei diesen großen Sulfatteilchen handelt es sich meistens um Seesalzsulfat oder um vom Boden aufgewirbelte Stäube, die Sulfate enthalten. Bei Sulfaten mit $r > 10$ μm liegt v_d deutlich über 1 cm/s.

EVERETT et al. (1979 zit. in DAVIES & NICHOLSON 1982) fanden bei ihren Untersuchungen Depositionsgeschwindigkeiten für Sulfat, die genau so groß waren, wie die in dieser Arbeit berechneten, nämlich $v_d = 1,4$ cm/s. Nach ihren

Untersuchungen spielen die atmosphärischen Schichtungsverhältnisse eine große Rolle.

3. Die größte Abhängigkeit der Spurenstoffkonzentrationen im Niederschlagswasser von der Windrichtung zeigte auf dem Kahlen Asten der Spurenstoff Chlorid, der im Regenwasser bei nordwestlichen Winden hohe Konzentrationen erreichte; bei kontinentalen Ostlagen wurden hingegen die niedrigsten Konzentrationen gemessen. Damit wird der meerbürtige Eintrag dieses Spurenstoffes unterstrichen.

Gemessen an der über den Untersuchungszeitraum aufsummierten Gesamtablagerung entfielen für die einzelnen Spurenstoffe Anteile von mehr als 60 % auf die hauptregenbringenden Richtungen Südwest und West. Dies steht in Übereinstimmung mit den von PERSEKE (1982) gefundenen Werten an den UBA-Stationen.

Die für den Standort Kahler Asten berechneten Sektorenmittel (achtteilige Windrose) zeigten im Vergleich zur hauptregenbringenden Richtung jedoch ein etwas anderes Bild: So wurden für (die von der Anzahl her wenigen) Niederschläge aus Richtung Ost die höchsten mittleren Eintragsraten für alle Spurenstoffe bis auf Chlorid berechnet. Diese hohen Einträge waren allerdings nicht auf extrem hohe Konzentrationen zurückzuführen, sondern auf verstärkte Schauertätigkeit während einer Vb-Lage im Mai 1983. Im Vergleich zum Gesamteintrag war der Anteil der aus östlicher Richtung importierten Depositionen natürlich klein, da es sich zwar um ergiebige, jedoch nur um wenige Schauer handelte.

4. An hochgelegenen Stellen im weniger belasteten Mittelgebirge (Kahler Asten) wurde im Jahresdurchschnitt mehr über die nasse Deposition dem Boden zugeführt als vergleichsweise an der Station im Belastungsgebiet (Bochum).

Abweichend hiervon ließen sich jedoch deutliche monatlich auftretende Unterschiede erkennen.

So konnte festgestellt werden, daß der Spurenstoffeintrag auf dem Kahlen Asten gegenüber Bochum dann überwiegt, wenn im Mittel die Differenz der Monatssumme an Niederschlägen auf dem Kahlen Asten um mindestens 40 mm höher ist als in Bochum; da insbesondere in den Sommermonaten diese Grenze unterschritten wurde, überwog in der warmen Jahreszeit der nasse Sulfateintrag im Belastungsgebiet gegenüber dem hochgelegenen weniger belasteten Standort Kahler Asten.

5. Zur Frage des prozentualen Anteils der wichtigsten säurebildenden Anionen im Niederschlagswasser kann festgestellt werden, daß für die Meßstelle im Belastungsgebiet und für diejenige im weniger belasteten Gebiet ein Anteil von über 50 % auf die Sulfationen entfällt; an zweiter Stelle folgen für die Meßstelle Bochum die Chloridionen (26 %), dann die Nitrationen, die hier zu 18,5 % an der Säurebildung beteiligt sind. Auf dem Kahlen Asten überwiegt stattdessen an zweiter Stelle das Nitrat gegenüber dem Chlorid; für den höheren Chloridanteil in Bochum könnten die etwas nähere Lage zum Meer und auch die durch industrielle Prozesse verursachte Freisetzung von HCl verantwortlich sein.

Die für die beiden Meßstationen angegebenen Prozentwerte sind mit denen an anderen Meßstellen gefundenen vergleichbar.

OTTAR (1978) und MARSH (1978) weisen der Schwefelsäure ebenfalls die Stelle des Hauptsäurelieferanten zu, gefolgt von der Salpetersäure, die einen Beitrag von 20 % bis 50 % zum Säuregehalt des Niederschlagswassers liefert. WILSON et al. (zit. in GEORGII et al. 1982) nennen nach Messungen an amerikanischen Standorten eine Beteiligung der Anionengehalte im Niederschlagswasser für Sulfat von 68 - 70

%, für Nitrat eine von 23 - 27 % und für Chlorid eine von 4 - 10 %.

Ergebnisse des UBA-Meßnetzes in der Bundesrepublik Deutschland sprechen dem Sulfat eine Beteiligung am Säurebildungsprozeß von 50 - 60 %, dem Nitrat eine von 25 - 30 % und dem Chlorid eine von 10 bis 15 % zu. Für letztgenannten Spurenstoff konnten Erhöhungen (um bis zu 40 %) in Regenwasserproben festgestellt werden, die aus industriellen Ballungsräumen und von Küstenstationen stammten (GEORGII et al. 1982, GRAVENHORST et al. 1980, MÜLLER et al. 1982).

An der Station Bochum und auf dem Kahlen Asten wurden darüber hinaus saisonale Unterschiede der einzelnen Anionengehalte im Niederschlagswasser ermittelt. So war der Gehalt an Sulfatanionen in Bochum im Sommer höher; auf dem Kahlen Asten hingegen wurden die höchsten Werte im Herbst und Frühjahr erreicht.

Die eindeutig größte Jahreszeitenabhängigkeit wiesen jedoch die Chloridanionen auf, deren Anteile am Säurebildungsprozeß im Winter und Herbst diejenigen des Sommers und Frühjahrs übertrafen. Auch für die Nitratanionen konnten jahreszeitliche Abhängigkeiten erkannt werden: für den Sommer und in einem etwas geringeren Maße für das Frühjahr wurden an beiden Meßstellen höhere Anteile berechnet als im Winter.

Die verwendeten Sammelrichter besaßen eine Auffangfläche von 200 cm², die mit ihnen verbundenen, im Erdboden strahlungsgeschützt angebrachten Vorratsflaschen eine Fassungsvermögen von 1000 cm³.

4.1.2.3 Trocken-/Nasssammler

Es wurden zwei automatisch arbeitende Trocken-/Nasssammler verwendet, von denen einer freundlicherweise für die Dauer der Messperiode vom Institut für Meteorologie und Geophysik

6. Sammel-, Analysen- und Berechnungsmethoden

6.1 Sammelmethoden

Das Niederschlagswasser sowie die Immissionsraten gas- und partikelförmiger Spurenstoffe wurden mit Hilfe verschiedener Meß- und Sammelgerätetypen erfaßt.

6.1.1 Niederschlagswasser- und Staubauffanggeräte

Als Auffanggeräte für Regen- und Schneeproben an den verschiedenen Standorten dienten die nachfolgend beschriebenen Geräte:

6.1.1.1 'bulk' - Sammler

Hierbei handelt es um permanent offene Auffanggefäße, die aus Auffangtrichtern und Sammelflaschen aus Polyäthylen bestehen und in 1,5 m Höhe über kurzgehaltenem Rasen installiert worden waren. Da die Auffangtrichter ständig offen sind, werden mit ihnen sowohl nasse als auch trockene Depositionen als integrierte Summenprobe über den entsprechenden Zeitraum erfaßt. Eine Unterscheidung in den trocken und naß deponierten Anteil ist mit dieser Auffangmethode nicht möglich.

Die verwendeten Sammeltrichter besaßen eine Auffangfläche von 200 cm^2 , die mit ihnen verbundenen, im Erdboden strahlungsgeschützt angebrachten Vorratsflaschen ein Fassungsvermögen von 1000 cm^3 .

6.1.1.2 Trocken-/Naßsammler

Es wurden zwei automatisch arbeitende Trocken-/Naßsammler verwendet, von denen einer freundlicherweise für die Dauer der Meßperiode vom Institut für Meteorologie und Geophysik

Univ. Frankfurt/M. zur Verfügung gestellt und auf dem Kahlen Asten eingesetzt wurde.

Bei dem anderen Sammler handelt es sich um einen vereinfachten Nachbau des Frankfurter Gerätes, das im Gegensatz zu diesem über keine Schwebstoffsammeleinrichtung verfügte. Dieses Gerät war vom Labor des Geographischen Institutes nach Frankfurter Anleitungen gebaut und im Botanischen Garten der Ruhr-Universität eingesetzt worden (ausführliche Beschreibungen zum Bau des erstgenannten Gerätes finden sich in GEORGII et al. 1980; KOCH 1979; ROHBOCK et al. 1982).

Ein Trocken-/Naßsammler besteht im wesentlichen aus zwei Sammelgefäßen: einem für die trockenen Ablagerungen und einem anderen für die nassen Ablagerungen. Für beide Gefäße steht nur ein Deckel zur Verfügung, der über einen Niederschlagssensor einen Elektromotor in Gang setzt und jeweils ein Gefäß abdeckt.

Beginnt es zu regnen, meldet der über das Verdunstungsprinzip arbeitende Regensensor dieses dem Spindelmotor und der Mechanik, die dann das Trockendepositionssammelgefäß schließen.

Der Regen gelangt über einen aus Polyäthylen bestehenden Auffangtrichter (Bochumer Gerät: 755 cm², Frankfurter Gerät: 490 cm²) in ein unterhalb des Trichters angebrachtes Vorratsgefäß.

Der am Gerät angebrachte Feuchtesensor besteht aus einem 20 mm starken beheizbaren Edelstahlrohr (Firma Lambrecht, Göttingen); er arbeitet nach dem Prinzip der elektrischen Widerstandsänderung bei Regenbeginn durch darauffallende Regentropfen. Der Sensor wurde so empfindlich eingestellt, daß auch noch Nieselregen mit dieser Methode aufgefangen werden konnte. Da die Effektivität bei Schneefall anfänglich nur gering war, wurde ein Polyäthylenetz trichterförmig über den Sensor gestülpt, um die Schneeauffangfläche zu

vergrößern. Dieses ermöglichte dann auch die Erfassung von Schneefällen.

Der Sensor sprach jedoch nicht auf Nebel an, so daß dieser nicht als nasse Deposition ermittelt werden konnte.

Endet der Niederschlag, d.h. wird der Sensor von keinem Regentropfen mehr getroffen und ist alles Regenwasser auf ihm verdunstet, hebt sich der Deckel vom Trockengefäß ab und schließt das Naßgefäß, so daß in der regenfreien Zeit die trockenen Depositionen aufgefangen werden können.

Die trockene Deposition wurde mit Hilfe der direkten Meßmethode jeweils für einen einwöchigen Zeitraum ermittelt. Nach PERSEKE (1982) können kleinräumige Einflüsse am Meßgerät hinsichtlich der Reproduzierbarkeit der Messergebnisse der trockenen Deposition vernachlässigt werden.

Der Raum unter den beiden Depositionsgefäßen wird durch eine thermostatisch geregelte Heizung auf + 5 Grad C Lufttemperatur gehalten, um das Einfrieren des täglich anfallenden Probenwassers und das der Elektronik in der kalten Jahreszeit zu verhindern.

Das Gerät, das uns freundlicherweise vom Institut für Meteorologie für das Meßvorhaben geliehen wurde, verfügte außerdem über eine Einrichtung zur Schwebstaubmessung mittels Membran- (47 mm Durchmesser, 0,45 µm Porengröße) und Teflonfilter (47 mm Durchmesser, 0,2 µm Porengröße), über die in etwa 1,6 m Höhe über Grund bei einer mittleren Ansaugrate von 1 m³/h die Außenluft angesaugt wurde und die dabei die Staubpartikeln auffingen (GEORGII et al. 1980). Über allgemeine Meßprobleme mit Trocken-/Naßsammlern informieren z.B. SLANINA (1983) und VDI RDL (1983).

6.1.1.3 SAM-Stationen

SAM-Stationen (surface active monitoring) dienen zur Erfassung der überwiegend aus der Gasphase stammenden Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten.

Als Immissionsrate wird "die pro Flächeneinheit von einem Rezeptor in einer Zeiteinheit aufgenommene Gesamtmenge des Schadstoffes" bezeichnet (UBA 7/84, 1984, S. 2).

Mit dieser sehr einfach zu handhabenden Meßmethode läßt sich "die trockene potentielle Ablagerung saurer Luftverunreinigungen großräumig erfassen" (UBA a.a.O.).

Sie geht auf FUKUI (1966) und WALLAR & HUEY (1969) zurück (zit. in UBA 7/84, 1984) und eignet sich besonders für die Messung saurer Luftschadstoffe in Gebieten, in denen keine Energieversorgung zum Betreiben einer Meßstation vorhanden ist.

Das Meßprinzip kann in etwa mit demjenigen verglichen werden, das LUCKAT (1972, 1981) bei den IRMA-Geräten (Immissionsratenmeßanlage) anwandte. Obwohl der Vorteil der von LUCKAT entwickelten Geräte in einer permanent mit Reaktionslösung überspülten Akzeptorfläche besteht, liegt ihr Nachteil in einer notwendigen Stromversorgung zum Betreiben des Gerätes.

Eine kritische Analyse von Meßwerten, die mit einem SAM-Gerät ermittelt wurden, ist in GEORGII et al. (1984) enthalten.

Für die Erfassung von Schwefel- und Stickstoff-Immissionsraten mit Hilfe des SAM-Gerätes wurden an 16 Standorten im Sauerland und an einer Vergleichsstation im Botanischen Garten in Bochum jeweils vier in Petrischalen eingeklebte Papierfilter verwendet, die etwa 1,5 m über Grund mit der Öffnung nach unten in dafür vorgesehenen Halterungen an einem BERGERHOFF-Gerät befestigt waren. Die vier Petrischalen besaßen einen Durchmesser von 60 mm, die Filter eine Oberfläche von $19,2 \text{ cm}^2$. Aus jeweils zwei Filtern wurden die Immissionsraten der beiden Spurenstoffe bestimmt. Ein Filter eines Paares war mit Kaliumcarbonat (1

ml K_2CO_3 , 30 %-ig) präpariert, das andere blieb unbehandelt. Im allgemeinen ist die Immissionsrate an den mit K_2CO_3 behandelten Filtern höher als an den unbehandelten.

Zur Auswertung nur die Analysenergebnisse der mit K_2CO_3 behandelten Filter herangezogen.

An den uns vom UBA freundlicherweise zur Verfügung gestellten SAM-Stationen wurden über einen Zeitraum von jeweils vier Wochen die Immissionsraten ermittelt und das bulk-Niederschlagswasser analysiert.

6.2 Analysenmethoden

Die Niederschlagswasserproben ('wet-only' und 'bulk') wurden auf pH-Werte, elektrische Leitfähigkeit und die Spurenstoffe SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Ca^{2+} und Pb^{2+} und z.T. auch auf F^- analysiert.

Von den Staubsedimentations- und Filterproben wurden SO_4^{2-} , NO_3^- und Cl^- gemessen.

Ein Teil des Probengutes wurde ionenchromatographisch analysiert, und zwar die aus dem Meßprogramm Sauerland (12/82 - 12/83) stammenden 'bulk' - Niederschlagswasserproben und die SAM-Filter im Labor des Umweltbundesamtes Deuselbach, die Staubsedimentationsproben der Trocken-/Naßsammler im Labor des Institutes für Meteorologie und Geophysik in Frankfurt/M.

Die 'wet-only' - Niederschläge der mit dem Trocken-/Naßsammler aufgefangenen Proben wurden im Labor des Geographischen Institutes analysiert, und zwar auf naßchemischem Wege: SO_4^{2-} gravimetrisch, NO_3^- photometrisch

mit Salicylsäure, NH_4^+ photometrisch mit Neßlers Reagenz und Pb^{2+} photometrisch mittels Dithizon.

Der pH-Wert und Chlorid wurden über Einstabmeßketten (SCHOTT Nr. 61 bzw. SCHOTT Ag 61), die elektr. Leitfähigkeit mit einer Leitfähigkeitsmeßzelle LTA 100/k, Ca^{2+} mit dem Atomabsorptionsspektrometer ermittelt. Auf Probleme bei der Messung von pH-Wert und elektr. Leitfähigkeit weist WINKLER (1978) hin.

Die naßchemischen Analysen orientierten sich an den Analysenvorschriften von ANONYMUS (1971), IWANTSCHOFF (1972) und LANGE (1970).

Vergleichsmessungen zwischen den auf ionenchromatographischem Wege bestimmten Konzentrationen und denen, die naßchemisch bestimmt wurden, zeigten weitgehende Übereinstimmung der Werte.

6.3 Berechnungsmethoden

Für die analysierten Spurenstoffe wurden die Konzentrationen in der Einheit (mg/l) Regenwasser bestimmt; aus den Einzelwerten wurden nach Gl. (1) arithmetische Mittelwerte, nach Gl. (2) die mit der entsprechenden Niederschlagsmenge gewichteten Mittelwerte berechnet, der mittlere pH - Wert als negativer Logarithmus der mittleren H^+ - Ionenkonzentration dargestellt.

$$M_{\text{gew}} = \frac{\sum Ni \cdot Ki}{\sum Ni} \quad (1)$$

$$M_{\text{arith}} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n Ki \quad (2)$$

M_{arith} = arithmetischer Mittelwert

M_{gew} = gewichteter Mittelwert

n = Anzahl der Proben

K = Konzentration

N = Niederschlagsmenge

Die Niederschlagsmengen wurden in der Einheit ($\text{mm} = \text{l/m}^2$) angegeben. Aus den Spurenstoffkonzentrationen und den in den entsprechenden Zeiträumen gefallenen Niederschlagsmengen wurden die Depositionsraten nach Gl. (3) berechnet, und zwar in der Einheit ($\text{mg/m}^2 \text{ d}$).

$$D_t = K_t \times N_t \quad (3)$$

D_t = Spurenstoffdeposition (mg/m^2)
im Zeitraum t

K_t = Spurenstoffkonzentration (mg/l)
im Zeitraum t

N_t = Niederschlagsmenge (l/m^2)
im Zeitraum t

t = Meßzeitraum Tag, Woche, Monat

7. Danksagung

Die voranstehenden Untersuchungen wurden im Rahmen der Vergabe eines Teilprojektes seitens des Instituts für Met. und Geophysik der Universität Frankfurt/M. und des Umweltbundesamtes, Pilotstation Frankfurt/M., durchgeführt. Dem Projektleiter des gesamten Forschungsvorhabens, Herrn Prof. Dr. H.-W. Georgii, danke ich für die technische und finanzielle Unterstützung des Meßprogramms sowie für die freundliche Genehmigung zum Nachbau eines an seinem Institut entwickelten Trocken-/Naßsammlers und für die leihweise Überlassung eines solchen Gerätes.

Außerdem danke ich

- den Mitarbeitern des Instituts für Meteorologie und Geophysik der Univ. Frankfurt/M.
- Herrn Dipl.-Met. W. Grosch, Umweltbundesamt, Pilotstation Frankfurt/M.
- denjenigen staatlichen Forstamtsbereichen, die die Waldflächen des Untersuchungsgebietes verwalten
- den Leitern des Wetteramtes Essen, den Herren Dipl.-Met. Köbke und Dipl.-Met. Puls
- dem Meßstellenleiter der Klimastation des Deutschen Wetterdienstes auf dem Kahlen Asten, Herrn Pfennig und Mitarbeitern
- dem Meßstellenleiter der UBA-Meßstelle Deuselbach, Herrn Rumpel und Mitarbeitern
- Herrn Dipl.-Geogr. K.H. Rochlitz, Universität Eichstätt

- meinen Mitarbeitern der Arbeitsgruppe Klimatologie am
Geographischen Institut der Ruhr-Universität Bochum

sowie

- den Mitarbeitern des Labors des Geographischen Instituts
der Ruhr-Universität Bochum

Literaturverzeichnis

ANONYMUS (1971):

Ausgewählte Methoden der Wasseruntersuchung.

Band I: Chemische, physikalisch - chemische, physikalische
und elektrochemische Methoden.

Jena

BEILKE, S. (1983 a):

Acid deposition. The present situation in Europe.

In: BEILKE, S. & A.J. ELSHOUT (1983) (eds.):

Acid Deposition. Proc. CEC Workshop, 9. Sept. 1982,

Berlin, pp. 3-30

BLOCK, J. & U. BARTELS (1983):

Hohe Konzentrationen von Luftverunreinigungen in den Wald-
niederschlägen. Meßjahr 1981/82 in Olpe und in der Haard.

In: LÖLF - Mitteilungen, 1983, 8, Heft 4, S. 19-34

DÄMMGEN, U. (1984):

Feststellung von Schwefeldepositionen und -immissionen
im Ostbraunschweiger Raum.

In: Braunsch. Naturk. Schr. 2, H. 1, S. 237-252

DAVIES, T.D. & K.W. NICHOLSON (1982):

Dry deposition velocities of aerosol sulphate in rural
eastern England.

In: GEORGII, H.W. & J. PANKRATH (eds.) (1982):

Deposition of Atmospheric Pollutants, pp. 31-42

GALLOWAY, J.N. & G.E. LIKENS (1978):

The collection of precipitation for chemical analysis.

In: Tellus 30, pp. 71-82

GEORGII, H.W. (1963):

On the effect of rainfall on the SO₂ concentration in the atmosphere.

In: Int. J. Air Water Poll., Vol. 7, pp. 1057-1059

GEORGII, H.W. (1965):

Untersuchungen über Ausregnen und Auswaschen atmosphärischer
Spurenstoffe durch Wolken und Niederschlag.

In: Ber. d. DWD 14, Bd. 100

GEORGII, H.W. (1983):

Chemische Reaktionen von Gasen und Aerosolen in Regen- und Wolkentropfen und ihre feuchte und trockene Deposition.

In: Chemische und physikalische Reaktionen von Spurenstoffen in der Atmosphäre, VDI-Bildungswerk Seminar, 22.-23.3.1983, Düsseldorf

GEORGII, H.W.; C. PERSEKE; E. ROHBOCK & G. GRAVENHORST (1980):

Untersuchung über die trockene und feuchte Deposition von Luftverunreinigungen in der Bundesrepublik Deutschland.

Umweltforschungsplan des Bundesministers des Innern. Forschungsprojekt 10402600, Institut für Meteorologie und Geophysik, Frankfurt/M.

GEORGII, H.W.; PERSEKE, C. & E. ROHBOCK (1982):

Feststellung der Deposition von sauren und langzeitwirksamen Spurenstoffen aus Belastungsgebieten.

Umweltforschungsplan des Bundesministers des Innern. Luftreinhaltung, Forschungsprojekt 10402600 sowie Datenband. Im Auftrag des Umweltbundesamtes.

GEORGII, H.W.; ROHBOCK, E. & G. SCHMITT (1984):

Untersuchung des atmosphärischen Schadstoffeintrags in Waldgebieten in der Bundesrepublik Deutschland.

Forschungsprojekt 10402715 Luftreinhaltung. Umweltforschungsplan des Bundesministers des Innern. Im Auftrag des Umweltbundesamtes

GEORGII, H.W. & G. SCHMITT (1985):

Methoden und Ergebnisse der Nebelanalyse.

In: Staub - Reinhaltung der Luft 45, Nr. 6, S 260-264

GRAVENHORST, G.; C. PERSEKE; E. ROHBOCK & H.W. GEORGII (1980):

Untersuchungen über die trockene und feuchte Deposition von Luftverunreinigungen in der BRD.

Forschungsbericht: Institut f. Met. d. Univ. Frankfurt/M.

IWANTSCHIEFF, G. (1972):

Das Dithizon und seine Anwendung in der Mikro- und Spurenanalyse.

Weinheim/Bergstr.

JACOBSEN, J.; E. MÜLLER; M. HEESE &
M. BETZ (1982):

Untersuchungen zur großräumigen Ausbreitung von
Luftbeimengungen.
Umweltforschungsplan des Bundesministers des Innern,
Luftreinhaltung, Forschungsprojekt 10404105,
Deutscher Wetterdienst, Abt. Forschung

KINS, L. (1982):

Temporal variation of chemical composition of rainwater during
individual precipitation events.

In: GEORGII, H.W. & J. PANKRATH (eds.) (1982):
Deposition of Atmospheric Pollutants, pp. 87-96

KLAUS, D. (1984):

Langfristige Beziehungen zwischen Luftverunreinigungen und
Großwettergeschehen.

In: Abhandlungen der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen
Klasse, Jg. 1984, Nr. 2

KLUG, W. & W.P. GERTH (1980):

Recent Investigations into the Interregional Transport of
Air Pollutants.

In: MORAWA, C. (ed.): Co-operation between the Netherlands
and the Federal Republic of Germany on air Pollution Problems.
Rijks Instituut voor de Volksgezondheid/Umweltbundesamt

KOCH, C. (1979):

Experimentelle Untersuchung der trockenen und nassen Ablagerung
der atmosphärischen Schwefelverbindungen SO₂ und Sulfat.

Dipl. - Arb. Inst. Met. u. Geophys.,
Univ. Frankfurt/M.

KUTTLER, W. (1979):

Einflußgrößen gesundheitsgefährdender Wetterlagen und deren
bioklimatische Auswirkungen auf potentielle Erholungsgebiete
am Beispiel des Ruhrgebietes und des Sauerlandes.
Bochumer Geographische Arbeiten, Heft 36

KUTTLER, W. (1982):

Investigations about wet deposition of pollutants in an urban ecosystem.

- In: GEORGII, H.W. & J. PANKRATH (eds.): Deposition of Atmospheric
Dordrecht, Holland, 1982, S.97-113.

- KUTTLER, W. (1983 a):
Immissionsbelastungen des Bergisch-Sauerländischen Gebirges.
In: Monatsberichte aus dem Meßnetz, Nr. 5/83, Umweltbundesamt,
- KUTTLER, W. (1983 b):
Anthropogenes Schwefelproblem und saure Niederschläge.
In: Wohnbauforschung in Österreich, Heft 1/2, S. 1-8
- KUTTLER, W. (1983 c):
Trockene und nasse Schwefeldepositionen im Mittleren Ruhrgebiet.
In: Verh. Ges. f. Ökol., Bd. X, Mainz 1981, S. 457-472
- LANGE, B. (1970):
Kolorimetrische Analyse.
Weinheim/Bergstraße
- LIS (= Landesanstalt für Immissionsschutz des Landes
Nordrhein-Westfalen, Essen):
Monatsberichte über die Luftqualität an Rhein und Ruhr
(beginnend 1/83)
- LUCKAT, S. (1972):
Ein Verfahren zur Bestimmung der Immissionsrate gasförmiger
Komponenten.
In: Staub - Reinh. Luft 32, Nr. 12, S. 484-486
- LUCKAT, S. (1981):
Quantitative Untersuchung des Einflusses von Luftverunreinigungen
bei der Zerstörung von Naturstein.
In: Staub - Reinh. Luft 41, Nr. 11, S. 440-442
- MARSH, A.R.W. (1978):
Sulphur and nitrogen contributions to the acidity of rain.
In: Atmos. Environ. 12, p. 401
- MESZAROS, E.; K. BONIS & M. PUTSAY (1980):
On the atmospheric budget of nitrogen compounds over Europe.
In: Idöjaras, 84, (2), pp. 57-67
- MÜLLER, J.; H. REUVER & D. JOST (1982):
Measurements of F, Cl, NO₃ and SO₄-ions in rainwater and
particulate matter by aid of ionic-chromatography.
In: Proc. 2nd European Symp. on Physic-Chemical Behaviour of
Atm. Pollutants, Varese (Italy), 29.9. - 1.10. 1982,
pp. 440-448

OTTAR, B. (1978):

An Assessment of the OECD-Study on long range transport of air pollutants (LRTAP).

In: Atmos. Environ. 12, pp. 445-454

PERSEKE, C. (1982):

Die trockene und feuchte Deposition säurebildender atmosphärischer Spurenelemente.

In: Ber. Inst. Met. u. Geophys. Univ. Frankfurt/M., Nr. 48

PETRENCHUK, O.P. & E. SELEZNEVA (1970):

Chemical composition of precipitation in regions of the Soviet Union.

In: J. Geophys. Res. 75, pp. 3629-3634

RIDDER, T.B. & A.J. FRANTZEN (1983):

Acid Precipitation over the Netherlands.

In: BEILKE, S. & A.J. ELSHOUT (eds.): Acid Deposition, pp. 123-128

ROHBOCK, E. & H.W. GEORGII (1982):

Ein Depositionssammelgerät zur getrennten Erfassung der trockenen und feuchten Deposition atmosphärischer Schadstoffe. Bericht im Auftrag des Umweltbundesamtes, Forschungsprojekt 10402600

SCHREIBER, D. & P.H. Wieser, (1965):

Zur Funktion der Bewölkung bei der Niederführung von Spaltproduktaerosolen.

In: Beitr. Physik der Atmosphäre 38, 3/4, S. 236-251

SCHWELA, D. (1977):

Die trockene Deposition von gasförmigen Luftverunreinigungen.

In: Schriftenreihe der Landesanstalt für Immissionsschutz, 42, S. 46-85

SLANINA, I. (1983):

Collection and analysis of precipitation. Methods, data evaluation and interpretation.

In: VDI-Berichte Nr. 500, pp. 117-124

SMITH, F.B. (1982):
Transport Process and Meteorological Factors.
In: RODHE, H.; A. ELIASSEN; J. ISAKSEN; F.B. SMITH & D.M. WHELPDALE
(1982): Tropospheric chemistry and Air Pollution, WMO, Techn. Note
No. 176, WMO-No. 583, pp. 11-32

SMITH, F.B. (1983):
Conditions pertaining to high acid concentrations in rain.
In: VDI-Berichte Nr. 500, pp. 67-75

STERN, A.C. (1976):
Air pollution, Vol. I, 3. Aufl., New York,

UBA (= Umweltbundesamt) (1983):
Monatsberichte aus dem Meßnetz, 2/83.

UBA (= Umweltbundesamt) (1984):
Monatsberichte aus dem Meßnetz. 5/84.

VDI RDL (= Verein Deutscher Ingenieure - Kommission
Reinhaltung der Luft) (Hrsg.):
Säurehaltige Niederschläge - Entstehung und Wirkungen auf
terrestische Ökosysteme.
Düsseldorf 1983

WINKLER, P. (1978):
Fehler bei der Spurenstoffanalyse im atmosphärischen
Niederschlag, dargestellt am Beispiel von pH-Wert und
elektrischer Leitfähigkeit.
In: Staub - Reinh. Luft 38, S. 175-177