

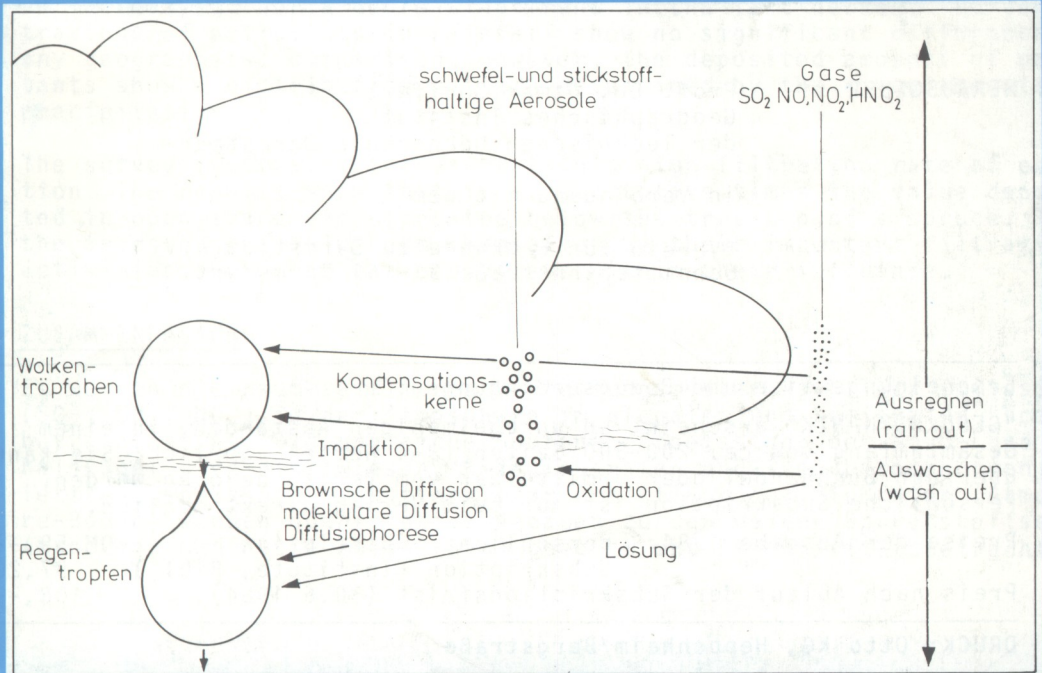
GEO -öko- dynamik

̄, 1/2 - 1984

HERAUSGEBER: OTMAR SEUFFERT



in Verbindung mit dem
VEREIN FÜR ERDKUNDE
ZU DARMSTADT e.V.



G E O Ö K O D Y N A M I K
BAND 5, HEFT 1/2, 1984

INHALT:	Seite
N. STEIN	Natürliche Klimaschwankungen und anthropogene Klimamodifikationen 1
W. KUTTLER	Spurenstoffe in der Atmosphäre- ihre Verteilung und regionale Ablagerung 29
L. ZIMMERMANN & D. KELLETAT	Die schleichende Ölpest im Mittelmeer- ihre Auswirkungen auf Ökologie und Küsten- formung als Beispiel für die Beeinflussung natürlicher Prozesse durch anthropogenes Fehlverhalten 77
L. HEMPEL	Geoökodynamik im Mittelmeerraum während des Jungquartärs. Beobachtungen zur Frage "Mensch und/oder Klima?" in Südgriechen- land und auf Kreta 99

HERAUSGEBER Prof. Dr. Otmar Seuffert
Geographisches Institut
der Technischen Hochschule Darmstadt

in Verbindung mit dem

"Verein für Erdkunde zu Darmstadt e.V."
Schnittspahnstraße 9 - 61 Darmstadt

Erscheinungsweise und Bezugsbedingungen:

"GEOÖKODYNAMIK" erscheint unregelmäßigen Abständen, in einem Gesamtumfang von ca. 200-300 Seiten (2-4 Hefte) jährlich. Sie kann über den Buchhandel oder unmittelbar vom Verlag bezogen werden. Persönliche Subskription ist nur beim Verlag direkt möglich.

Preise der Ausgabe 1984: persönliche Subskription DM 59,--
Subskription (Institute, Bibl.) 97,20
Preis nach Ablauf der Subskriptionsfrist (30.6.1984) 108,--

DRUCK: Otto KG, Heppenheim/Bergstraße

SPURENSTOFFE IN DER ATMOSPHERE
- IHRE VERTEILUNG UND REGIONALE ABLAGERUNG -

WILHELM KUTTLER, BOCHUM

SUMMARY:

This lecture is a survey of the regional and temporal distribution of essential amounts of pollution (SO_2 , SO_4 , NO_x) in the atmosphere observed on a global and regional scale. It hints at the fact of different amounts of pollution in the northern and southern hemisphere and illustrates the rates of pollution and calculations of the trends during the last decades.

For the determination of the exchange rates (atmosphere - soil) the quantities of both forms of deposition (dry and wet deposition) are considered as well as their effects on industrial regions and clean air areas. Referring to wet deposition SO_4 and NO_x are proved as the essential 'acidifiers' of precipitation; additionally it is illustrated that the pH-values of precipitation in Europe have neither shown an increasing, nor a decreasing trend in the last decade. The concentrations of pollutants in rainfall show no significant differences in any geographical comparison, however, the deposited amounts of pollutants show a distribution pattern determined by the given amounts of precipitation.

The survey illustrates the vegetation's high filtration rate of pollution. The results show that i. e. about five times the value deposited in open spaces is deposited below the tree-top of a spruce. Thus, the trees do not only harm themselves by their important filtration activities, but also the ecosystems within their influence.

ZUSAMMENFASSUNG:

Es werden die raum-zeitlichen Verteilungsmuster wichtiger Immissionen (SO_2 , SO_4 , NO_x) in der Atmosphäre im globalen und regionalen "scale" betrachtet. Auf die ungleiche Spurenstoffbelastung der Nord- und Südhalbkugel wird hingewiesen, Emissionsraten und Trendberechnungen der letzten Jahrzehnte diskutiert. Zur Ermittlung der Flußraten (Atmosphäre-Boden) werden quantitative Angaben zu den beiden Spurenstoffsenken (trockene und nasse Ablagerung) gemacht und Effektivitätsbetrachtungen

für Industrie- und unbelastete Gebiete angestellt. Hinsichtlich der nassen Ablagerung wird gezeigt, daß die Säurebildner im Niederschlagswasser im wesentlichen SO_4 und NO_x sind; darüberhinaus wird verdeutlicht, daß der pH-Wert der Niederschläge in Europa in dem letzten Jahrzehnt im Mittel keinen ansteigenden bzw. abfallenden Trend zeigt.

Die Spurenstoffkonzentrationen des Niederschlagswassers weisen im geographischen Vergleich keine signifikanten Unterschiede auf, die Spurenstoffdepositionen zeigen jedoch ein durch die Niederschlags-summe bestimmtes Verteilungsmuster. Die hohe Filterrate der Vegetation gegenüber Luftverunreinigungen wird erläutert. Die Ergebnisse zeigen, daß unter dem Kronendach einer Fichte z. B. etwa 5 mal so viel Schwefel abgelagert wird wie im Freiland. Durch die große Filteraktivität der Bäume schädigen sich diese nicht nur selbst, sondern auch die von ihnen beeinflussten Ökosysteme.

Bei der Diskussion über die Entfernung anthropogener Spurenstoffe aus der Atmosphäre wird der nassen Deposition, die häufig verallgemeinernd mit dem Begriff "saurer Regen" charakterisiert wird, als Schadstoffsенke vielfach eine Bedeutung beigemessen, die sie strenggenommen nur zu einem Teil erfüllt: Sie stellt schließlich nur eine Senke für atmosphärische Spurenstoffe dar, durch die diese aus der Luft entfernt werden. Der andere, nicht unwichtige, je nach Nähe zu den Emissionsquellen für bestimmte Spurenstoffe sogar wesentlich effektivere Senkenmechanismus läßt diese auf trockenem Wege - also ohne die Beteiligung von Regen und Schnee - auf den Oberflächen deponieren und Wirkungsbeziehungen eingehen. Das nachfolgend zu behandelnde Thema berücksichtigt deshalb beide Ablagerungsraten.

1. Arten, Emissionsstärken und Immissionskonzentrationen der wichtigsten Luftverunreinigungen

Im Sinne der Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft (TA-Luft 1974) spricht man von verunreinigter Luft, wenn "die natürliche Zusammensetzung der Luft, insbesondere durch Rauch, Ruß, Staub, Gase, Aerosole, Dämpfe und Geruchsstoffe" verschmutzt ist.

Die bodennahe Atmosphäre, die als ein aus mehreren Komponenten bestehendes Gasgemisch charakterisiert wird, enthält - dispers verteilt - etwa 500 verschiedene partikel- und gasförmige Spurenstoffe, deren wichtigste Gruppen in Tabelle 1 zusammengestellt sind. Von den hier aufgezählten Gruppen spielen im Luftverunreinigungsprozeß insbesondere die Schwefel- und Stickstoffverbindungen eine große Rolle. Auf beide Gruppen wird nachfolgend deshalb etwas näher eingegangen.

1. Schwefelverbindungen
SO₂, SO₃, H₂SO₄, H₂S, CS₂
2. Stickstoffverbindungen
"nitrose Gase" (NO, NO₂, N₂O₃, N₂O₄, NH₃); Salpetersäure (HNO₃)
3. Kohlenmonoxid
CO
4. Halogene und Halogenverbindungen
Chlor-, Brom- sowie Fluorverbindungen (z. B. HF, SiF₄, H₂SiF₆ und ihre Salze, HCl)
5. flüchtige aliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffe und ihre Oxidationsprodukte
z. B. Aldehyde, Ketone, Säuren, Peroxide
6. verschiedenartige belastigende Stoffe mit intensiverem Geruch
z. B. Amine, Merkaptane, Buttersäure, Pyridin
7. anorganische Stäube
Verbindungen von Blei, Eisen, Mangan, Chrom, Kupfer, Nickel, Vanadium, Beryllium, Zink, Arsen, Molybdän, Selen, Silizium u. a.
8. Ruß und organische Produkte
z. B. polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe wie das krebserzeugende 3,4-Benzpyren
9. Abrieb von Teer- und Asphaltstraßen sowie von Autoreifen
10. Oxidantien
z. B. Ozon (O₃), eine allotrope Modifikation des Sauerstoffs

Tab. 1 Spurenstoffe in einer Industriegebietsatmosphäre
(nach einer Zusammenstellung aus KUTTLER 1982a)

1.1 Sauerstoffhaltige Schwefelverbindungen in der Atmosphäre

Schwefel, der anthropogenen Quellen entstammt und der Atmosphäre zugeführt wird, besteht zu 90% aus SO₂, das als primäre Luftverunreinigung bei verschiedenen Verbrennungsprozessen schwefelhaltiger Energieträger freigesetzt wird. 10% werden als SO₄, SO₃ und H₂S emittiert (BEILKE 1980). Nach einer Abschätzung von CULLIS & HIRSCHLER (1979, 1980 in VDI RDL 1983) belief sich die gesamte globale natürliche und anthropogene Schwefelemission im Jahre 1976 auf 251 Mio. t S. Davon wurden 174 Mio. t S (= 69%) auf der Nordhalbkugel, 77 Mio. t S (= 31%) auf der Südhalbkugel ausgestoßen. Bezogen auf die Gesamtmenge wurden durch anthropogene Prozesse 104 Mio. t S (= 41%) freigesetzt. Schlüsselnt man diese Werte nach den Emissionsraten der beiden Halbkugeln auf, dann stellt sich heraus, daß auf der Nordhalbkugel 94% durch menschliches Wirtschaften emittiert wurden, in den wesentlich schwächer industrialisierten Ländern der Südhalbkugel dagegen nur 6%.

Verursacher dieses Ungleichgewichts sind die auf der Nordhemisphäre liegenden Ballungszentren in Nordamerika und Europa, deren Lage sich im wesentlichen auf die mittleren Breiten beschränkt. Abgesehen von einigen wenigen Industriegebieten auf der Südhalbkugel in Südamerika, Südafrika und Australien lassen sich hier keine der Emissionsstärken der Nordhalbkugel vergleichbaren Verschmutzungszentren erkennen.

Die den beiden Atmosphärenkompartimenten zugeführten Schadstoffe werden über den Äquator hinweg nicht bzw. kaum ausgetauscht, so daß sich zwischen beiden Hemisphären hinsichtlich der Belastungsstruktur kein Gleichgewichtszustand einstellt. Ein interhemisphäarer meridionaler Luftmassenaustausch wird wegen der in Äquatornähe vorhandenen Innertropischen Konvergenz (ITCZ) mit hochreichender Tropopause aus thermischen und strömungsphysikalischen Gründen verhindert.

Diese Problematik läßt sich recht gut an der Betrachtung eines Nord-Süd-Schnittes der SO_2 - und SO_4 -Aerosol Immissionskonzentrationen über dem Atlantik nachvollziehen (Abb. 1).

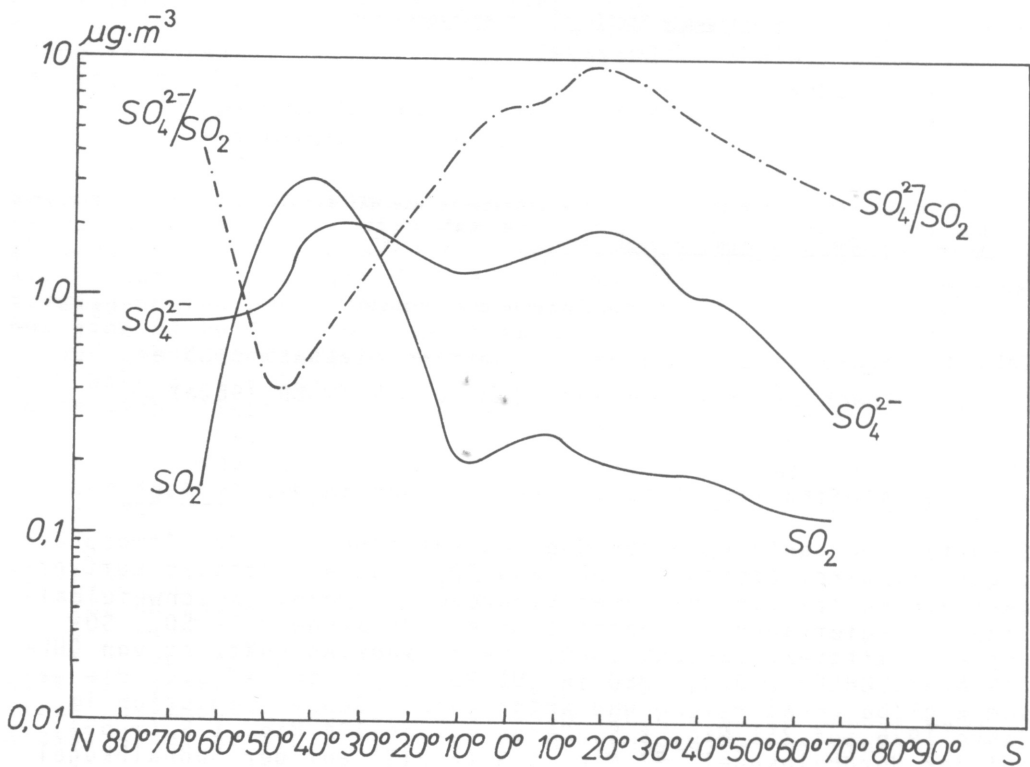


Abb. 1 SO_2 - und SO_4^{2-} -Konzentrationen in Abhängigkeit von der Breite über dem Atlantischen Ozean (nach MÉSZÁROS 1981; verändert)

Die von MÉSZÁROS (1981) angefertigte Darstellung basiert auf Messungen von GEORGII & VITZE (1971) sowie von NGUYEN BA CUONG et al. (1974). Relativ niedrige Werte der SO_2 -Immissionskonzentrationen lassen sich bei 70° n. Breite erkennen; weiter südwärts, zwischen 35° und 50° n. Br., werden entsprechend der Lage der großen Industriegebiete relativ hohe "background-Konzentrationen" gemessen mit Werten zwischen 1 und 3 $\mu\text{g SO}_2\cdot\text{m}^{-3}$. Mit Annäherung an den Äquator nehmen die Spurenstoffkonzentrationen rapide ab; in den Tropen werden im Mittel zwischen 0,2 und 0,3 $\mu\text{g SO}_2\cdot\text{m}^{-3}$ erreicht. Diese niedrigen Werte sind auch für die Südhalbkugel charakteristisch.

Diese Messungen wurden über dem Atlantik, also fernab der großen Industriegebiete, durchgeführt. Hieraus läßt sich der Schluß ziehen, daß ein verschmutztes atmosphärisches Band im Bereich der mittleren Breiten - dem Raum der Bevölkerungsmassierung und der industriellen Agglomerationszentren auf der Nordhalbkugel - vorherrscht, das durch kontinentale Quellen verursacht ist.

Die Sulfataerosolkonzentrationen weisen im Vergleich zu den SO_2 -Konzentrationen zwei Maxima auf, von denen eins mit dem SO_2 -Maximum der Mittelbreiten in Verbindung steht; das andere tritt dagegen in den niederen Breiten der Südhalbkugel auf.

Es wird vermutet, daß dieses in Äquatornähe liegende SO_4 -Maximum durch die hier wegen des höheren Sonnenstandes verstärkt ablaufenden photochemischen und thermischen Reaktionen verursacht ist. Das drückt sich auch in dem relativ großen SO_4/SO_2 -Verhältnis aus, das als Maß der "turnover-rate" von SO_2 zu SO_4 dient.

SO_2 -Emission

Mio. t

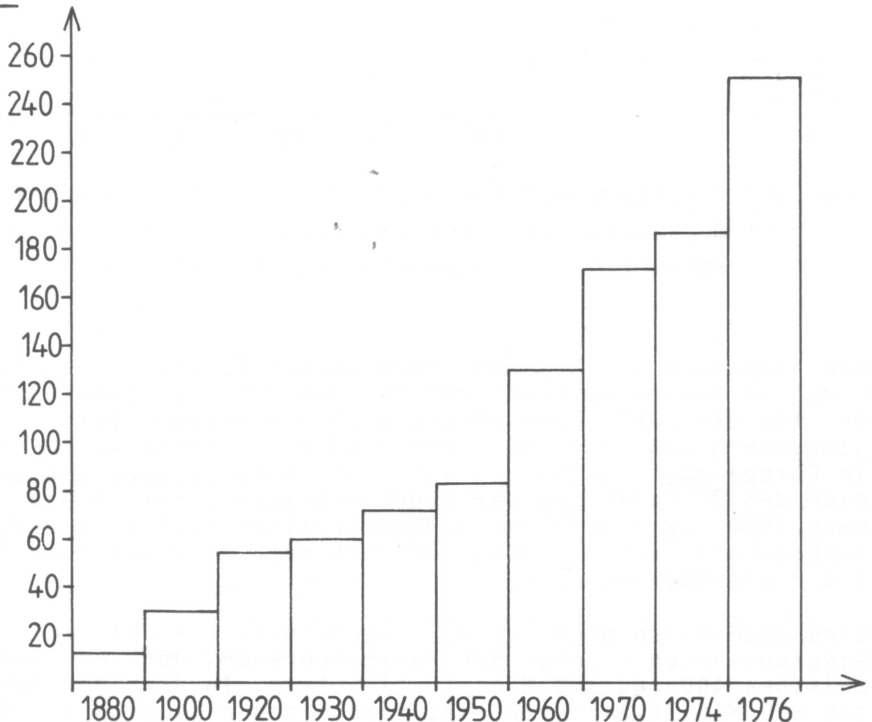


Abb. 2 Entwicklung der globalen SO_2 -Emission (nach ROBINSON & ROBBINS 1972; CULLIS & HIRSCHLER 1979/80; VDI RDL 1983)

Global gesehen war der Ausstoß an SO_2 nicht immer so hoch wie z. B. in den letzten Jahren. Aus der Entwicklung der anthropogenen SO_2 -Emissionen läßt sich erkennen (Abb. 2), daß sich die Belastung durch diesen Spurenstoff seit der Jahrhundertwende bis zum Jahre 1976 verachtfacht hat, bei einer Verdoppelungsrate von anfänglich 30, später jedoch von nur noch 20 Jahren.

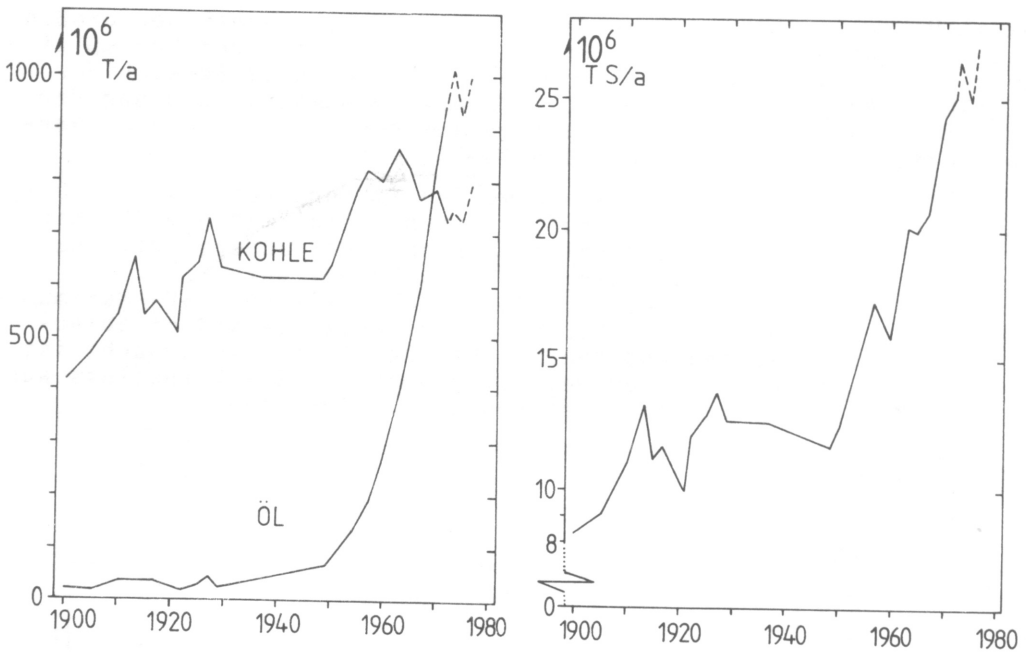


Abb. 3 Verbrauch an Kohle und Erdöl in Europa sowie geschätzte SO_2 -Emissionen für den Zeitraum 1900-1972 (nach DOVLAND & SEMB (1980), aus DRABLØS & TOLLAN 1980)

Die Koppelung des SO_2 -Ausstoßes an den Verbrauch von Kohle und Erdöl in Europa verdeutlicht für den Zeitraum 1900-1972 Abb. 3. Den für den Kohle- und Ölverbrauch angegebenen Daten wurden die gemessenen bzw. aus Emissionsfaktoren geschätzten SO_2 -Emissionen in Europa zugeordnet. Die Kurvenverläufe zeigen, daß bis kurz nach dem 2. Weltkrieg der Erdölverbrauch unter $50 \text{ Mio. t} \cdot \text{a}^{-1}$ lag; nach 1950 war jedoch ein außerordentlich steiler Anstieg im Ölverbrauch zu verzeichnen, der sich nach 1970 auf rund $1 \text{ Mrd. t} \cdot \text{a}^{-1}$ einpendelte.

Eine wesentlich niedrigere Steigerungsrate - bei jedoch höheren Ausgangswerten - zeigt der Kohleverbrauch, der von 1900 bis 1950 zwischen 400 und $700 \text{ Mio. t} \cdot \text{a}^{-1}$ betrug. In den 60er Jahren wurden $800 \text{ Mio. t} \cdot \text{a}^{-1}$ erreicht; danach pendelte sich der Kohleverbrauch wieder auf rund $700 \text{ Mio. t} \cdot \text{a}^{-1}$ ein.

Nach den dieser Darstellung zugrunde liegenden Werten stiegen die SO_2 -Emissionen in den Jahren nach 1950 von mehr als $10 \text{ Mio. t} \cdot \text{a}^{-1}$ auf etwa $29 \text{ Mio. t} \cdot \text{a}^{-1}$ an.

Diese Mittelwerte dürfen jedoch nicht darüber hinwegtäuschen, daß die SO_2 -Belastungskurven im Jahresgang einen sinuidalen Verlauf aufweisen mit maximalen Werten im Spätwinter (Januar, Februar) und minimalen Emissionsraten im Hochsommer (Juli) (nach DOVLAND&SEMB (1980) in DRABLØS&TOLLAN (1980)).

Am Beispiel des europäischen SO₂-Schadstoffausstoßes sollen die Länderemissionsraten diskutiert werden (Abb. 4). Von den 29 Mio. t, die 1978 in Europa der Atmosphäre zugeführt wurden, stammten 60% aus den Staaten des Ostblocks, 40% aus Westeuropa. Das Land, in dem die größten Schwefelmengen freigesetzt wurden, war der europäische Teil der Sowjetunion. Beinahe 28% der gesamten europäischen Schwefelemission gelangten aus diesem Gebiet in die Atmosphäre.

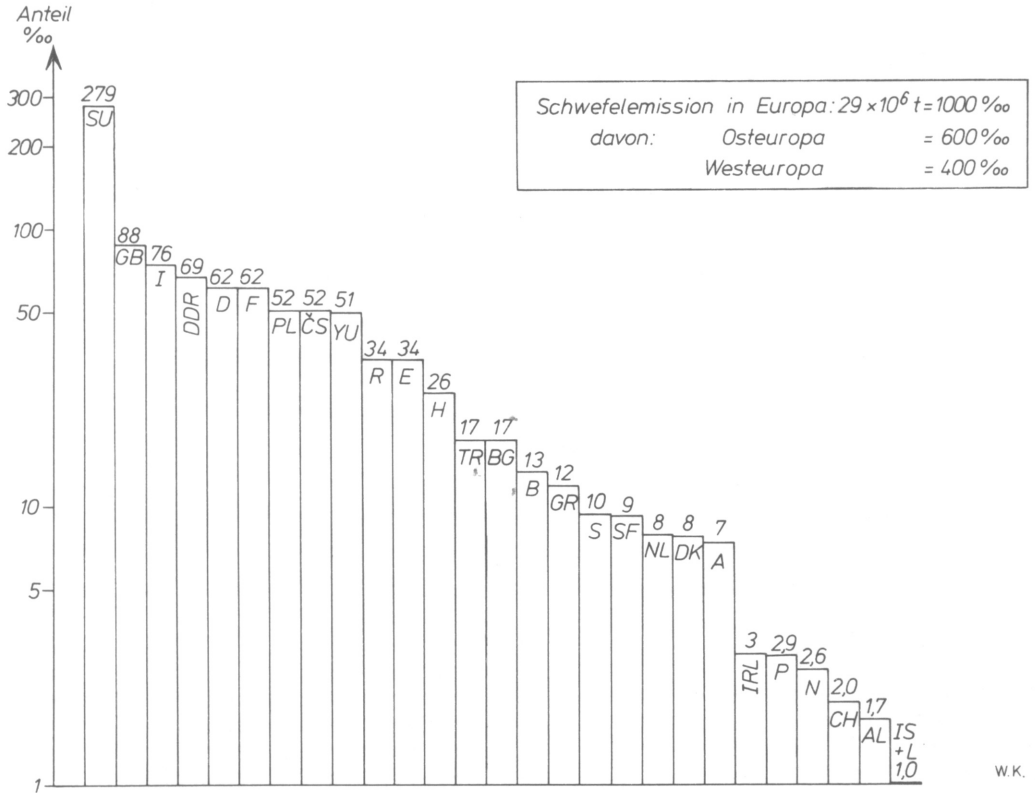


Abb. 4 Anteil der europäischen Staaten an der Schwefelemission im Jahre 1978 (berechnet und zusammengestellt nach Daten der Vereinten Nationen, aus UMWELT 1982)

Wesentlich weniger wurden z. B. in Großbritannien (8,8%), der DDR (6,9%), der Bundesrepublik Deutschland (6,2%) und Frankreich (6,2%) emittiert; Schweden, Finnland, Dänemark und Norwegen sind an der Gesamtemission nur zu 0,2% bzw. 0,1% beteiligt.

Zur Ermittlung von Spurenstoffbilanzen sind nicht nur die Spurenstoff-Emissionswerte der einzelnen Länder notwendige Voraussetzung, sondern auch deren Depositionswerte. Bilanzen dieser Art sind nicht einfach zu erstellen, weil bei ihrer Ermittlung zum Teil auch auf Schätzwerte zurückgegriffen werden muß. Einzelne Zahlenangaben können daher mit unterschiedlich hohen Unsicherheitsfaktoren behaftet sein. Dennoch wurde für einige europä-

ische Länder der Versuch gemacht, sowohl den Anteil der Schwefel-deposition, die aus dem eigenen Land stammt, als auch denjenigen des Importes zu bestimmen. Das vorläufige Ergebnis zeigt Tabelle 2.

		GESAMTSCHWEFEL- ABLAGERUNG in kt S·a ⁻¹										
		314	—	199	117	—	1.117	1.462	1.530	1.424	817	897
VERURSACHERLAND	GB	1	21	23	15	8	1	2	6	14	3	92
	DDR	10	10	5	10	7	29	25	13	3	59	1
	F	3	4	10	4	2	1	1	11	58	2	2
	D	16	10	23	15	7	6	5	50	9	19	2
	PL	4	4	1	5	6	12	46	1	1	3	0
	ČSSR	21	3	2	3	3	41	13	6	1	9	0
	S	0	11	0	4	39	0	0	0	0	0	0
	DK	0	9	0	37	17	0	1	1	0	1	0
	NL	0	2	24	2	1	0	0	3	1	1	1
	N	0	21	0	1	6	0	0	0	0	0	0
A	17	0	0	0	0	2	0	1	0	0	0	
		A	N	NL	DK	S	ČSSR	PL	D	F	DDR	GB
		EMPFÄNGERLAND										

WK

Tab. 2 Prozentualer Anteil der Schwefelemissionen europäischer Verursacherstaaten an der Gesamt-Jahresschwefelablagerung in den Empfängerstaaten (zusammengestellt nach Werten aus UMWELT 1982; verändert)

Auf der "Ordinate" sind jeweils die Verursacherländer für Schwefel, auf der "Abszisse" die entsprechenden Empfängerländer eingetragen. Greift man z. B. Großbritannien heraus (auf der "Abszisse" rechts), dann läßt sich feststellen, daß von den rund 900 kt S·a⁻¹, die in England abgelagert werden, 92% aus dem eigenen Land kommen, jeweils 2% aus Frankreich und der Bundesrepublik Deutschland und jeweils 1% aus der DDR und den Niederlanden. Großbritannien gehört somit zu dem Ländertyp, dessen innerhalb seiner Grenzen abgelagerter Schwefel fast ausschließlich dem eigenen Land entstammt.

In der Bundesrepublik Deutschland werden rund 1600 kt S·a⁻¹ deponiert. 50% entstammen eigenen Quellen, 6% kommen aus Großbritannien, 13% aus der DDR, 11% aus Frankreich, 6% aus der ČSSR, 3% aus den Niederlanden und jeweils 1% aus Polen, Dänemark und Österreich.

Das zu Großbritannien hinsichtlich der Schwefelbilanz andere Extrem ist Österreich. Während 17% der hier insgesamt abgelagerten 314 kt S·a⁻¹ aus eigenen Quellen stammen, erhält das Land insbesondere aus der ČSSR 21%, aus der Bundesrepublik Deutschland 16%, aus der DDR 10%, aus Polen 4% und aus Frankreich 3%.

Österreich ist somit ein Land, das den größten Teil des dort zur Ablagerung kommenden Schwefels importiert. Das trifft in etwas geringerem Maße auch für Norwegen zu, wo bis auf 21% Eigenbeteiligung der dort deponierte Schwefel aus anderen Ländern stammt.

Die hier angegebenen Daten der Schwefelemission beziehen sich natürlich nur im Mittel auf die gesamte Staatsfläche. Die produktivsten anthropogenen "Schwefelquellen" lassen sich in den entsprechenden Ballungsräumen ausmachen, die wiederum hinsichtlich ihrer Schadstoffquellenstruktur (Flächen-, Linien-, Punktquellen) noch weiter differenziert werden können. So verursachen Kraftwerke und Fernheizwerke 56% der SO₂-Emissionen, die Industrie 28%, Haushalte und Kleinverbraucher 13% und der Straßenverkehr 3%.

Vergleicht man einmal die Verursacher der Immissionskonzentrationen in der Nähe von Ballungsräumen mit denjenigen in entfernten Gebieten, so läßt sich im Gegensatz zur Emission folgendes feststellen: In den Agglomerationszentren und in ihrer unmittelbaren Umgebung verursacht die Industrie durchschnittlich 60% der gemessenen Immissionskonzentration; Haushalte und Kleinverbraucher 23%, die Kraftwerke 14% und der Verkehr 3% (Abb. 5).

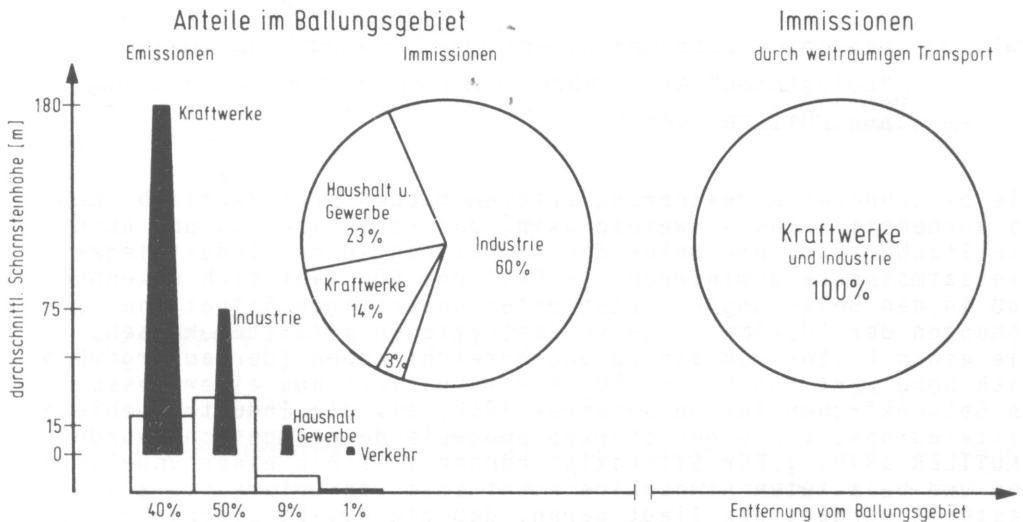


Abb. 5 Verursacher der Immissionskonzentrationen im Nah- und Fernbereich (nach UBA 1981)

Im Vergleich zur Emission ist der Anteil der Kraftwerke an der Immission im Nahbereich wesentlich geringer. Das liegt daran, daß durch die relativ hohen Schornsteine die Spurenstoffe weiträumig verteilt werden (Ferntransport). Daher sind Kraftwerksemissionen die Hauptverursacher der Immissionsbelastung im Fernbereich, wenn auch nicht zu 100% wie in Abb. 5 dargestellt, da auch in den sogenannten Reinluftgebieten kleine Emittenten mit lokalem Einzugsbereich für eine über der "background-Konzentration" liegenden Belastung sorgen, wie neuere Messungen in diesen Gebieten zeigen (KUTTLER 1983b).

Die in die Atmosphäre eingeleiteten Spurenstoffe treten nicht immer in gleich hohen Konzentrationen auf; die Immissionsbelastung ist vielmehr von der topographischen Lage, der Höhe der effektiven Quellniveaus der Schornsteine, der Lage der Meßstationen zu den Schadstoffquellen, dem Emissionsmassenstrom und den verschiedenen meteorologischen Zustandsbedingungen der Atmosphäre (KLUG 1972) abhängig.

Alle diese Faktoren sorgen dafür, daß sich im Mittel Immissionskonzentrationen an Orten einstellen, die als Grundbelastung dieses Spurenstoffs aufzufassen sind.

Anhaltspunkte über das Belastungspotential lufthygienisch "unbelasteter" und "belasteter" Gebiete gibt Tabelle 3.

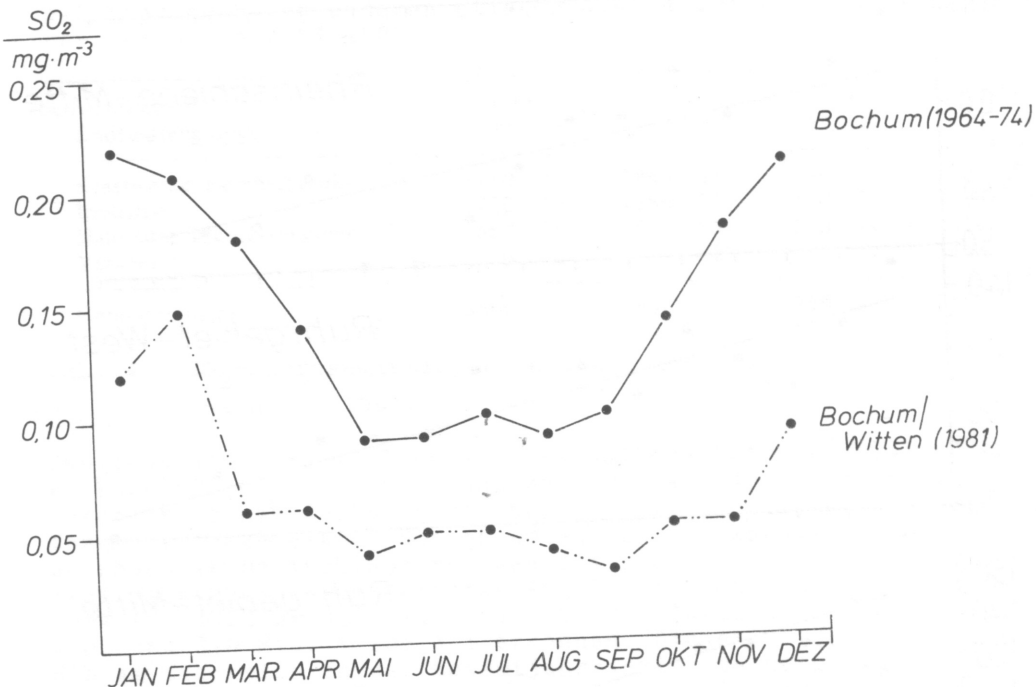
Spurenstoff	unbelastet	belastet	Verhältnis belastet/unbelastet
Staub	0,01 - 0,02 mg/m ³	0,07 - 0,7 mg/m ³	7 - 35
Schwefeldioxid	0,001 - 0,01 mg/m ³	0,05 - 5,2 mg/m ³	50 - 520
Kohlendioxid	310 - 330 ppm	350 - 700 ppm	1,1 - 2,1
Kohlenoxid	1 ppm	5 - 200 ppm	5 - 200
Stickoxide	0,001 - 0,01 ppm	0,01 - 0,1 ppm	10
Kohlenwasserstoffe (gesamt)	1 ppm	2 - 20 ppm	2 - 20

Tab. 3 Vergleich zwischen einer "unbelasteten" und einer "belasteten" Atmosphäre (nach einer Zusammenstellung aus KUTTLER 1982a)

Die berechneten Anreicherungsfaktoren machen sehr deutlich, daß es vornehmlich das Schwefeldioxid, das Kohlenmonoxid und auch die Stäube sind, die unter den Immissionen in der Industriegebietsatmosphäre dominieren. Im Fall des SO₂ läßt sich erkennen, daß in den Belastungsgebieten unter ungünstigen Situationen Erhöhungen der SO₂-Immissionskonzentrationen auftreten können, die einen Faktor von bis zu 520 erreicht haben (der außergewöhnlich hohe Wert von 5,2 mg SO₂·m⁻³ resultiert aus einer Messung in Gelsenkirchen Anfang Dezember 1962, als die Industriegebiete Mitteleuropas von einer starken Smogepisode heimgesucht wurden (KUTTLER 1979a)). Für Stickoxide können zwischen einer unbelasteten und belasteten Atmosphäre nicht so große Unterschiede festgestellt werden; das liegt daran, daß die NO_x-Emissionen nicht nur auf Ballungsgebiete beschränkt sind, sondern wegen des hohen Anteils des Straßenverkehrs an dieser Luftverunreinigung (= Linienquellen) auch in die sog. Reinluftgebiete gebracht werden (KUTTLER 1983 a).

In den letzten Jahren ereignete es sich allerdings außerordentlich selten, daß relativ hohe Immissionskonzentrationen der verschiedenen Spurenstoffe in den Belastungsgebieten auftraten (im Januar 1982 wurden in einigen Ballungsräumen der Bundesrepublik Deutschland hohe SO₂-Konzentrationen unter dem Einfluß austausch- armer Witterung gemessen, so z. B. im Rhein-Ruhr-Raum (KÜLSKE 1982) und im Stuttgarter Raum (BAUMÖLLER et al. 1982).

Prinzipiell weisen die SO_2 -Immissionskonzentrationen einen in den Ballungsgebieten verstärkt zu beobachtenden Jahresgang auf mit höheren Werten im Winterhalbjahr und niedrigeren Werten im Sommerhalbjahr. Abb. 6 enthält Monatsmittelwerte (berechnet aus Halbstundenmittelwerten) für eine Stadtstation. Die Darstellung zeigt sowohl über 10 Jahre gemittelte Monatswerte der Spurenstoffkonzentrationen als auch die Monatswerte eines einzelnen Jahres. Es treten ausgeprägte höhere winterliche Belastungen im Mittel von $\bar{x}_{Winter} = 210 \mu g SO_2 \cdot m^{-3}$ (1964 - 1974) und niedrigere Werte in den Sommermonaten ($\bar{x}_{Sommer} = 110 \mu g SO_2 \cdot m^{-3}$) auf.

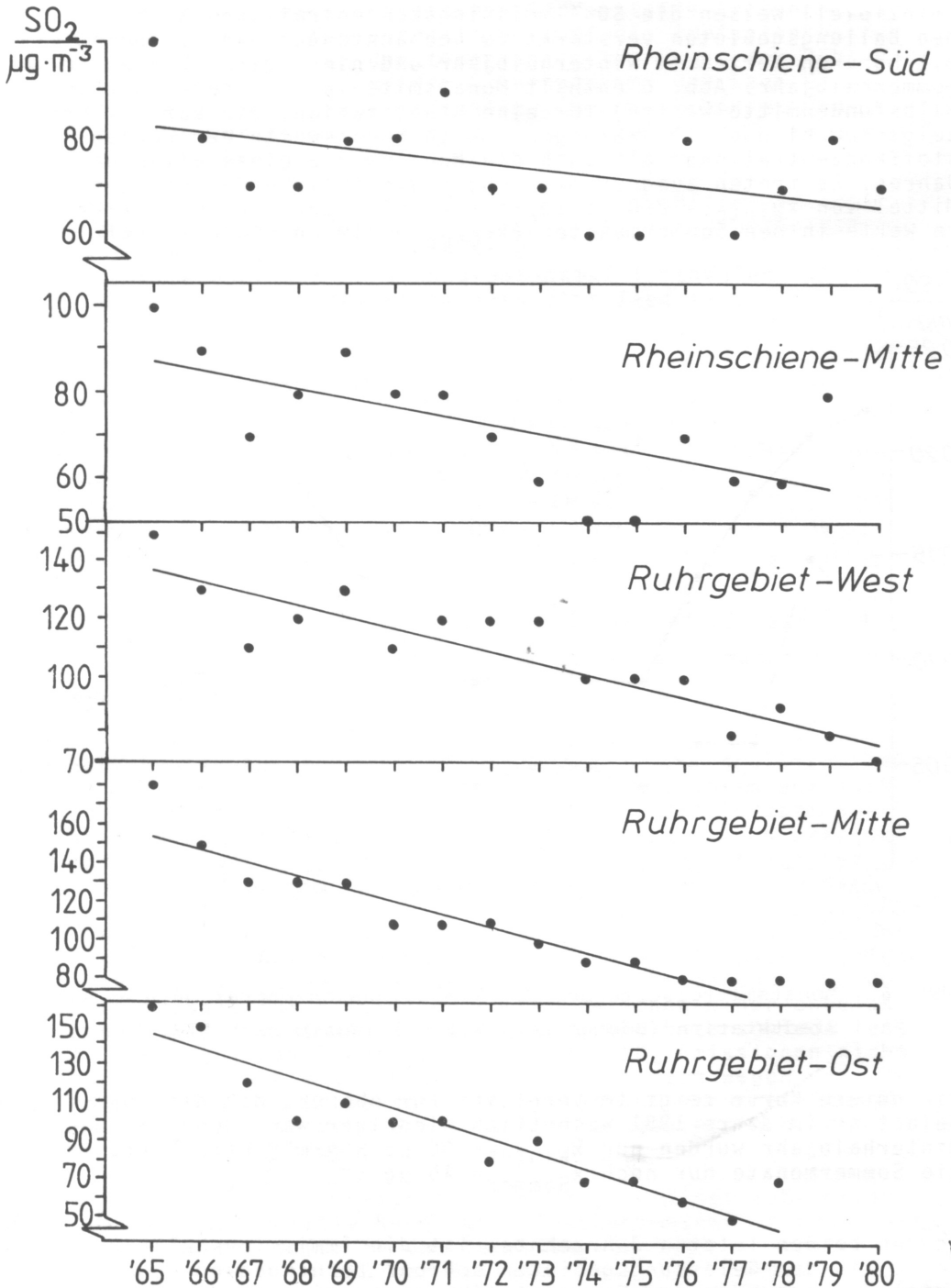


W.K. 4/83

Abb. 6 Monatsmittelwerte der SO_2 -Immissionskonzentrationen an einer Stadtstation (Bochum bzw. Witten) (Werte nach LIS, Essen)

Die untere Kurve zeigt im Vergleich zur oberen, daß die SO_2 -Belastung im Jahre 1981 wesentlich niedriger war, denn für das Winterhalbjahr wurden nur $\bar{x}_{Winter} = 86 \mu g SO_2 \cdot m^{-3}$ berechnet, für die Sommermonate nur noch $\bar{x}_{Sommer} = 45 \mu g SO_2 \cdot m^{-3}$.

In den beiden letzten Jahrzehnten ist die Immissionsbelastung an SO_2 in den Belastungsgebieten spürbar zurückgegangen. Abb. 7 zeigt Trendgeraden der Spurenstoffkonzentrationen, die diesen Rückgang für die Industrielandschaft bestätigen; Abnahmeraten auf 40-50% der Ausgangskonzentrationen nach 13 bis 15 Jahren sind die Regel.



W.K.

Abb. 7 Trends der SO₂-Immissionskonzentrationen in den Belastungsgebieten des Rhein-Ruhr-Raumes (Werte nach BUCK et al. 1982, aus KUTTLER 1983a)

Spiegelt diese an Meßstationen im Rhein-Ruhr-Raum zu verfolgende erfreuliche Entwicklung auch die Gesamtsituation der lufthygienischen Verhältnisse - z. B. auch in sogenannten Reinluftgebieten - wider? D. h. gelten diese Trends auch außerhalb der Belastungsgebiete?

Diese Frage läßt sich in zweifacher Hinsicht mit Nein beantworten.

Erstens weisen Trendgeraden der SO_2 -Belastung in sogenannten Reinluftgebieten keine der an den Industriestationen beobachteten Abnahmen der SO_2 -Belastung auf. Im Gegenteil, die Konzentrationen sind an einigen Reinluftstationen nach wie vor gleichbleibend hoch, an anderen stiegen sie in den letzten Jahren sogar leicht an (UBA 1982).

Schwefeldioxid Emittentengruppe	1966		1970		1974		1978	
	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%
Kraftwerke, Fernheizwerke	1460	42	1840	47	1940	51,5	2000	56
Industrie	1410	40	1380	35	1190	32	990	28
Haushalte, Kleinverbraucher	560	16	630	16	520	14	450	13
Verkehr	70	2	85	2	95	2,5	100	3
Gesamtemission	3500		3950		3750		3550	

Tab. 4 SO_2 -Jahresemissionen in der Bundesrepublik Deutschland
(nach UBA 1981)

Zweitens läßt das in Tabelle 4 enthaltene Datenmaterial keinen Rückschluß auf eine Minderung der SO_2 -Jahresemissionen zu, wodurch man einen Rückgang der SO_2 -Belastung erklären könnte. Vergleicht man einmal den gesamten SO_2 -Jahresausstoß in der Bundesrepublik Deutschland für den Zeitraum 1966 bis 1978, dann läßt sich nach einem leichten Anstieg in den Jahren 1970 und 1974 für 1978 wieder ein Erreichen des Ausgangsniveaus (1966) von rund 3,6 Mio. t $\text{SO}_2 \cdot \text{a}^{-1}$ erkennen. Diejenige Quellengruppe, die am stärksten an der Gesamtjahresemission beteiligt ist, sind die Kraftwerke und Fernheizwerke. Ihr Anteil steigerte sich in den 12 Jahren von 40,9% auf 55,9%. Der Anteil der Industrie ist dagegen von 39,4% auf 27,9% abgesunken; ebenfalls reduziert hat sich der Anteil der Haushalte und des Kleinverbrauchs an der SO_2 -Emission; leicht angestiegen ist dagegen der des Verkehrs.

Wenn trotz beinahe unveränderter SO_2 -Emission von etwa 3,6 Mio. t $\cdot \text{a}^{-1}$ die Meßstationen aus den Industriegebieten signifikant sinkende SO_2 -Immissionskonzentrationen melden, und das über einen Zeitraum von 15 Jahren, in den Reinluftgebieten dieser Trend jedoch nicht festzustellen ist - dort im Gegenteil einige Stationen ansteigende SO_2 -Immissionskonzentrationen verzeichnen -, dann muß sich etwas am Verteilungsmechanismus dieses Spurenstoffs geändert haben. Die Gründe für eine in den letzten Jahren abnehmende SO_2 -Luftbelastung in den Industriegebieten sind demnach zu suchen in einem verstärkten Ausbau des Gas- und Fernwärmenetzes und auch im Bau höherer Schornsteine, die die Immissionsbelastung im Nahbereich senken helfen, dafür aber durch Einleitung der Schadstoffe in etwas höhere Schichten der unteren Troposphäre über den Ferntransport auch entlegene Gebiete mit ihren Emissionen erreichen (zur Meteorologie des Ferntransportes siehe PACK et al. 1978; OTTAR 1978; SMITH&HUNT 1978).

1.2 Stickoxide in der Atmosphäre

Die zweite große Gruppe an Spurenstoffen in der Atmosphäre, die für die Entstehung von sauren Depositionen eine zunehmend wichtiger werdende Rolle spielt, sind die Stickstoffverbindungen. Unter ihnen spielen die Stickoxide (NO_x ; $x=1, 2$) eine überragende Rolle, so z. B. bei der Entstehung von photochemischen Smog (O_3 -Smog, KUTTLER 1979b). Stärkere Beachtung finden sie darüber hinaus in letzter Zeit im Zusammenhang mit der Diskussion um aufgetretene Baumschäden (PRINZ et al. 1982). Stickoxide entstehen bei Verbrennungsprozessen aller Art; auf natürlichem Wege durch verschiedene biologische Umsetzungen. Nach den Untersuchungen von JANSSEN-SCHMIDT et al. (o.J.) und BÜTTGER et al. (1978) werden in etwa gleichgroße Anteile auf natürlichem und anthropogenem Wege emittiert. Einen globalen Überblick über die Quellstärke beider Emissionsraten vermittelt Tabelle 5, in der für jeweils 5° Breitenintervalle die Werte mit den entsprechenden Amplituden enthalten sind.

Breite	Emissionsrate ($10^6 \text{ t} \cdot \text{N} \cdot \text{a}^{-1}$)			anthropogene Emission % von gesamt
	anthropogen	natürlich	gesamt	
90 - 85 N		< 0.1	< 0.1	
85 - 80		< 0.1	< 0.1	
80 - 75		< 0.1	< 0.1	
75 - 70		0.2±0.1	0.2±0.1	
70 - 65		0.2±0.1	0.2±0.1	
65 - 60	0.1±0.1	0.5±0.2	0.6±0.2	17±18
60 - 55	1.0±0.4	0.6±0.2	1.6±0.4	63±29
55 - 50	3.2±1.2	0.6±0.3	3.8±1.2	84±41
50 - 45	3.2±1.2	0.5±0.2	3.8±1.2	84±41
45 - 40	2.4±0.8	0.5±0.3	2.9±0.8	83±36
40 - 35	2.2±0.8	0.6±0.3	2.8±0.8	79±36
35 - 30	1.7±0.6	0.6±0.3	2.3±0.7	74±34
30 - 25	0.4±0.2	0.7±0.4	1.1±0.4	36±22
25 - 20	0.3±0.1	0.7±0.4	1.0±0.4	30±16
20 - 15	0.7±0.3	0.9±0.4	1.6±0.5	44±23
15 - 10	0.6±0.3	1.0±0.5	1.6±0.6	38±23
10 - 5	0.6±0.3	1.3±0.5	1.9±0.6	32±19
5 - 0	0.3±0.2	1.2±0.4	1.5±0.4	20±14
0 - 5 S	0.4±0.2	1.2±0.5	1.6±0.5	25±15
5 - 10	0.5±0.3	1.3±0.5	1.8±0.6	28±19
10 - 15	0.5±0.2	1.2±0.5	1.7±0.5	29±15
15 - 20	0.4±0.2	0.8±0.4	1.2±0.4	33±20
20 - 25	0.2±0.1	0.7±0.4	0.9±0.4	22±15
25 - 30	0.3±0.1	0.7±0.4	1.0±0.4	33±16
30 - 35	0.1±0.05	0.5±0.3	0.6±0.3	17±12
35 - 40	0.1±0.05	0.4±0.3	0.5±0.3	20±16
40 - 45	< 0.1	0.4±0.2	0.5±0.2	< 33
45 - 50	< 0.1	0.3±0.1	0.4±0.1	< 33
50 - 55		0.2±0.1	0.2±0.1	
55 - 60		0.2±0.05	0.2±0.05	
		0.1±0.05	0.1±0.05	
60 - 65		< 0.1	< 0.1	
65 - 70				
70 - 75				
75 - 80				
80 - 85				
85 - 90				

Tab. 5 Geschätzte NO_x -Emissionsraten natürlicher und anthropogener Quellen (1977) als Funktion der Breite (JANSSEN-SCHMIDT et al. o.J.)

Der größte Anteil anthropogener NO_x -Emissionen liegt in den mittleren Breiten der Nordhalbkugel und erreicht dort bis zu 84% an der Gesamtemission, vergleichbar der Verteilung der weiter vorn skizzierten SO_2 -Belastung. Zum Äquator nehmen sowohl die Absolutmengen als auch die prozentualen Anteile der anthropogenen Emissionen ab. Im Bereich zwischen 30° Nord und 30° Süd tritt eine annähernde Gleichverteilung zwischen beiden Halbkugeln auf, die jedoch in dem Breitenabschnitt 30° Süd bis 60° Süd im Vergleich zum entsprechenden Gebiet auf der Nordhemisphäre nicht zu beobachten ist.

Auf der Südhalbkugel wird in diesem Bereich nur ein Achtel der Emissionsrate erreicht, die in den hochindustrialisierten Ländern der nördlichen mittleren Breiten auftritt. Da die hier angegebenen Emissionsraten über alle Längengrade gemittelt sind, kann der Ausstoß anthropogener Stickoxide in Industrieländern im Vergleich zu den natürlich auftretenden Emissionen und zu emissionschwachen Ländern noch wesentlich höher sein. Für die Bundesrepublik Deutschland läßt sich z. B. der Anteil natürlicher NO_x -Emissionen an der Gesamtemission vernachlässigen, da er bei unter 5% liegt (UBA 1983).

Teilt man die anthropogenen NO_x -Emissionen nach Quellgruppen auf (Abb. 8), so wird deutlich, daß der größte Teil dieser Spurenstoffe (45%) durch den Verkehr (im wesentlichen durch den Kfz-Verkehr) verursacht wird; 31% entstammen den Kraftwerken, 19% den Industriefeuerungen und 5% den Haushalten und Kleinverbrauchern.

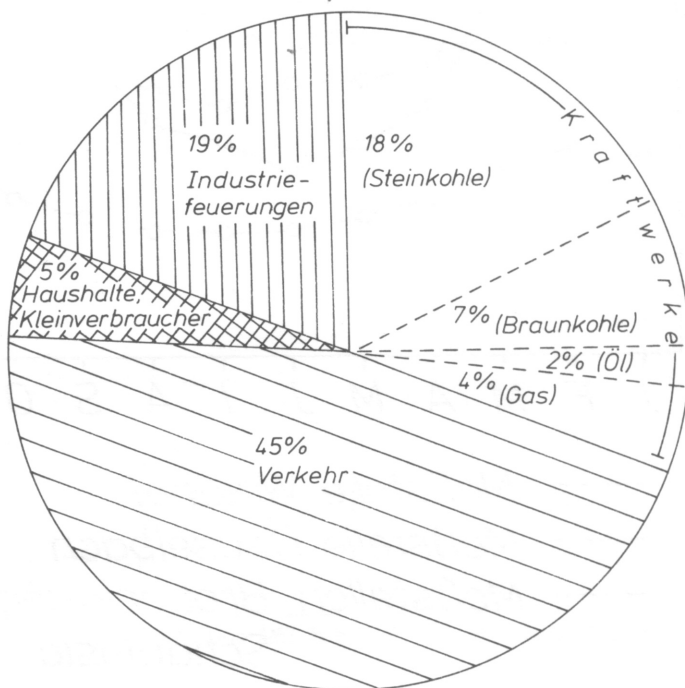


Abb. 8 NO_x -Emissionen nach verschiedenen Quellgruppen in der Bundesrepublik Deutschland im Jahre 1978 (nach UBA 1981, aus VDI RDL 1983; verändert)

Ein Blick auf die Monatsmittelwerte der NO_x -Immissionskonzentrationen läßt, dem Jahresgang für Schwefeldioxid vergleichbar, einen saisonalen Verlauf erkennen (Abb. 9). Die berechneten Monatsmittelwerte repräsentieren die Ergebnisse von vier Reinluftgebietsmeßstellen des UBA der Periode 1968 - 1978.

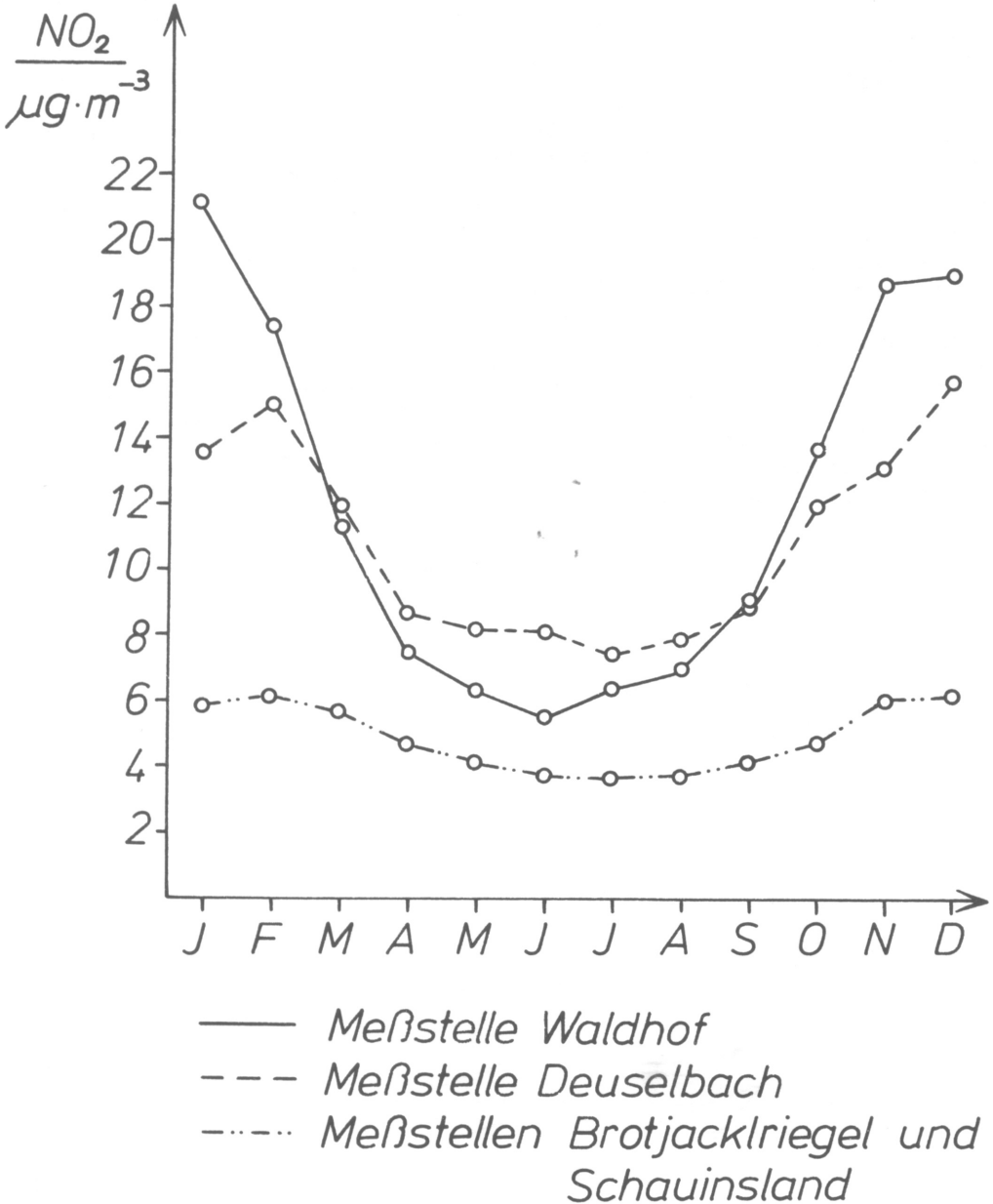


Abb. 9 Jahresgang der NO_2 -Konzentrationen aus vieljährigen Mittelwerten für vier verschiedene Reinluftgebiete in der Bundesrepublik Deutschland (nach UBA o.J.)

Prinzipielle Unterschiede im Vergleich zwischen den drei Konzentrationsverläufen der vier Meßstellen sind nicht zu beobachten. Graduelle Unterschiede weisen jedoch die Konzentrationshöhen auf. Den ausgeprägtesten Jahresgang besitzt die Meßstation Waldhof (73 m ü. NN, Lüneburger Heide, Nähe DDR-Grenze), deren NO_x -Konzentrationen (gemessen als NO_2) im Winter zwischen 18 und $22 \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{m}^{-3}$ erreichten, im Sommer dagegen in der Spanne von 6 bis $8 \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{m}^{-3}$ lagen.

Die niedrigsten Differenzen zwischen Sommer- und Winterwerten wiesen die hochgelegenen Meßstellen Brotjacklriegel (1016 m ü. NN, Bayerischer Wald) und Schauinsland (1205 m ü. NN, Schwarzwald) auf.

Im Jahresverlauf schwankten hier die NO_2 -Immissionskonzentrationen zwischen 4 und $7 \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{m}^{-3}$. Im Vergleich zu diesen Werten waren die NO_x -Konzentrationen in belasteten Gebieten (z. B. Frankfurt/M. zwischen 40 und $70 \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{m}^{-3}$) um den Faktor 3,5 bzw. 6,8 (bei Vergleich mit der Station Waldhof) bzw. um den Faktor 11,5 bzw. 10 (bei Vergleich mit den Stationen Brotjacklriegel bzw. Schauinsland) höher.

Trendberechnungen für den gesamten Meßzeitraum (1968 - 1978) lassen leichte bis stärkere Anstiege der NO_2 -Immissionskonzentrationen erkennen. Ausnahmen hiervon sind die Meßwerte der Station Westerland/Sylt, wo keine eindeutige Veränderung stattfand, und die Station Deuselbach (480 m ü. NN, Hunsrück), an der insbesondere die "Spitzenpegel" angestiegen sind (UBA 1982). So erhöhte sich hier z. B. der 98%-Wert der Summenhäufigkeit, der 1968 bei etwa $20 \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{m}^{-3}$ lag, bis zum Jahre 1981 auf knapp $50 \mu\text{g NO}_2 \cdot \text{m}^{-3}$.

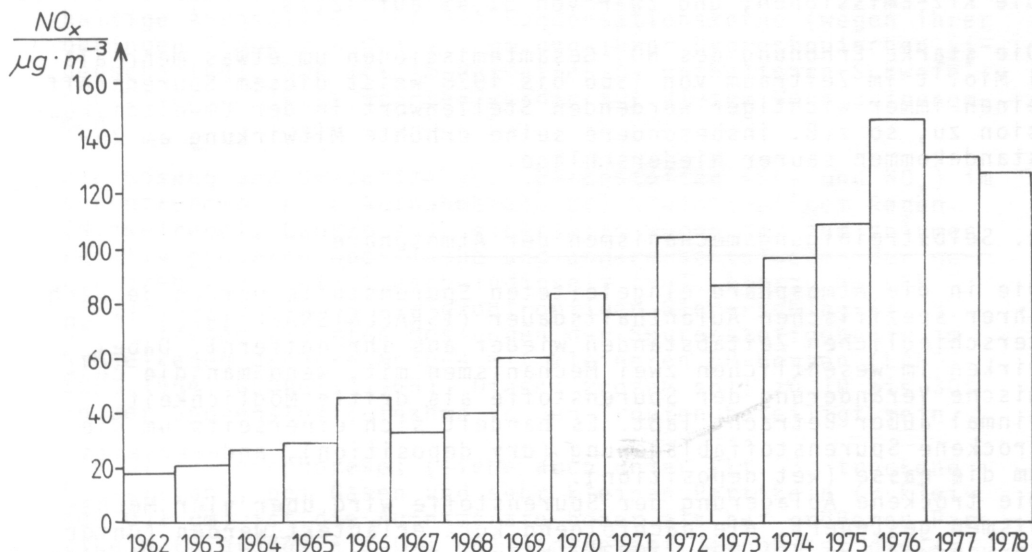


Abb. 10 Jahresmittelwerte der NO_x -Konzentrationen an einer Stadtstation (Frankfurt/M.) (NO_x angegeben als NO_2) (nach UBA o.J.)

Hohe Steigerungsraten konnten auch an der Meßstelle im Belastungsgebiet Frankfurt/M. nachgewiesen werden. Wie Abb. 10 zeigt, ver-siebenfachte sich die Spurenstoffbelastung im Meßzeitraum 1962 bis 1978. Dieses Verhalten ist antagonistisch zum weiter oben beschriebenen Trend der SO₂-Immissionskonzentrationen in Industriegebieten.

Während die Schwefeldioxid-Emissionen seit 1966 in etwa konstant blieben, spiegeln die in Tab. 6 enthaltenen NO_x-Jahresemissionen einen deutlich ansteigenden Trend wider. Sie erhöhten sich von 1,978 Mio. t (1966) auf 3,094 Mio. t im Jahre 1978.

Stickoxide (als NO ₂) Emittentengruppe	1966		1970		1974		1978	
	kt	%	kt	%	kt	%	kt	%
Kraftwerke, Fernheizwerke	650	32	820	33	920	34	940	31
Industrie	660	32	690	29	660	24	580	19
Haushalte, Kleinverbraucher	100	5	130	5	140	5	140	5
Verkehr	640	31	820	33	990	37	1340	45
Gesamtemission	2050		2450		2700		3000	

Tab. 6 NO_x-Jahresemissionen in der Bundesrepublik Deutschland
(nach UBA 1981)

Während dieses Zeitraumes entwickelte sich der Emissionsanteil der Kraftwerke/Fernheizwerke von 32,9% auf 35,6%. Die Industrieemissionen sanken von 29,7% auf 16,5%, die der Haushalte und des Kleingewerbes von 6,0% auf 5,2%. Stark gestiegen sind dagegen die Kfz-Emissionen, und zwar von 31,4% auf 42,7%.

Die starke Erhöhung des NO_x-Gesamtemissionen um etwas mehr als 1 Mio. t im Zeitraum von 1966 bis 1978 weist diesem Spurenstoff einen immer wichtiger werdenden Stellenwert in der Umweltdiskussion zu, so z.B. insbesondere seine erhöhte Mitwirkung am Zustandekommen saurer Niederschläge.

2. Selbstreinigungsmechanismen der Atmosphäre

Die in die Atmosphäre eingeleiteten Spurenstoffe werden je nach ihrer spezifischen Aufenthaltsdauer (ISRAEL&ISRAEL 1973) in unterschiedlichen Zeitabständen wieder aus ihr entfernt. Dabei wirken im wesentlichen zwei Mechanismen mit, wenn man die chemische Veränderung der Spurenstoffe als dritte Möglichkeit einmal außer Betracht läßt. Es handelt sich einerseits um die trockene Spurenstoffablagerung (dry deposition), andererseits um die nasse (wet deposition).

Die trockene Ablagerung der Spurenstoffe wird über vier Mechanismen gesteuert, die nachfolgend kurz erläutert werden (unter Verwendung von VDI RDL, 1983); hierzu zählen: die Sedimentation (1), die Impaktion (2), die Diffusio- und Thermophorese (3) und die turbulente und molekulare Diffusion (4).

zu 1) In der Luft enthaltene Spurenstoffe lagern sich durch die Schwerkraft auf der Erdoberfläche ab, sofern ihr Radius r größer als 5 μm ist.

- zu 2) Trägheitsbedingte Ablagerung eines von der Luft getragenen Teilchens an einem Hindernis, das sich der Luftbewegung entgegenstellt.
- zu 3) Ablagerung von Partikeln aufgrund eines vorhandenen Wasserdampfgefälles in der Atmosphäre (verdunstende Oberfläche - kondensierende Oberfläche) bzw. bei der Thermophorese aufgrund von Temperaturgradienten in der Luft, die die Bewegung der Teilchen steuern und sie später ablagern lassen.
- zu 4) Bewegung und letztlich Ablagerung (Ad- und Absorption) von Gasen und Aerosolen durch die Brown'sche Molekularbewegung, durch konvektive oder turbulente Strömung.

Bei der nassen Ablagerung - der Deposition mit Hilfe von Regen- oder Schneeniederschlägen - unterscheidet man danach, wo die Spurenstoffe (Gase oder Partikeln) in den Wolken- oder Niederschlagstropfen aufgenommen wurden.

Findet die Aufnahme unterhalb der Wolke - also zwischen Wolkenbasis und Erdoberfläche - durch den fallenden Regentropfen statt, spricht man von "Auswaschen" oder "washout" bzw. "below cloud scavenging". Gelangt dagegen der Spurenstoff innerhalb der Wolke in das Wolkenröpfchen, handelt es sich um das "Ausregnen" oder den "rain-out" bzw. "in cloud scavenging".

FWLER (1980, zusammengestellt in VDI RDL, 1983) nennt fünf Mechanismen, die für eine Inkorporation gas- und partikelförmiger Spurenstoffe in die Wolkenröpfchen resp. Regentropfen sorgen. Hierzu zählen:

- 1) die Bildung von Wolkenröpfchen; schwefel- und stickstoffhaltige Aerosole dienen als Kondensationskerne (wegen ihrer geringen Größe $r = 0,1 - 1 \mu\text{m}$ und ihrer hygroskopischen Eigenschaften), 80% der im Regentropfen enthaltenen Schwefel- und Stickstoffverbindungen werden auf diesem Wege aufgenommen.
- 2) die Lösung und Oxidation von Spurenstoffen (SO_2 und NO_x) im Regentropfen; hohe Aufnahmerate bei kleintropfigem Regen (Nieselregen, Landregen), einerseits wegen der zum Volumen relativ größeren Oberfläche und andererseits wegen der geringeren Tropfenfallgeschwindigkeit (vgl. hierzu MÖLLER 1973); im Vergleich zum großtropfigen Niederschlag (z. B. Schauerregen) zeigten Messungen der Spurenstoffgehalte im Nieselregen größere Mengen mit kleineren pH-Werten (LANDSBERG 1954, GEORGII 1965). Dieser Prozeß soll zu 10 bis 30% an der Spurenstoffaufnahme in den Tropfen beteiligt sein.
- 3) die Diffusionsphorese; (siehe auch unter Pkt. 3, trockene Deposition); bei Gasen und sehr kleinen Partikeln (r kleiner $0,1 \mu\text{m}$) ist die Aufnahmerate höher als bei größeren Partikeln (r größer als $0,1 \mu\text{m}$); insgesamt jedoch ist dieser Vorgang nur zu etwa 3% an der Spurenstoffaufnahme beteiligt.
- 4) Brown'sche Bewegung; Aufnahme bzw. Anlagerung kleiner Partikeln (r kleiner $0,1 \mu\text{m}$) in bzw. an Molekülen des suspendierenden Gasgemisches durch zufallsbedingte Kollision; Vorgang nur zu etwa 1% an der Spurenstoffaufnahme beteiligt.

5) die Impaktion; (siehe auch unter Pkt. 2, trockene Deposition); Aufnahme von Spurenstoffen durch fallende Wolken- und Regentropfen; Aufnahme rate ist abhängig von der Größe der fallenden Tropfen und von der Niederschlagsintensität; bei geringen Regenmengen (N kleiner als 2 mm) trägt dieser Prozeß zu etwa 30% der Schwefel- und Stickstoffaufnahme bei.

Abb. 11 zeigt anhand eines Schemas die einzelnen Faktoren, die die nasse Ablagerung von Spurenstoffen beeinflussen bzw. steuern.

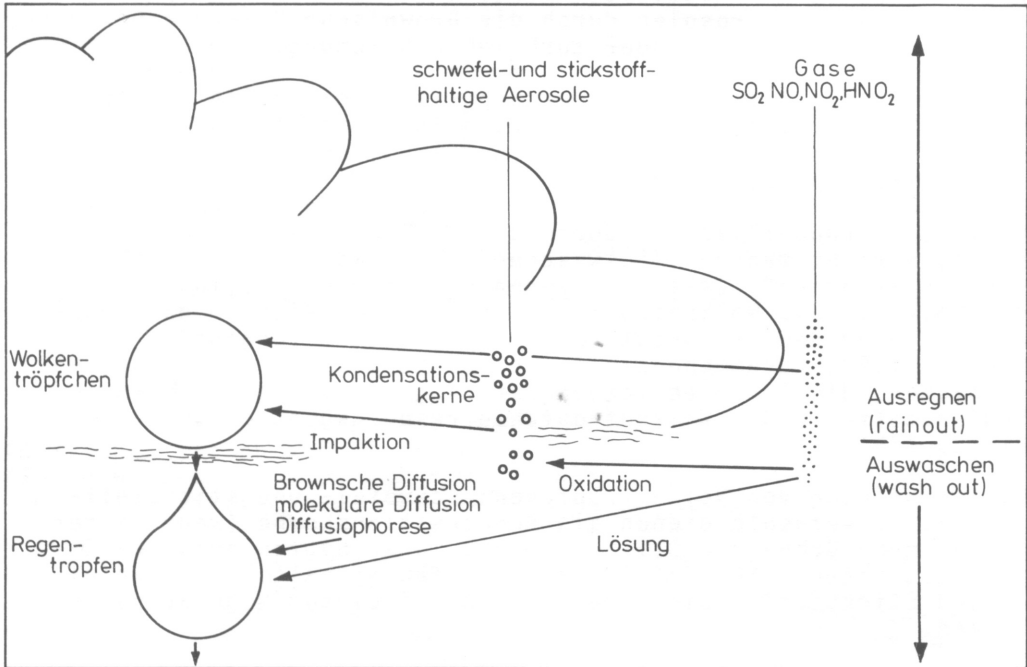


Abb. 11 Vorgänge der nassen Deposition (nach FOWLER 1980, aus VDI RDL 1983)

Auf welche Weise und mit welchen Mitteln kann man die vorgenannten trockenen und nassen Spurenstoffablagerungen nun meßtechnisch erfassen? Ist man nicht an einer getrennten Bestimmung der trocken und naß abgelagerten Spurenstoffe interessiert, so werden die Regenwasserinhaltsstoffe zusammen mit den in den Trockenphasen sedimentierten Partikeln durch ein über einen bestimmten Zeitraum aufgestelltes permanent offenes Auffanggefäß ("bulk-sampler") bestimmt.

Ist man jedoch an einer getrennten Bestimmung der trockenen und nassen Deposition interessiert, ist es notwendig, die Auffanggefäße nur während des entsprechenden Zeitraumes (niederschlagsfreie Zeit - Niederschlagszeit) für die Probenahme zu öffnen.

Hierfür lassen sich verschiedene Gerätetypen verwenden, von denen einer, der für die Meßstation in Bochum gebaut wurde, in Abb. 12 schematisch dargestellt wurde.

Dieses Gerät wurde vom Labor des Geographischen Institutes gebaut und besteht im wesentlichen aus zwei Sammelgefäßen: dem für die trockenen Ablagerungen (rechts) und dem für die nassen Ablagerungen (links). Für beide Geräte steht nur ein Deckel zur Verfügung, der über einen Niederschlagssensor einen Elektromotor in Gang setzt und jeweils nur ein Gefäß abdeckt.

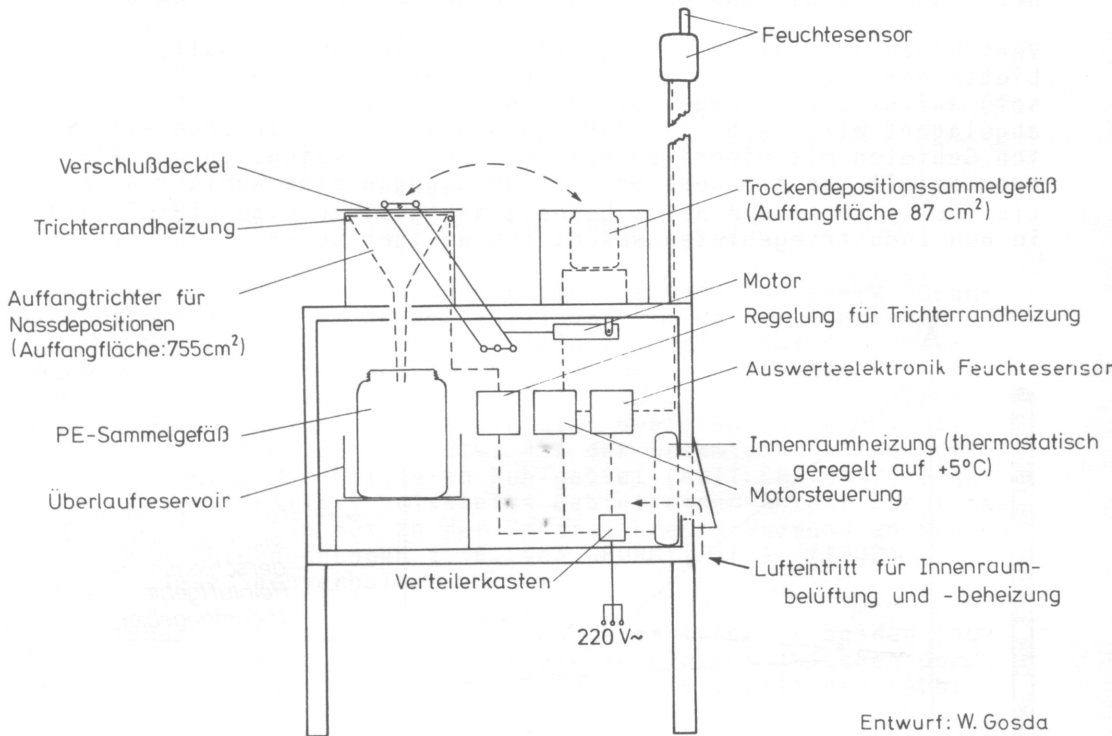


Abb. 12 Trocken-/Naßdepositionssammler für Luftschadstoffe (Frontansicht)

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

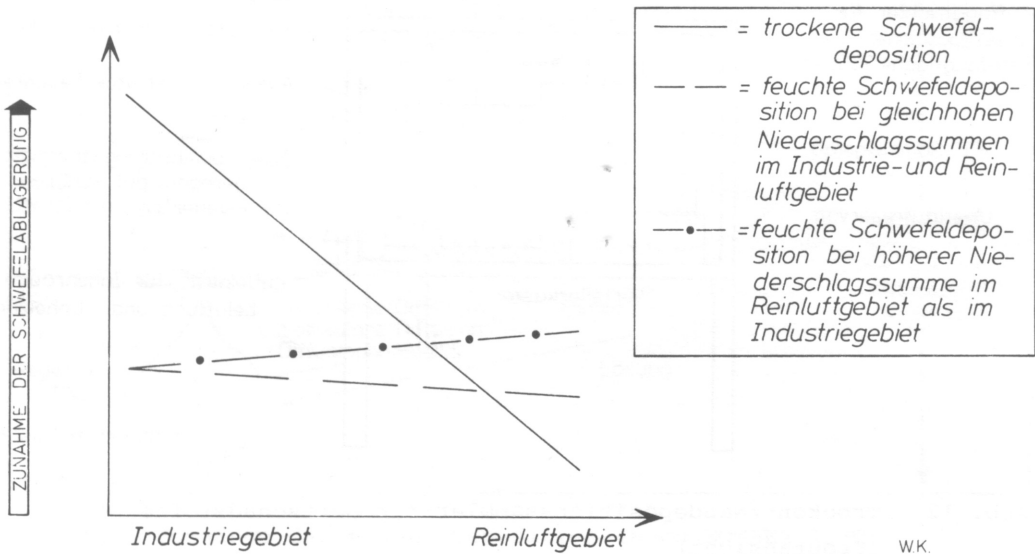
Hört es auf zu regnen, d. h. wird der Sensor von keinem Regentropfen mehr getroffen, hebt sich der Deckel vom Trockengefäß ab und schließt das Naßgefäß, so daß in der regenfreien Zeit die trockenen Depositionen aufgefangen werden können. Eine Unterteilung der trockenen und nassen Spurenstoffablagerungen in analytischer Hinsicht ist hierdurch ermöglicht.

Mit Hilfe dieser Untersuchungen lassen sich die geökologisch wichtigen Fragen beantworten, welche der beiden Senken die größere Effektivität hinsichtlich der regionalgesteuerten Ablagerungsraten besitzt.

3. Effektivität der trockenen und nassen Spurenstoffablagerung

Die trockenen und nassen Spurenstoffsinken sollen nachfolgend darauf untersucht werden, welche von ihnen der effektivere Mechanismus bei der Rückführung von Spurenstoffen aus der Atmosphäre ist. Hierzu werden Ergebnisse erörtert, die für den mittlerweile gut untersuchten Spurenstoff Schwefel hinsichtlich seines Ausbreitungs- und Ablagerungsverhaltens ermittelt wurden.

Verschiedene Untersuchungsergebnisse zeigen, daß in Ballungsgebieten der größte Teil dieses Spurenstoffes (SO_2 und SO_4 -Aerosol) auf trockenem Wege, der kleinere Teil auf feuchtem Wege abgelagert wird (Abb. 13, durchgezogene Linie). In unbelasteten Gebieten mit niedrigen SO_2 - und SO_4 -Immissionskonzentrationen spielt die trockene Deposition dagegen eine weniger wichtige Rolle. Über die nasse Deposition (gestrichelte Linie) wird in den Industriegebieten wesentlich weniger Schwefel abgelagert.



WK.

Abb. 13 Ausmaß der trockenen und feuchten Schwefeldeposition im Vergleich zwischen einem Industrie- und Reinluftgebiet (schematisch) (nach KUTTLER 1983c)

In den Reinluftgebieten ist der Anteil des auf feuchtem Wege abgelagerten Schwefels im allgemeinen höher als die trockene Deposition. Im Vergleich zum Industriegebiet wird im Reinluftgebiet auf nassem Wege meist weniger Schwefel über den Niederschlag deponiert. Liegen jedoch - was in unseren Mittelgebirgen häufig der Fall ist - höhere Jahresniederschlagssummen vor als in den Industriegebieten (Bochum: 810 mm, Hochsauerland 1000 bis 1400 mm, Bayerischer Wald 750 bis 1500 mm, Schwarzwald 1000 bis 1500 mm, Alpen 1000 bis 2000 mm, Eifel 900 bis 1200 mm), dann kann die nasse Ablagerung von Spurenstoffen dort höher sein als sie es in den Industriegebieten ist.

Nach einer Zusammenstellung in BEILKE (1975) werden die nachfolgenden Daten über die prozentualen Anteile der trockenen und nassen Ablagerung an der Gesamtdeposition genannt (Tab. 7).

	stark verunr. Gebiet	mittl. verunr. Gebiet	Reinluft- gebiet	Jährl. Regen- menge	Gebiet und Autor
% Deposition durch Auswaschen	8%	14%	47%	700 mm	England
durch trock. Abl.	92%	86%	53%		CHAMBERLAIN
% Deposition durch Auswaschen	—	27%	55%	800 mm	Große Seen Kanada
durch trock. Abl.	—	73%	45%		WHELPDALE

Tab. 7 Vergleich der Wirksamkeit von trockener Ablagerung und Auswaschen am Beispiel des Schwefels (BEILKE 1975)

Die Untersuchungen in England ergaben hiernach für stark verunreinigte Gebiete einen hohen Anteil von 92% an der trockenen Deposition, der sich jedoch in Reinluftgebieten auf 53% reduziert. Von der Größenordnung her ähnliche Verhältnisse konnten an den Großen Seen in Kanada ermittelt werden, wo die trockene Deposition in mittleren verunreinigten Gebieten 73% ausmacht, in Reinluftgebieten dagegen etwa 45% der Gesamtdeposition. Untersuchungen aus dem mittleren Ruhrgebiet (KUTTLER 1983c) ergaben für ein mittelmäßig belastetes Gebiet einen Anteil der trockenen Deposition von 80% an der Gesamtjahresablagerung an Schwefel. Andere Untersuchungen z. B. von GEORGII et al. (1982) bestätigen diese Sachverhalte.

Die regionalbedingten Effektivitätsunterschiede der beiden Spurenstoffsenken lassen sich anhand des Vergleichs zwischen der trockenen und nassen Ablagerung in Europa verdeutlichen (Abb. 14 und 15).

Die trockene Schwefeldeposition (Abb. 14) zeichnet in etwa das Weichbild der großen Ballungsräume Englands, Hollands, Belgiens, Deutschlands, der DDR, Polens und der Sowjetunion (Moskau) nach. Hohe und höchste Depositionsraten zwischen 5 und 10 g S·m⁻²·a⁻¹ werden hier erreicht. Industrieferne Gebiete dagegen wie z. B. das südliche Norwegen weisen wesentlich niedrigere Werte der trockenen Schwefeldeposition auf. Hier werden zwischen 0,5 und 0,1 g S·m⁻²·a⁻¹ dem Boden zugeführt. Die in Abb. 15 dargestellten Verhältnisse der nassen Schwefelablagerung zeigen im Vergleich zur trockenen Ablagerung ein weniger stark strukturiertes Verteilungsmuster:

Die emissionsstarken Ballungsräume pausen sich im Bild der nassen Ablagerung nur noch undeutlich durch. Über die nasse Schwefeldeposition werden in Mitteleuropa zwischen 1 und 2,5 g S·m⁻²·a⁻¹ abgelagert. Im Gegensatz zu den Werten der trockenen Deposition wird über die nasse Ablagerung in den industriefernen Reinluftgebieten Südnorwegens mit bis zu 1 g S·m⁻²·a⁻¹ doppelt bzw. viermal soviel Schwefel dem Boden zugeführt wie durch die trockene Deposition.

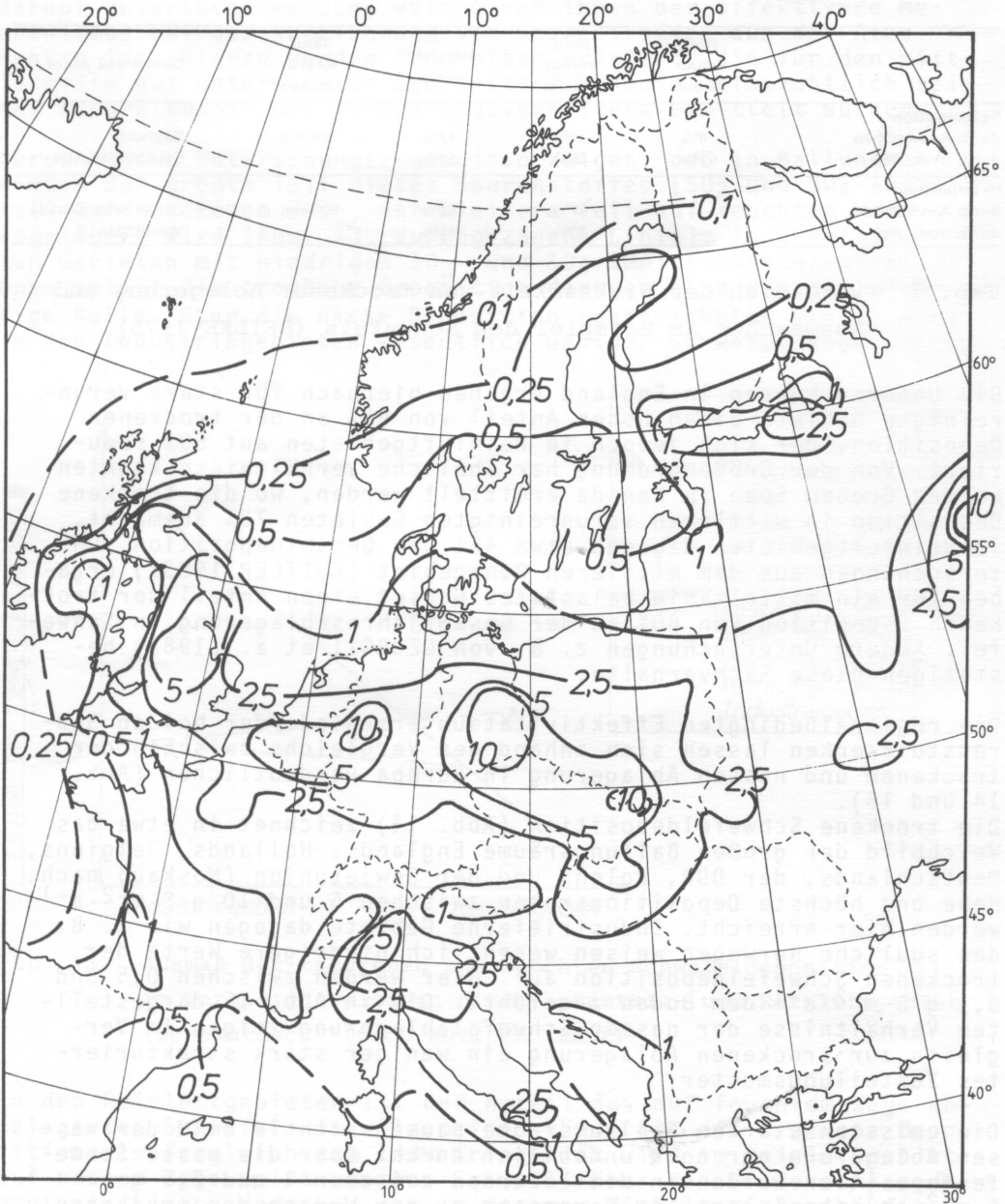


Abb. 14 Geschätzte gesamte trockene Schwefeldeposition ($\text{SO}_2 + \text{SO}_4$) für das Jahr 1974 (in $\text{g S m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$) (nach OECD 1977, aus VDI RDL 1983; verändert)

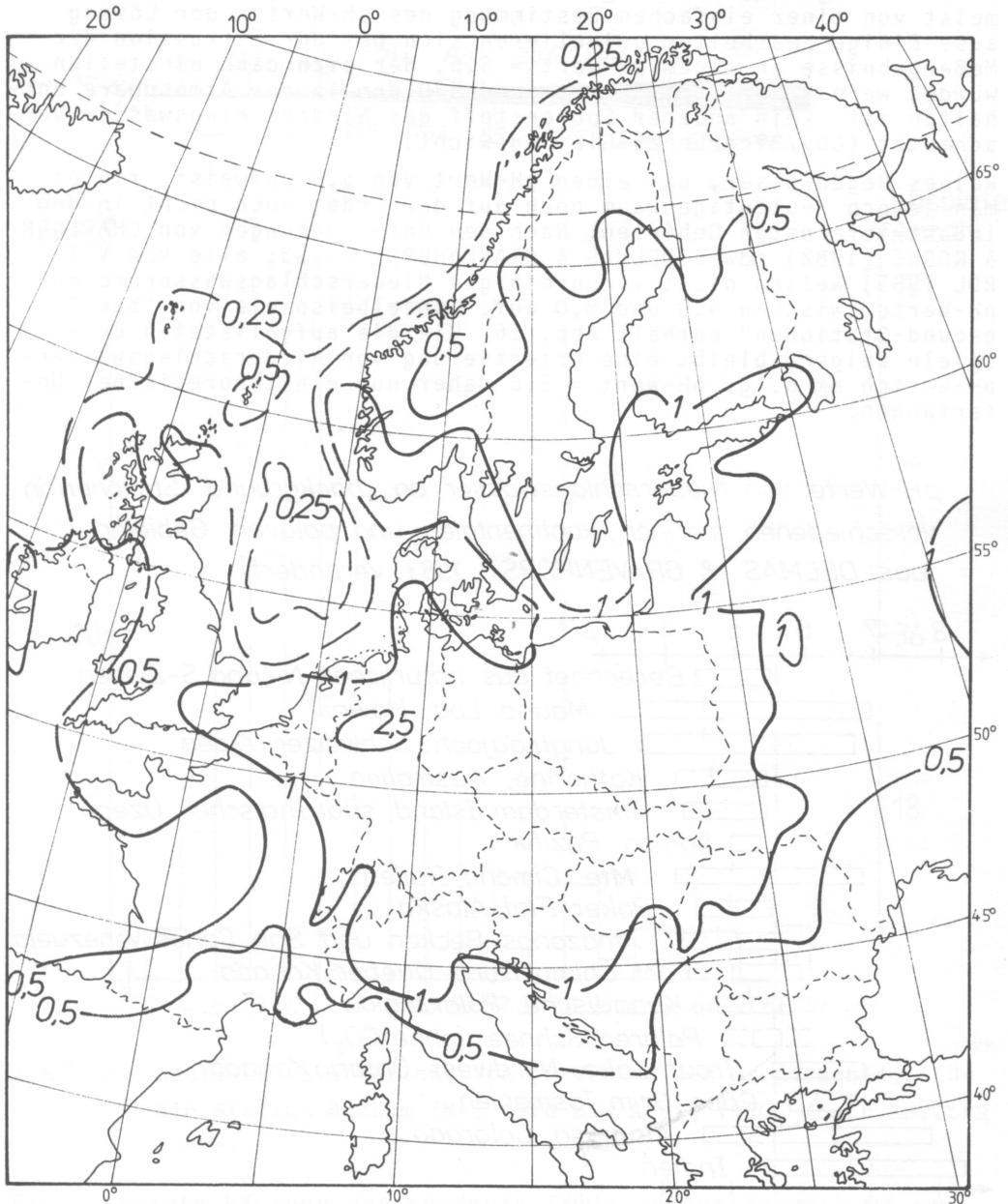


Abb. 15 Geschätzte nasse Schwefeldeposition für das Jahr 1974
(in $\text{g S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$) (nach OECD 1977, aus VDI RDL 1983;
verändert)

4. Zur chemischen Zusammensetzung von Niederschlägen

Untersuchungen über Säuregehalte im Niederschlagswasser gehen meist von einer einfachen Bestimmung des pH-Wertes der Lösung aus. Einige Bearbeiter orientieren sich bei der Diskussion der Meßergebnisse an einem pH-Wert = 5,6, der sich dann einstellen würde, wenn außer CO_2 , das zu rund 330 ppm in der Atmosphäre enthalten ist, kein anderer Spurenstoff das Niederschlagswasser verschmutzt (CO_2 /Bicarbonat-Gleichgewicht).

Reines Regenwasser, das einen pH-Wert von 5,6 aufweist, findet man jedoch heutzutage kaum noch auf der Erde, auch nicht in den industriiefreisten Gebieten. Nach den Untersuchungen von CHARLSON & RODHE (1982) sowie DELMAS & GRAVENHORST (1983; alle von VDI RDL 1983) weisen nicht verunreinigte Niederschlagswasserproben pH-Werte zwischen 4,0 und 8,0 auf. Einzelbeispiele von "background-Stationen" enthält Abb. 16. Wie die aufgelisteten Beispiele zeigen, bleibt eine Orientierung von Niederschlagswasser-pH-Werten am o. g. pH-Wert = 5,6 daher nur ein theoretisches Unterfangen.

pH-Werte von Niederschlagswasser an „background“-Stationen in verschiedenen marinen, kontinentalen und polaren Gebieten (aus DELMAS & GRAVENHORST 1983; verändert)

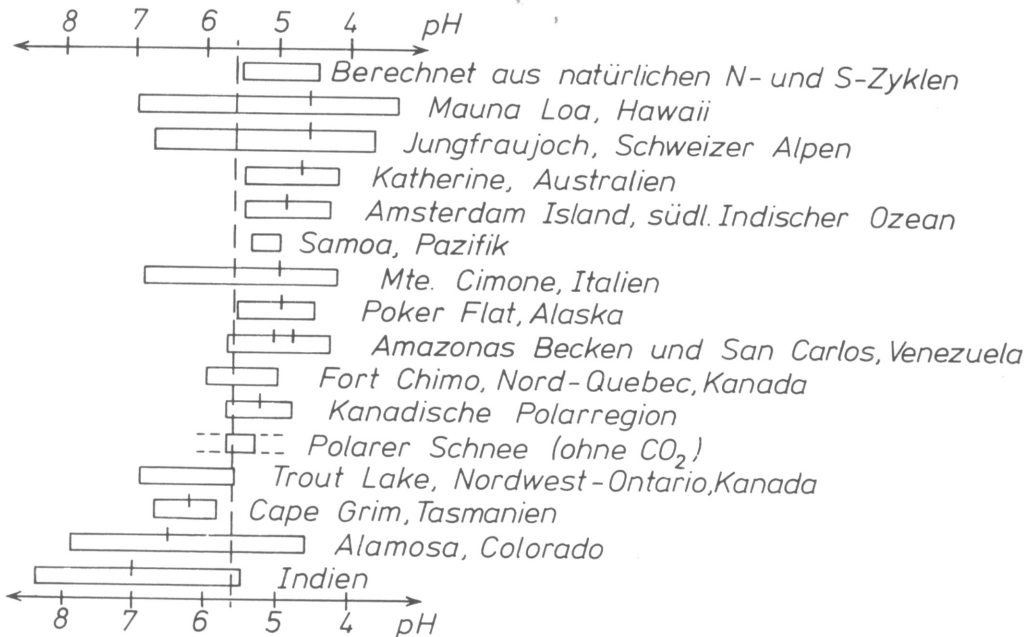
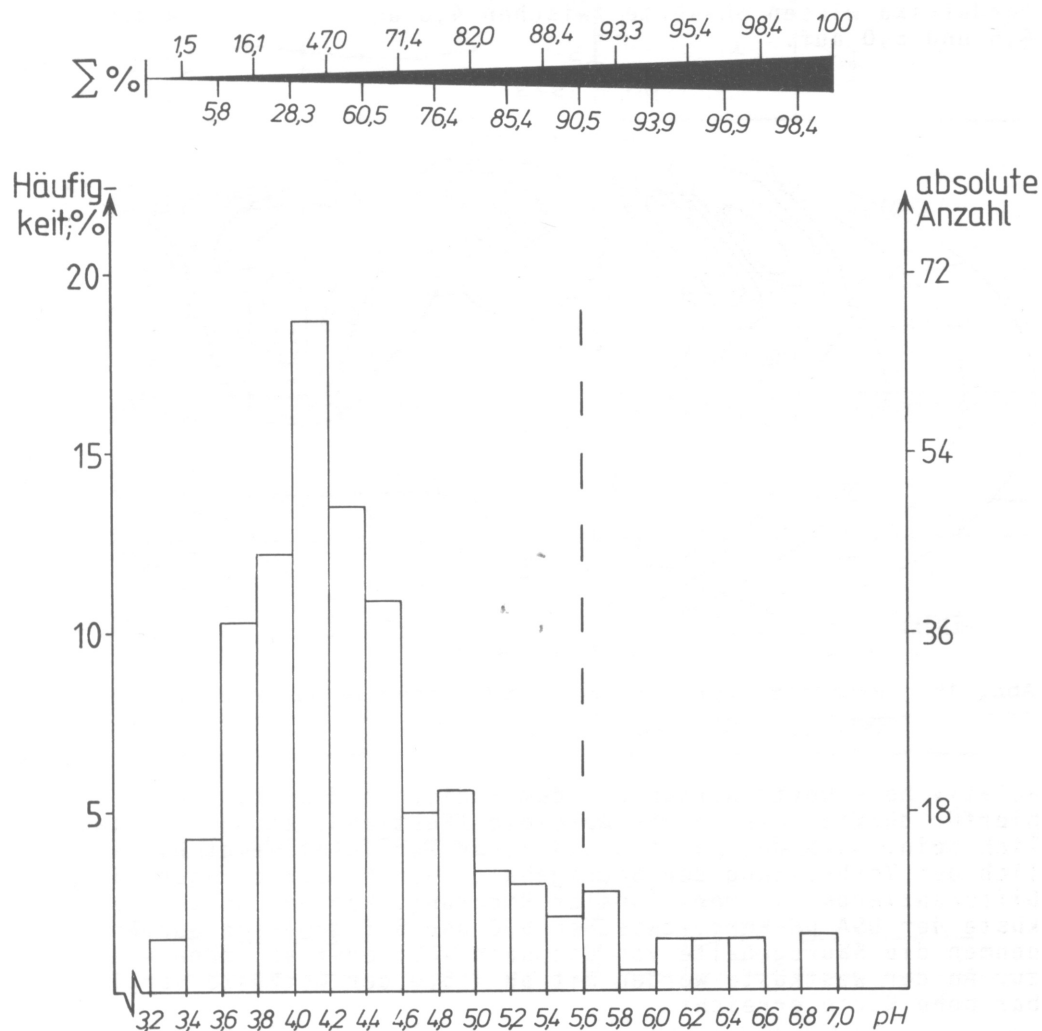


Abb. 16 pH-Werte vom Niederschlagswasser an "background"-Stationen in verschiedenen marinen, kontinentalen und polaren Gebieten (nach DELMAS & GRAVENHORST 1983; verändert, aus VDI RDL 1983)

Die Auswertung einer Untersuchung an der Station Bochum ergab nach der in Abb. 17 dargestellten Klassenaufteilung der Einzelwerte folgendes Bild:



W.K.

Abb. 17 Häufigkeitsverteilung von pH-Werten des Niederschlags für die Station Bochum (Mai 1978 bis April 1980) (nach KUTTLER 1983c)

Eine absolute Häufung der pH-Werte fällt in den Bereich pH = 4,0 - 4,2; etwa 20% aller in Bochum gemessenen pH-Werte entsprechen dieser Gruppe. Nach der Summenhäufigkeitsverteilung waren insgesamt 47,0% aller Werte kleiner als pH = 4,2, 90% aller Werte kleiner als pH = 5,6. Der in dem angegebenen Zeitraum für Bochum berechnete mittlere pH-Wert belief sich auf pH = 4,1; dieser Wert liegt innerhalb der an Meßstellen in Mitteleuropa gemessenen Spanne von pH = 4,0 - 4,5.

Abb. 18 enthält eine geographische Verteilung der pH-Werte, die sich im wesentlichen auf die Nordhalbkugel beschränkt. Die den verschiedenen Meßnetzen zugrundeliegenden Ergebnisse zeigten für das Jahr 1979 folgendes Bild: Europa, der Mittelmeerraum und Nordafrika wiesen pH-Werte zwischen 4,0 und 5,0 bzw. zwischen 4,5 und 5,0 auf.

pH - 1979

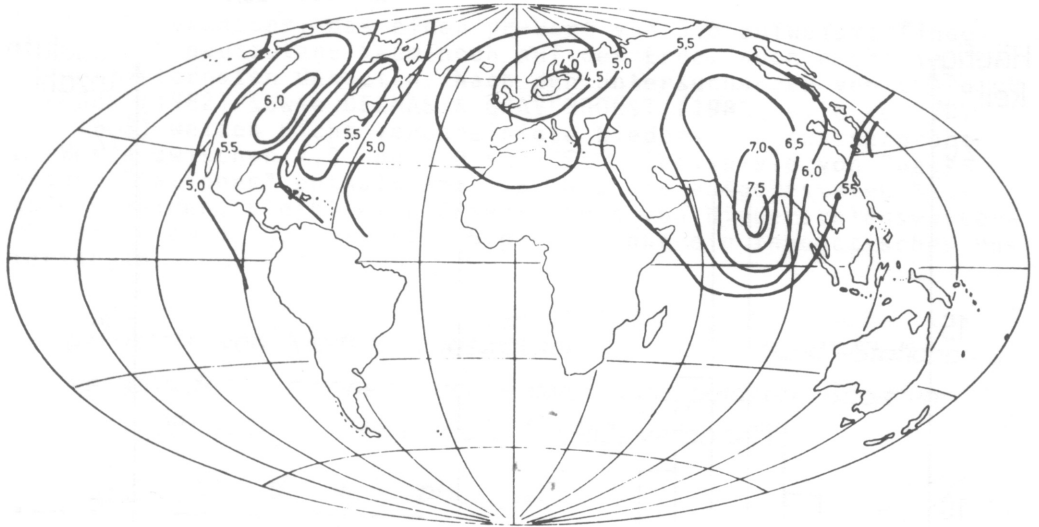


Abb. 18 Räumliche Verteilung von pH-Werten im Niederschlagswasser im Jahre 1979 (nach GEORGII 1982)

Relativ hohe Werte wurden aus dem indischen Meßnetz gemeldet; hierfür dürften alkalische Aerosole (Festlandsstaub) verantwortlich sein. Auch der nordamerikanische Kontinent zeigt hinsichtlich der Verbreitung der Säuregehalte von Niederschlägen eine Differenzierung in meridionaler Richtung. Während an der Ostküste der USA pH-Werte zwischen 5,0 und 5,5 gemessen wurden, nehmen die Säuregehalte von Ost nach West erst ab, dann wieder zu. An der Westküste werden mit $\text{pH} = 5,0$ der Ostküste vergleichbar hohe Werte erreicht.

Neben der geographischen Diversität unterschiedlich hoher Säuregehalte des Niederschlagswassers ist der Nachweis der zeitlichen Veränderung der pH-Werte, und zwar der langfristigen, ein Problem der gegenwärtigen Forschung. Es wird insbesondere der Frage nachgegangen, ob sich angesichts der in vielen Gebieten auftretenden Schäden an Ökosystemen die Niederschlagsacidität in den letzten Jahren drastisch verändert hat. Es ist schwierig, diese Frage klar für die letzten 30 Jahre zu beantworten, da früher einerseits die Meßnetze noch nicht so umfangreich waren wie in der letzten Zeit, andererseits Meß- und Sammelmethode des Niederschlagswassers außerordentlich stark voneinander abwichen und damit kaum vergleichbar waren. Abb. 19 enthält für den Zeitraum 1972 bis 1979 Trends der pH-Werte verschiedener Stationen des europäischen Meßnetzes.

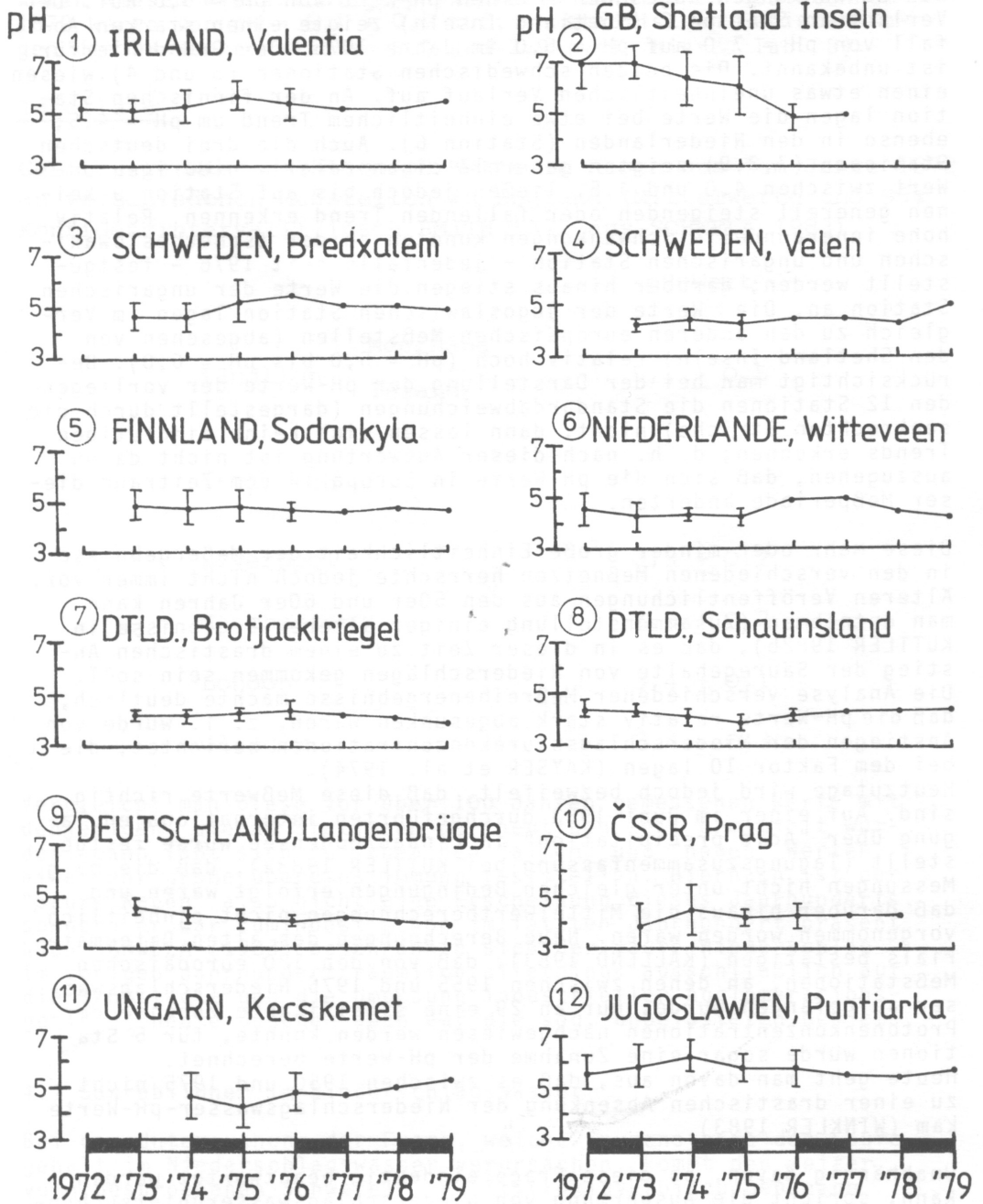


Abb. 19 Trends der pH-Werte im Niederschlagswasser an verschiedenen Stationen in Europa (Zeitraum: 1972 bis 1979; nach GEORGII 1982; verändert)

W.K.

Station 1 (Irland) wies im Verlauf des Meßzeitraumes - von gewissen Schwankungen abgesehen - einen pH-Wert von $\text{pH} = 5,0$ auf. Der Verlauf an Station 2 (Shetland Inseln) zeigte einen starken Abfall von $\text{pH} = 7,0$ auf $\text{pH} = 5,0$ im Jahre 1976. Der Grund hierfür ist unbekannt. Die beiden schwedischen Stationen (3 und 4) wiesen einen etwas uneinheitlichen Verlauf auf. An der finnischen Station lagen die Werte bei etwa einheitlichem Trend um $\text{pH} = 4,5$; ebenso in den Niederlanden (Station 6). Auch die drei deutschen Stationen (7,8,9) zeigten generell einen relativ niedrigen pH-Wert zwischen 4,0 und 4,5, ließen jedoch bis auf Station 9 keinen generell steigenden oder fallenden Trend erkennen. Relativ hohe innerannuelle Schwankungen konnten an der tschechoslowakischen und ungarischen Station - jedenfalls seit 1976 - festgestellt werden; darüber hinaus stiegen die Werte der ungarischen Station an. Die Werte der jugoslawischen Station lagen im Vergleich zu den anderen europäischen Meßstellen (abgesehen von den Shetland Inseln) relativ hoch ($\text{pH} = 5,0$ bis $\text{pH} = 6,0$). Berücksichtigt man bei der Darstellung der pH-Werte der vorliegenden 12 Stationen die Standardabweichungen (dargestellt durch die senkrechten Striche) nicht, dann lassen sich keine eindeutigen Trends erkennen; d. h. nach dieser Auswertung ist nicht davon auszugehen, daß sich die pH-Werte in Europa in dem Zeitraum dieser Meßperiode änderten.

Diese mehr oder minder große Einheitlichkeit der Meßergebnisse in den verschiedenen Meßnetzen herrschte jedoch nicht immer vor. Älteren Veröffentlichungen aus den 50er und 60er Jahren kann man entnehmen (Zusammenstellung einiger älterer Ergebnisse in KUTTLER 1982b), daß es in dieser Zeit zu einem drastischen Anstieg der Säuregehalte von Niederschlägen gekommen sein soll. Die Analyse verschiedener Meßreihenergebnisse machte deutlich, daß die pH-Werte relativ stark abgesunken waren, z. T. wurde von Anstiegen der Niederschlagssäurekonzentrationen berichtet, die bei dem Faktor 10 lagen (KAYSER et al. 1974). Heutzutage wird jedoch bezweifelt, daß diese Meßwerte richtig sind. Auf einer im Juni 1983 durchgeführten internationalen Tagung über "Acid precipitation" in Lindau/Bodensee wurde festgestellt (Tagungszusammenfassung bei KUTTLER 1983a), daß die o. g. Messungen nicht unter gleichen Bedingungen erfolgt waren und daß darüber hinaus die Mittelwertberechnungen nicht einheitlich vorgenommen worden waren. Neue Berechnungen des alten Datenmaterials bestätigen (KALLEND 1983), daß von den 120 europäischen Meßstationen, an denen zwischen 1955 und 1975 Niederschlagswasser aufgefangen wurde, nur an 29 eine signifikante Zunahme der Protonenkonzentrationen nachgewiesen werden konnte, für 5 Stationen wurde sogar eine Zunahme der pH-Werte berechnet. Heute geht man davon aus, daß es zwischen 1950 und 1975 nicht zu einer drastischen Absenkung der Niederschlagswasser-pH-Werte kam (WINKLER 1983).

Unabhängig davon, ob diese Frage eindeutig beantwortet werden kann, spricht die Auswertung von Niederschlagswasseruntersuchungen aus dem vergangenen Jahrhundert, die der Klimatologe SMITH vornahm und in seinem 1872 erschienenem Buch über "Air and Rain" veröffentlichte, dafür, daß der saure Regen im Prinzip schon ein altes Phänomen ist und nicht erst eine Erscheinung dieses Jahrhunderts.

Nach seinen Analysen und den von SCHWELA (1983) umgerechneten Werten wiesen Niederschlags-pH-Werte in ländlichen Gebieten um 1872 Werte von $\text{pH} = 5,1 \pm 0,5$ auf; in städtischen Gebieten lagen die pH-Werte zwischen 3,4 und 3,9 (vgl. hierzu Tab. 8).

Tabelle 8

Geschätzte Niederschlags pH-Werte im Regen aus dem Jahre 1872 an verschiedenen Meßstellen in England (Mittelwerte und 95% Konfidenzintervall) (nach SMITH 1872 aus SCHWELA 1983)

	Meernähe	pH-Wert
ländlich	Inland	$5,1 \pm 0,5$
städtisch		
Liverpool		$3,9 \pm 0,2$
Manchester		$3,5 \pm 0,2$
London		$3,4 \pm 0,1$
Glasgow		$3,4 \pm 0,3$

Vergleicht man diese vor über 100 Jahren gemessenen Werte mit denjenigen, die an Stationen der heutigen Zeit ermittelt wurden, dann läßt sich zwischen den "alten" und "neuen" Werten eine sehr große Übereinstimmung feststellen. Hiernach ist der "Saure Regen" also nicht eine Erscheinung dieses Jahrhunderts, sondern er war zumindest schon im letzten Jahrhundert präsent. Nach SCHWELA (1983) beschränkte sich der saure Niederschlag im vorigen Jahrhundert räumlich allerdings ausschließlich auf die Großstädte und die Umgebung industrieller Agglomerationsgebiete; heute dagegen auch auf die sog. unbelasteten Gebiete.

4.1 Säurebildner im Niederschlagswasser

Bei der Untersuchung der Frage, welche Spurenstoffe den Säuregehalt im Niederschlagswasser verursachen, kommt den weiter vorn besprochenen Schwefel- und Stickoxidverbindungen eine überragende Bedeutung zu. Analyseergebnisse und Berechnungen hierzu ergeben nach amerikanischen Untersuchungen folgendes quantitatives Bild (WILSON et al. in GEORGII et al. 1982):

Dem Sulfat im Regenwasser wird eine Beteiligung am Anionengehalt von 68% bis 70% zugeschrieben, dem Nitrat eine von 23% bis 27% und dem Chlorid eine von 4% bis 10%. Küstennahe Sta-

tionen verschieben diese Werte zugunsten des Chlorids, das dann einen Anteil von 26% bis 44% annimmt. Auch die in der Bundesrepublik Deutschland durchgeführten Arbeiten zur Quantifizierung der Anionenanteile im Niederschlagswasser weisen dem Sulfat zwischen 50% und 60% zu, dem Nitrat 25% bis 30% und dem Chlorid 10% bis 15%. Letztgenannter Spurenstoff zeigt in Abhängigkeit von der Lage zur Küste Erhöhungen, die bis zu 40% am Gesamtanteil der Anionengehalte in Regenwasserproben ausmachen können (meerbedingter Eintrag durch Seesalzteilchen im Blasensprüh) (GEORGII et al. 1982).

Die ähnliche Zusammensetzung der Protonenlieferanten im Niederschlagswasser an verschiedenen Stationen in der Bundesrepublik Deutschland wird auch aus Abb. 20 ersichtlich: Die Beteiligung des Sulfats liegt in allen Fällen bei über 50%, in Küstennähe fällt der erhöhte Einfluß von Chlorid auf. Warum ausgerechnet auf dem 968 m hohen und im Binnenland liegenden Hohenpeißenberg so hohe Chloridgehalte gemessen wurden, konnte bislang noch nicht geklärt werden (PERSEKE 1982).

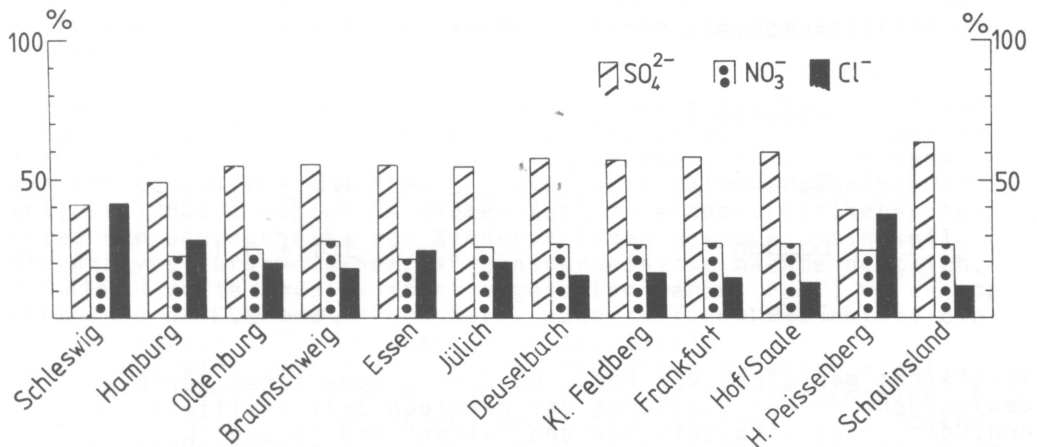


Abb. 20 Prozentualer Anteil von SO_4^{2-} , NO_3^- und Cl^- an der Säurebildung im Niederschlagswasser (nach GEORGII et al. 1982)

Ein direkter Zusammenhang zwischen dem Schwefelgehalt und dem pH-Wert des Niederschlagswassers läßt sich an Proben aus industriebelasteten Stationen nicht erkennen, da Kationen (z. B. Calcium) diese eigentlich vorhandene Abhängigkeit überdecken (RÖNICKE & KLOCKOW 1974, MALISSA et al. 1980). Um diese Beeinflussung auszuschalten, wurden in Abb. 21 Ergebnisse von Niederschlagsproben aus Reinluftgebieten verwendet. Man erkennt sehr deutlich den Zusammenhang zwischen niedrigen Schwefelgehalten der Regenwasserproben und hohem pH-Wert und umgekehrt; bei höherer Schwefelbelastung im Niederschlagswasser steigt die Säurebelastung an, was sich durch einen niedrigeren pH-Wert, etwa zwischen 3 und 4, auszeichnet.

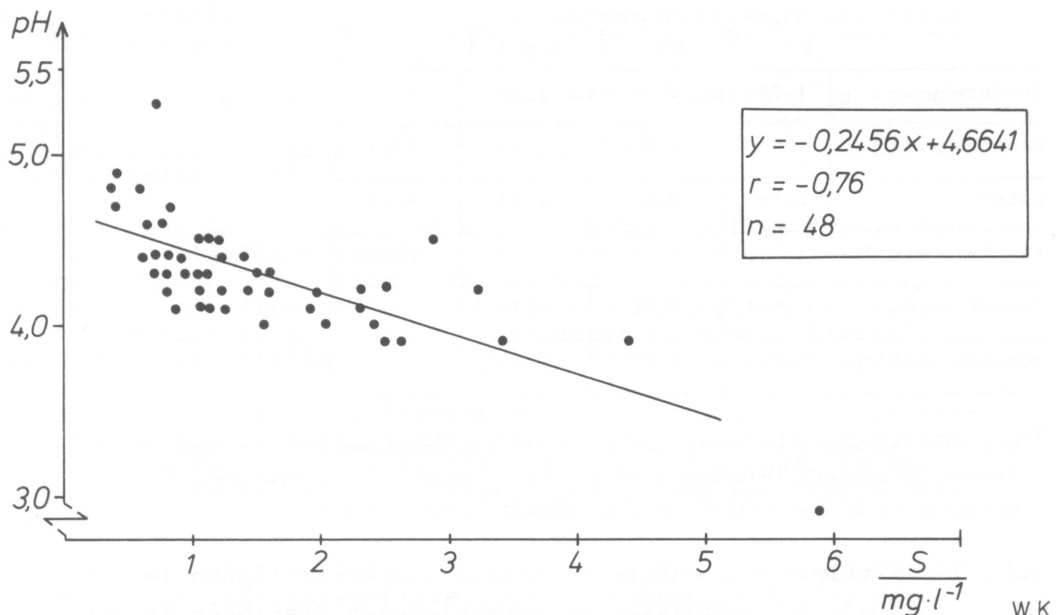


Abb. 21 Abhängigkeit der pH-Werte von den Schwefelkonzentrationen im Niederschlagswasser (nach Messungen an vier bundesdeutschen Reinluftstationen im Jahre 1980; berechnet und zusammengestellt nach Werten des UBA, 1981, aus KUTTLER 1983c)

4.2 Konzentrationen verschiedener Spurenstoffe im Niederschlagswasser

An zahlreichen Stationen im In- und Ausland werden mittlerweile Niederschlagswasserproben gewonnen und auf die Gehalte der verschiedensten Spurenstoffe hin untersucht. Weltweites Datenmaterial wird durch die WMO (z. B. 1981) zur Verfügung gestellt, in der Bundesrepublik durch Meßnetze des Umweltbundesamtes (UBA, Berlin und Pilotstation Frankfurt/M.) sowie durch verschiedene Universitätsinstitute.

Ein Überblick über die Spurenstoffkonzentrationen ausgewählter Niederschlagsbestandteile in der Bundesrepublik wird anhand Tabelle 9 gegeben, die die Konzentrationen für Sulfat-Schwefel, Nitrat-Stickstoff, Chlorid und Blei enthält. Es sind hier gewichtete Mittelwerte verwendet worden, die sich dadurch von den arithmetischen unterscheiden, daß sie mit der Menge des gefallenen Niederschlags in Beziehung gesetzt wurden, um mengenbedingte Konzentrationsunterschiede bei der Mittelung zu berücksichtigen.

Die sechs Meßstellenstandorte lassen sich in lufthygienischer Hinsicht unterteilen in drei städtisch belastete Gebiete (Braunschweig, Essen, Frankfurt/M.), eine weniger stark belastete Station in Küstennähe (Schleswig) und zwei Höhenlagenstationen (Kleiner Feldberg/Ts., 826 m ü. NN und Hohenpeißenberg, 968 m ü. NN), die zeitweise oberhalb der bodennahen, meist stärker verschmutzten Mischungsschicht liegen.

	$\text{SO}_4\text{-S}$ [mg·l ⁻¹]	$\text{NO}_3\text{-N}$ [mg·l ⁻¹]	Cl [mg·l ⁻¹]	Pb [µg·l ⁻¹]
Schleswig	1,78	0,76	3,51	12,8
Braunschweig	1,96	0,87	1,30	23,2
Essen	2,19	0,88	2,03	47,2
Kl. Feldberg/Ts.	1,73	0,72	1,15	24,0
Frankfurt/M.	1,89	0,76	1,14	32,3
Hohenpeißenberg	1,35	0,72	3,64	11,6

1) Die hier verwendeten Mittelwerte 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. 9 Mittlere gewichtete Spurenstoffkonzentrationen im Niederschlagswasser an verschiedenen Stationen in der Bundesrepublik Deutschland

In den Belastungsgebieten liegen die mittleren Sulfat-Schwefel-Konzentrationen zwischen 1,89 mg $\text{SO}_4\text{-S}\cdot\text{l}^{-1}$ und 2,19 mg $\text{SO}_4\text{-S}\cdot\text{l}^{-1}$, an der Küstenstation bei 1,78 mg $\text{SO}_4\text{-S}\cdot\text{l}^{-1}$ und den Höhenlagenstationen zwischen 1,35 mg $\text{SO}_4\text{-S}\cdot\text{l}^{-1}$ bis 1,73 mg $\text{SO}_4\text{-S}\cdot\text{l}^{-1}$. Die Konzentrationsunterschiede sind in ihrem räumlichen Verteilungsmuster somit relativ gering ausgeprägt.

Bei den $\text{NO}_3\text{-N}$ -Konzentrationen weisen die Stationen Essen und Braunschweig mit 0,87 $\text{NO}_3\text{-N}\cdot\text{l}^{-1}$ bis 0,88 $\text{NO}_3\text{-N}\cdot\text{l}^{-1}$ etwas höhere Werte auf als die unbelasteten Vergleichsstationen. Die Meßwerte der Station Frankfurt/M. unterscheiden sich dagegen nicht bzw. fast nicht von den Höhenlagenstationen und der Küstenstation.

Deutlichere regionale Unterschiede treten allerdings bei den Chloridwerten auf. Den höchsten Mittelwert verzeichnete die Station Hohenpeißenberg mit 3,64 mg $\text{Cl}\cdot\text{l}^{-1}$; die Gründe hierfür sind noch unklar, wie schon bemerkt (PERSEKE 1982).

Der zweithöchste Wert wurde für die Küstenstation Schleswig ermittelt; die anderen Konzentrationen bewegen sich unabhängig davon, ob es sich um ein Belastungsgebiet handelt oder nicht, zwischen 1,14 mg $\text{Cl}\cdot\text{l}^{-1}$ und 1,3 mg $\text{Cl}\cdot\text{l}^{-1}$. Relativ hoch ist der Chloridwert für die Station Essen mit 2,03 mg $\text{Cl}\cdot\text{l}^{-1}$, der wohl industriebedingt ist.

Die höchsten Bleikonzentrationen treten in den Ballungszentren Essen und Frankfurt/M. auf; dort bewegen sich die Werte zwischen 32,3 µg $\text{Pb}\cdot\text{l}^{-1}$ und 47,2 µg $\text{Pb}\cdot\text{l}^{-1}$. An den Höhenlagenstationen Hohenpeißenberg und an der Küstenstation Schleswig wurden dagegen niedrigere Werte um 12 µg $\text{Pb}\cdot\text{l}^{-1}$ ermittelt.

5. Zur Gesamtdeposition von Spurenstoffen (trockene und nasse Ablagerung)

Um die nasse Deposition von Spurenstoffen berechnen zu können, benötigt man die Spurenstoffkonzentration pro Menge Regenwasser und die Summe des gefallenen Niederschlags in der zu untersuchenden Zeiteinheit.

Die trockene Ablagerung wird mit Hilfe der Analyse der in den Trockensammelgefäßen deponierten Spurenstoffen unter Berücksichtigung der Expositionszeit bestimmt; die gasförmigen Anteile, die der Atmosphäre durch Ad- und Absorption entzogen werden, berechnet man nach verschiedenen Methoden. Hierauf soll an dieser Stelle jedoch nicht weiter eingegangen werden.

An Beispielen für Depositionsraten einzelner Spurenstoffe sollen die Ablagerungsmengen für verschieden belastete Standorte erläutert werden. Als Übersicht möge Abb. 22 dienen, in der die Verteilung der Gesamt-Schwefel-Deposition für Europa enthalten ist.

Nach dieser Auswertung zeichnen sich die kontinentalen mitteleuropäischen Industriegebiete sowie der Raum um Moskau durch eine Schwefel-Ablagerung aus, die bei etwa $10 \text{ g S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ liegt. In weiten Teilen der Bundesrepublik Deutschland, der DDR, der Tschechoslowakei, Polens, Südenglands und Oberitaliens werden zwischen 5 und $10 \text{ g S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ deponiert. In Nord- und Südeuropa - außerhalb der Ballungsräume - werden weniger als $2,5 \text{ g S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ dem Boden zugeführt.

Deutlich ist an dieser Darstellung auch der relativ starke Gradient vom Festland zum Meer (Atlantik und Nordsee) zu erkennen, wo in unmittelbarer Küstennähe z. T. nur noch Ablagerungsraten von $0,5 \text{ g S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$ auftreten.

Untersuchungsergebnisse neueren Datums enthält Tabelle 10 für einzelne ausgewählte Meßstellen in Europa, Deutschland und Übersee.

Die hier aufgelisteten Werte lassen aufgrund differenzierter Meß- und Sammelmethode eine Unterscheidung in die trockene und nasse Deposition am Beispiel Schwefel zu. Auch hieraus können Effektivitätsabschätzungen entnommen werden, wie sie bereits in Kapitel 3 behandelt wurden.

Nach Tabelle 10 sind für die Gesamtschwefelablagerung in Europa Werte zwischen 5 und $6 \text{ mg S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ wahrscheinlich.

Für Deutschland wurden in einer früheren Arbeit (Reihe 3, Tab. 10) Gesamtschwefelablagerungen berechnet, die zwischen $9,6$ und $34,2 \text{ mg S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ lagen; diese Werte konnten durch neuere Arbeiten (Reihe 4 bis 7) und durch die Differenzierung in belastete und unbelastete Räume im wesentlichen bestätigt werden. Die in Reihe 6 enthaltenen Werte für das Ruhrgebiet sind im Vergleich zu den an anderen Orten im Ruhrgebiet ermittelten Werten recht hoch. Diese Unterschiede lassen sich auf verschiedene Meßzeiträume und Standorte zurückführen. So wurden die besonders hohen Werte der trockenen SO_2 -S-Depositon in Bochum während gehäuft auftretender austauschärmer Wetterlagen (mit hohen Immissionskonzentrationen) in den Jahren 1979 bis 1981 gemessen.

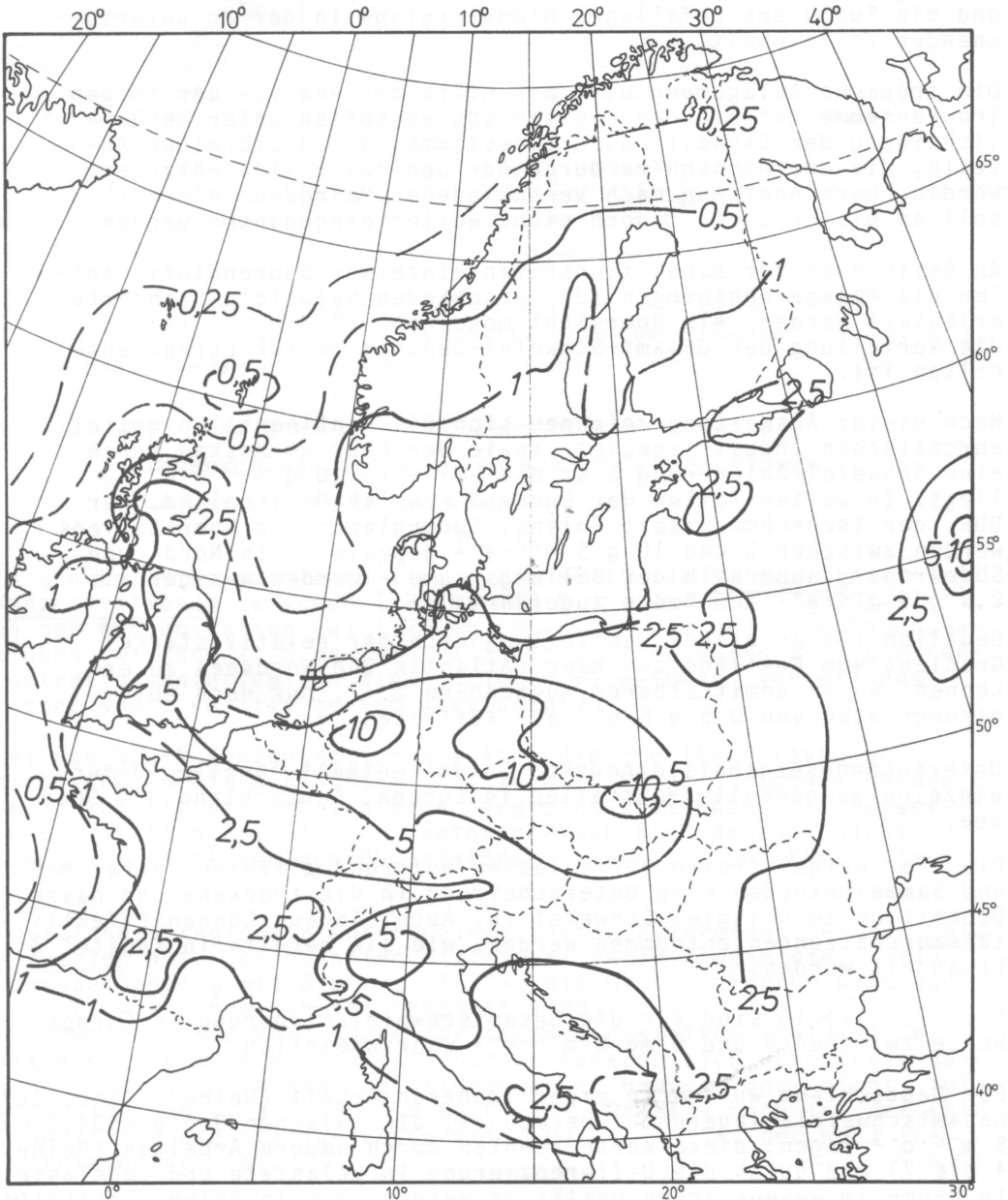


Abb. 22 Geschätzte gesamte (trockene und nasse) Schwefeldeposition für das Jahr 1974 (in $\text{g S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$) (nach OECD 1977, aus VDI RDL 1983; verändert)

Tab. 10: Trockene und Feuchte Schwefeldepositionen in verschiedenen Gebieten
(nach GEORGII et al. 1982; mit Ergänzungen aus KUTTLER 1983, 1984)

Reihe	Gebiet	Trockene Deposition		Feuchte Deposition		Gesamt- deposition	Gesamtdeposition		Verfasser ¹⁾
		SO ₂	in mg SO ₄	in mg SO ₄	S·m ⁻² ·d		In Prozent trocken	feucht	
1	Europa	2,609	0,146	3,131		5,886	46,8	53,2	MÉSZÁROS et al. 1978
2	Europa	3,3		1,7		5,0	66,0	34,0	OTTAR 1978
3	Deutschland	8,5 - 27,4		2,74 - 6,85		9,6 - 34,2	71,5 - 80,1	19,9 - 28,5	OTTAR 1978
4	Deutschland:								
	<u>belastet</u>								
	Ruhrgebiet	27,4	-	7,95 - 11,78		35,35-39,18	69,9 - 77,5	22,5 - 30,1	
	Rhein-Main- Gebiet	25 - 26	-	3,84		28,84-29,84	86,7 - 87,1	12,9 - 13,3	PERSEKE et al. 1980
	<u>unbelastet</u>								
	Deuselbach	5	-	2,74		7,74	64,6	35,4	
	Schauinsland	2	-	5,48		7,48	26,7	73,3	
5	Deutschland:								
	<u>belastet</u>								
	Ruhrgebiet	-	1,87	5,55		34,82	84,1	15,9	
	Rhein-Main- Gebiet	-	1,16	3,70		29,86-30,86	87,6 - 88,0	12,2 - 12,4	GEORGII et al. 1982
	<u>unbelastet</u>								
	Deuselbach	-	0,73	3,00		8,73	65,6	34,4	
	Schauinsland	-	0,36	3,66		6,02	38,9	61,1	
	Sauerland	-	4,7-7,6			4,7 - 7,6	-	-	KUTTLER 1983
	Bergisches Land (Nähe Wuppertal)	-	8,8			8,8	-	-	KUTTLER 1984
6	Deutschland:								
	<u>belastet</u>								
	Ruhrgebiet (Bochum)	38,8	9,4			48,2	80,0	20,0	KUTTLER 1982
7	Deutschland:								
	Berlin 1953	-	-	-		30	-	-	LAHMANN et al. 1980
	Berlin 1978	-	-	-		20	-	-	
8	England:								
	ländliches Gebiet	7,4	0,30	2,52		10,22	75,3	24,7	DAVIES et al. 1981
9	Nigeria:								
	Savanne	-	-	0,63		-	-	-	BEAUVINGTON et al. 1979
10	U S A:								
	Tennessee	-	-	0,6-3,7		-	-	-	LINDBERG et al. 1977

¹⁾ zitierte Arbeiten in GEORGII et al. 1982

Die in Reihe 7 enthaltenen Meßwerte einer Station in Berlin aus den Jahren 1953 und 1978 erlauben eine Diskussion über eine Abnahme der Spurenstoffbelastung während dieses Zeitraums nicht, da nur die Ergebnisse der beiden angegebenen Jahre berücksichtigt wurden.

In England wurden in ländlichen Gebieten rund $10 \text{ mg S} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ deponiert; das ist in etwa soviel wie in deutschen Reinluftgebieten abgelagert wird.

Der Meßwert aus dem Savannengebiet Nigerias, bei dem nur die feuchte Deposition berücksichtigt wurde, liegt um ein vielfaches niedriger als die Werte europäischer Stationen in unbelasteten Gebieten (Reihe 4,5,8).

	Trockene Deposition		Feuchte Deposition	Gesamt ^(o)	Gesamtdeposition		Autor
	NO ₂	NO ₃	NO ₃	deposition	%trocken	%feucht	
Europa	-	-	0,274-0,822	-	-	-	BÖTTGER et al., 1978
			bulk				
Europa	0,391-1,805	0,015-0,03		1,323-2,734	31,8-67	33-68,2	BONIS et al., 1980
	0,421-1,835						
Deutschland	-	0,15-0,57	1,21-2,21	1,16-2,78	8-2,3	77-92	GEORGII et al., 1982**
Belastet							
Ruhrgebiet (Essen)	-	0,2	1,92	2,12	9,4	90,6	GEORGII et al., 1982**
Ruhrgebiet (Bochum)	-	2,30		2,30			KUTTLER 1983**
Unbelastet							
Denselbach (Hunsrück, D)	-	0,36	1,21	1,57	22,9	77,1	GEORGII et al., 1982**
Sauerland (Deutschland)		0,7-3,2		0,7-3,2			KUTTLER 1983**
Bergisches Land (Deutschland)		3,2		3,2			KUTTLER 1984**

(o) Angaben in $\text{mg N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$

** Die Gesamtdeposition berücksichtigt keine trockene NO₂-Deposition

Tab. 11 Vergleich der trockenen und nassen Nitratdepositionen
(nach einer Zusammenstellung aus GEORGII et al. 1982,
mit Ergänzungen aus KUTTLER 1983b, 1984)

In Tabelle 11 sind die trockenen und nassen Nitratdepositionen für deutsche und andere europäische Stationen enthalten. Nach den vorliegenden Ergebnissen werden in Europa zwischen 1,3 und $2,7 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ auf trockenem und nassem Weg abgelagert; für Deutschland liegt der Wert in gleicher Größenordnung. Der größte Teil der NO₃-Deposition erfolgt über die feuchte Senke (77-92%), der Rest über die trockene.

Die Depositionswerte der beiden Ruhrgebietsstationen Essen und Bochum erreichten in etwa gleiche Werte.

Während die Gesamtdeposition an N (ohne die trockene NO₂-Deposition) in unbelasteten Gebieten im Hunsrück bei $1,6 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ lag, ergaben sich für neun Meßstationen im Sauerland Gesamtdepositionswerte zwischen 0,7 und $3,2 \text{ mg N} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$.

	Chloriddeposition ($\text{mg Cl}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$)	Autor
<u>Industrie-/Stadtgebiete</u>	6 - 7	} GEORGII et al. 1982 KUTTLER 1983
Swansea, städtisch	36,0	
Mittleres Ruhrgebiet (Bochum)	7,0	
<u>ländliche Gebiete</u>		
Süd-Wales	14,7 - 32,2	} GEORGII et al. 1982
Savanne, Nigeria	0,6	
Seenähe	12,0	
Binnenland	2,2	} KUTTLER 1983 KUTTLER 1984
Großbritannien	3,6 - 41,7	
Sauerland (Deutschland)	3,3 - 10,4	
Bergisches Land (Deutschland)	7,9	

Tab. 12 Summe der trockenen und nassen Chlordepositionen in verschiedenen Gebieten (nach GEORGII et al. 1982, mit Ergänzungen aus KUTTLER 1983b, 1984)

Tabelle 12 enthält Angaben über die Gesamtdeposition an Chlorid (Prozentangaben nach GEORGII et al. 1982); etwa 15 - 20% des Chlorids wird trocken abgelagert, der größere Teil somit über die Niederschläge. Wie aus dem Datenmaterial zu entnehmen ist, läßt sich hinsichtlich der Chloriddeposition keine scharfe Grenze zwischen belasteten und unbelasteten Gebieten ziehen. Während in städtischen Gebieten Werte zwischen 7 und 36 $\text{mg Cl}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ erreicht werden, bewegen sich die Werte in ländlichen, meist unbelasteteren Räumen zwischen 0,6 und 32 $\text{mg Cl}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$. Es muß jedoch erneut darauf hingewiesen werden, daß städtische und ländliche Gebiete in Küstennähe über besonders hohe Werte verfügen. Relativ hoch sind diese auch in hochgelegenen Reinluftgebieten wie dem Sauerland, in dem hohe Niederschlagssummen für eine erhöhte Chloriddeposition sorgen.

Blei wird in Reinluftgebieten auf trockenem Wege nur zu 6 - 8% abgelagert; in Belastungsgebieten steigt der trocken deponierte Teil auf 35% an. Agglomerationszentren weisen - je nach Meßstandortlage und -höhe über dem Erdboden Gesamtbleidepositionswerte zwischen 90 und über 1800 $\mu\text{g Pb}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ auf, ländliche Gebiete können Werte von bis zu 130 $\mu\text{g Pb}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ erreichen (Tabelle 13).

5.1 Filtereigenschaften der Vegetation

Die vorgenannten Depositionen von Spurenstoffen wurden unter Freilandbedingungen gemessen.

Vegetationsbestandene Flächen weisen dagegen - wie Analysen von Trauf- und Kronendurchlaßwasser sowie des Stammabflusses zeigen - wesentlich höhere Stoffeinträge in Waldökosystemen auf (BLOCK & BARTELS 1983, HÖFKEN et al. 1981, KÖNSTLE et al. 1981, KUTTLER 1984, ULRICH et al. 1981). Aufgrund der großen Oberfläche ihrer Assimilationsorgane und ihrer spezifischen Akzeptorfläche wirken Bäume als außerordentlich aktive Filter für Luftverunreinigungen. Das liegt daran, daß die Assimilationsorgane im Vergleich zur darunter befindlichen Bodenoberfläche ein Mehrfaches an Auffangfläche für anthropogene Luftverunreinigungen bieten.

Mit dem kumulativen Blattflächenindex (leaf-area-index) wird das Verhältnis der Gesamtoberfläche der Blätter zur darunter liegenden Bodenoberfläche bezeichnet. Boreale Nadelwälder können nach Berechnungen von WHITTAKER & LIKENS (1975, aus LARCHER 1980) Blattflächenindices erreichen, die zwischen 7 und 15 $\text{m}^2 \cdot \text{m}^{-2}$ liegen.

	Bleideposition ($\mu\text{g Pb} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$)	Autor
Industrie-/Stadtgebiete		
London (Dachniveau)	634,3	} GEORGII et al. 1982
New York	959	
England	1853	
Deutschland, Belastungsgebiete	90-170	} KUTTLER 1983
Mittleres Ruhrgebiet (Bochum)	177	
ländliche Gebiete		
Süd-Wales	49-115	} GEORGII et al, 1982
Savanne, Nigeria	< 27	
Lancaster, England	18-60	
Südengland, Wald	54-130	} KUTTLER 1984
Deutschland, Reinluftgebiete	38-40	
Bergisches Land (Deutschland)	113	

Tab. 13 Summe der trockenen und feuchten Bleidepositionen in verschiedenen Gebieten (nach GEORGII et al. 1982, mit Ergänzungen aus KUTTLER 1983b, 1984)

0,9 Bezogen auf die Freilandwerte lassen sich z. B. unter dem Kronendach von Buche und Fichte erhebliche Anreicherungs-faktoren feststellen (Tab. 14). Während die Konzentrationen unter Buche zwischen 1,5-fach (H^+ -Ionen) und 4,3-fach (Calcium) höher sind als die an der Freilandmeßstelle bestimmten Werte, konnten an der Station im Fichtenbiotop noch höhere Anreicherungs-faktoren ermittelt werden. Sie lagen dort um den Faktor 3,2 (Blei) bzw. 9,1 (Sulfat) über den Freilandmeßwerten.

	pH WERT	H^+ ($\mu\text{S} \cdot \text{l}^{-1}$)		LEITFÄHIGKEIT ($\mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$)		Ca ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)		$\text{SO}_4 - \text{S}$ ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)		Cl ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)		$\text{NO}_3 - \text{N}$ ($\text{mg} \cdot \text{l}^{-1}$)		Pb ($\mu\text{g} \cdot \text{l}^{-1}$)	
		F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F		
FREILAND	4,12	75,9	1	55,2	1	1,9	1	2,6	1	2,3	1	0,9	1	29,7	1
BUCHE	4,15	70,8	0,9	124,5	2,3	8,2	4,3	8,1	3,1	5,1	2,2	1,9	2,1	38,5	1,3
FICHTE	3,40	398,1	5,2	444,1	8,0	11,4	6,0	23,7	9,1	12,0	5,2	6,2	6,9	95,8	3,2

F = Vergleichsfaktor; Vielfaches des Freilandwertes

Tab. 14 Gewichtete mittlere Spurenstoffkonzentrationen, pH-Werte und elektrische Leitfähigkeiten im Niederschlagswasser in einem Freiland-, Buchen- und Fichtenbiotop (nach KUTTLER 1984)

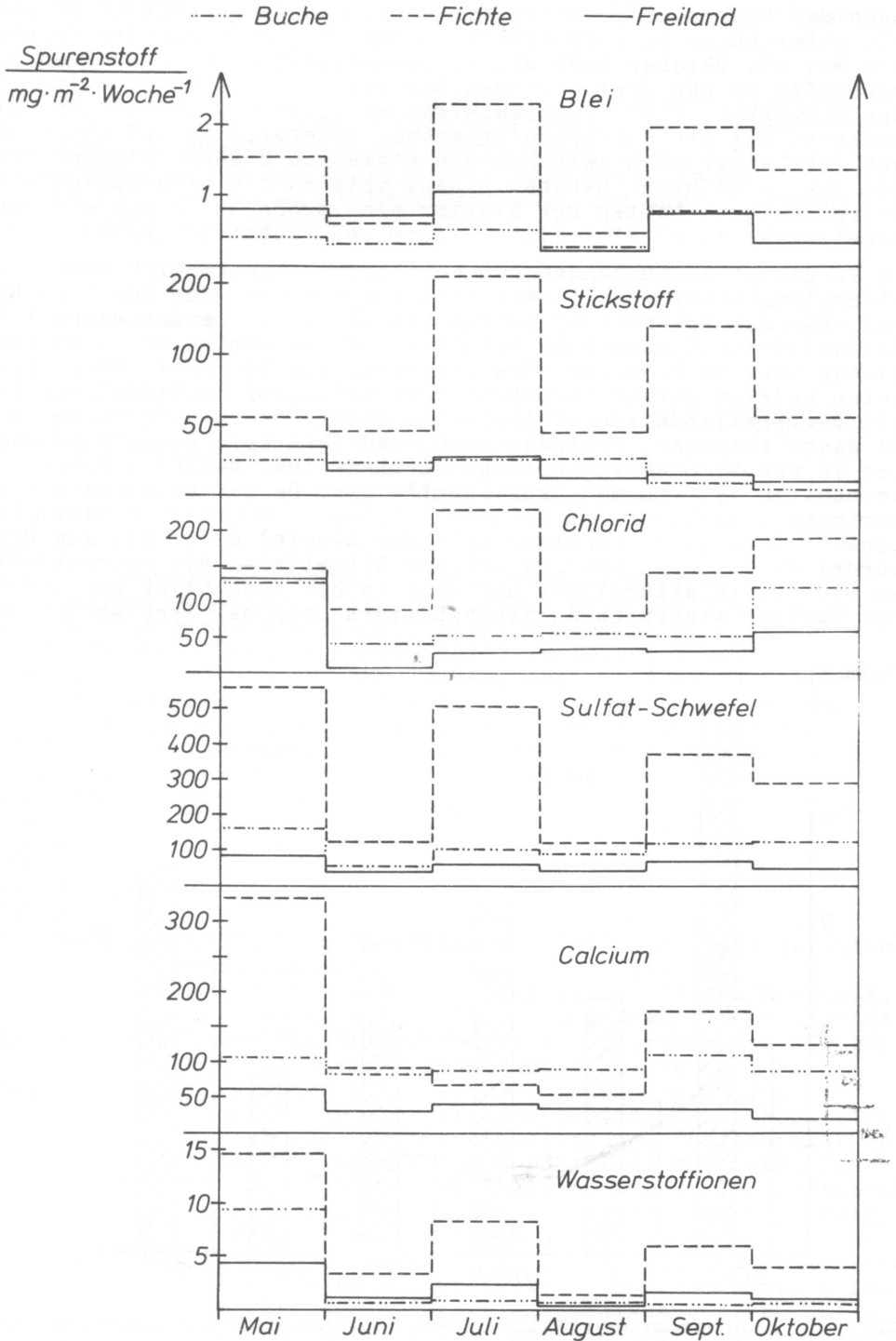


Abb. 23 Depositionsraten verschiedener Spurenstoffe im Freiland, unter Buche und unter Fichte im Bergischen Land (Mai bis Oktober 1983) (nach KUTTLER 1984)

Auch der Spurenstoffeintrag ist unter Fichte wesentlich größer als unter Buche oder im Freiland. Abb. 23 zeigt für die Meßperiode Mai bis Oktober 1983 die Ablagerungsraten der einzelnen Spurenstoffe in den drei Biotopen. Die von Monat zu Monat auftretenden Schwankungen der Meßergebnisse an allen Standorten sind einerseits auf die Niederschlagsmenge, andererseits auf die Dauer von Trockenperioden zwischen den einzelnen Niederschlagsereignissen zurückzuführen. Darüber hinaus spielen die unterschiedlichen Akzeptoreigenschaften der Blätter eine große Rolle sowie deren Benetzbarkeit, Blattstellung, -form und -oberflächenstruktur.

Im Vergleich zu Buche und zum Freiland traten am Fichtenstandort allerdings außerordentlich starke Schwankungen von Monat zu Monat auf. Für den Spurenstoff Sulfat betrug z. B. die durchschnittliche Variabilität (Standardabweichung des Mittelwertes in %) im Fichtenbiotop 56%, im Freiland- bzw. Buchenbiotop 30 - 33%. Dies dürfte unter anderem darauf zurückzuführen sein, daß im Mittel nur etwa 51% der Freilandniederschlagsmenge unter Fichte aufgefangen wird. Da davon ausgegangen werden kann, daß fast kein Niederschlagswasser in den Stammablauf gelangt (EIDMANN 1960; ULRICH & MAYER 1980), verdunsten 49% von den Nadeloberflächen. Da gerade Niederschläge geringer Intensität und kleiner Tropfendurchmesser in einem Fichtenwald (bei guter Benetzbarkeit der Nadeln) nicht bis zum Boden vordringen, werden während solcher Situationen die Spurenstoffe an den Nadeln akkumuliert und erst in dem Augenblick den unter den Zweigen stehenden Auffangbehältern über das Tropfwasser zu-

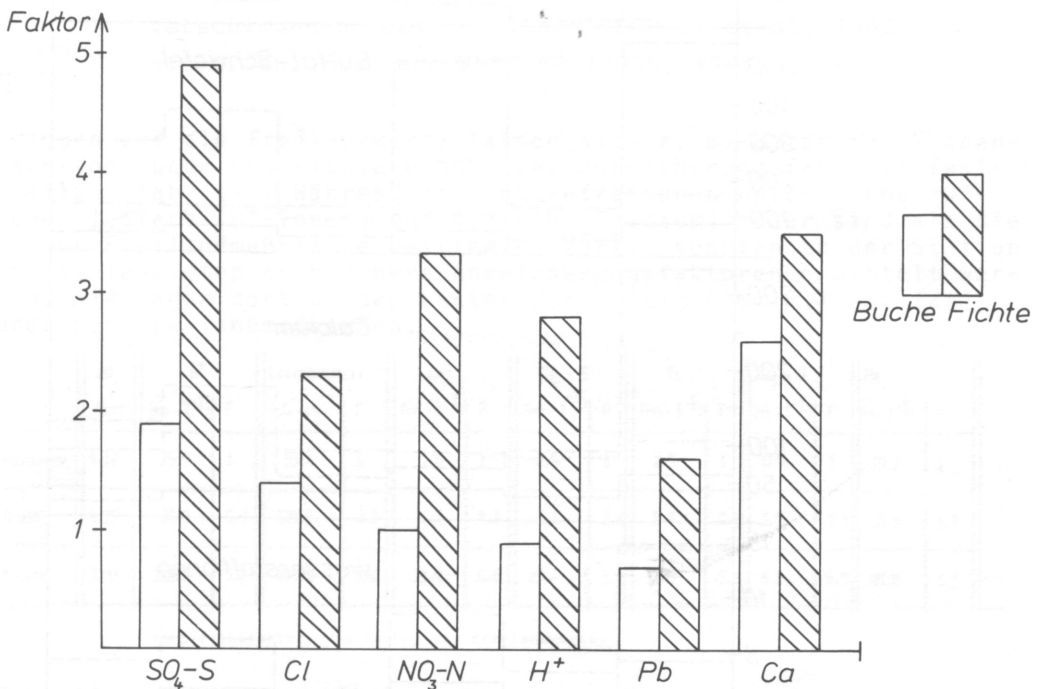


Abb. 24 Anreicherungs-faktoren von Spurenstoffdepositionen unter Waldbäumen (Buche und Fichte) an Standorten im Bergischen Land (Freiland = 1) (nach Werten aus KUTTLER 1984)

geführt, wenn es stärker regnet. Die Konzentrationen sind dann gegenüber denjenigen an Standorten im Freiland- bzw. Buchenbiotop erhöht.

Die mittleren Anreicherungsfaktoren der Spurenstoffdepositionen unter Buche und Fichte im Vergleich zum Freiland (Freiland = 1) enthält Abb. 24. Die Darstellung verdeutlicht einerseits den z. T. großen Unterschied der Depositionsraten gegenüber dem Freiland, andererseits die waldbaumspezifischen und damit -abhängigen Spurenstoffanreicherungen.

Die relative Anreicherungsrate ist für Sulfat-Schwefel unter Fichte am größten (4,9fach) gegenüber Freiland; die höchste Ausfilterungsrate unter Buche wurde für Calcium bestimmt (2,6fach). Für die Spurenstoffe $\text{NO}_3\text{-N}$, H^+ -Ionen und Pb wurden gleichhohe bzw. etwas niedrigere Depositionsraten als im Freiland erreicht. Nach Untersuchungen von ULRICH et al. (1981) sollen einige Spurenstoffe von den Assimilationsorganen der Pflanzen aufgenommen werden, so daß sich hierdurch die Anreicherungsfaktoren kleiner als 1 erklären ließen. Niedrigere Werte der H^+ -Ionenkonzentrationen unter Buche im Vergleich zum Freiland konnten u. a. auch BLOCK & BARTELS (1983) anhand ihrer Untersuchungen in der Haard nachweisen.

Die hohe Filterwirksamkeit von Waldbäumen gegenüber anthropogenen Luftverunreinigungen belegt den großen Wert der Vegetation für die Reinigung der Atmosphäre. Hierauf wies in einem etwas anderen Zusammenhang bereits KNABE (1973) in seiner Arbeit über "Immissionsschutzwäldungen" hin. Daraus aber, daß Wälder die in der Luft enthaltenen Spurenstoffe ausfiltern und in großen Mengen dem Boden zuführen, resultieren außerordentlich negative Eingriffe in den verschiedensten bodenabhängigen Ökosystemen, deren Interdependenzen vom wissenschaftlichen Standpunkt aus noch einer differenzierten Klärung bedürfen.

Literatur

- BAUMÖLLER, J.; REUTER, U. & HOFFMANN, U. (1982): Analyse der Smog-Situation in Stuttgart - Januar 1982 -. In: Mitteilung Nr. 4, Chemisches Untersuchungsamt, Klimatologische Abt., Landeshauptstadt Stuttgart
- BEILKE, S. (1975): Die Abscheideprozesse der Spurenstoffe aus der Atmosphäre. - Promet H. 3: 15-18
- BEILKE, S. (1980): Luftchemisches Verhalten von SO_2 . - In: Luftchemisches Verhalten anthropogener Schadstoffe. - Ergebnisse der Arbeitsgruppe "Luftchemie" in der VDI-Kommission Reinhaltung der Luft: 12-14
- BLOCK, J. & BARTELS, U. (1983): Hohe Konzentrationen von Luftverunreinigungen in den Waldniederschlägen. - Mitt. LÖLF, 8, H. 14: 19-34
- BÜTTGER, A.; EHHALT, D.H. & GRAVENHORST, G. (1978): Atmosphärische Kreisläufe von Stickoxiden und Ammoniak. - Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Jül-1558
- CULLIS, C.F. & HIRSCHLER, M.M. (1979): Emissions of sulfur into the atmosphere. - International Symp. Sulfur Emissions and the Environment 8-10 May 1979, London

- CULLIS, C.F. & HIRSCHLER, M.M. (1980): Atmospheric sulfur: natural and man-made sources. - Atmosph. Environ. 14: 1263-1278
- DRABLØS, D. & TOLLANN, A. (eds.) (1980): Ecological impact of acid precipitation. - Proc. International conf., Sandefjord, 11-14 March, 1980, Norway
- EIDMANN, F.E. (1960): Die Interception in Buchen- und Fichtenbeständen. Ergebnis mehrjähriger Untersuchungen im Rothaargebirge (Sauerland). - Colloquium Hannoversch-Münden, Sept. 1959, Publ. No. 48, Ass. Int. Hydrol. Sci.: 5-25
- GEORGII, H.W. (1965): Untersuchungen über Ausregnen und Auswaschen atmosphärischer Spurenstoffe durch Wolken und Niederschlag. - Ber. Dtsch. Wetterdst. 14, 100
- GEORGII, H.W. & VITZE, W. (1971): Global and regional distribution of sulfur components in the atmosphere. - Jdöjäräs 75: 294-299
- GEORGII, H.W. (1982): Global distribution of the acidity in precipitation. - In: GEORGII, H.W. & PANKRATH, J. (eds.): Deposition of Atmospheric Pollutants: 55-66, Dordrecht, Holland
- GEORGII, H.W.; PERSEKE, C. & ROHBOCK, E. (1982): Feststellung der Deposition von sauren und langzeitwirksamen Luftverunreinigungen aus Belastungsgebieten. Umweltforschungsplan des Bundesministers des Innern. Luftreinhalteung, Forschungsprojekt 10402600
- HÖFKEN, K.D.; GEORGII, H.W. & GRÄVENHORST, G. (1981): Untersuchungen über die Deposition atmosphärischer Spurenstoffe an Buchen- und Fichtenwald. - Bericht d. Inst. f. Meteorologie und Geophys. Univ. Frankfurt/M., Nr. 46
- ISRAEL, H. & ISRAEL, G.W. (1973): Spurenstoffe in der Atmosphäre. Stuttgart
- JANSSEN-SCHMIDT, Th.; RÜTH, E.P.; VARHELYI, G. & GRAVENHORST, G. (o.J.): Anthropogene Anteile am atmosphärischen Schwefel- und Stickstoffkreislauf und mögliche globale Auswirkungen auf chemische Umsetzungen in der Atmosphäre. Bericht im Auftrag des Umweltbundesamtes, Kontraktnummer 10402605
- KALLEND, A.S. (1983): Trends in the acidity of rain in Europe: A reexamination of European Atmospheric Chemistry Network data. - In: BEILKE, S. & ELSHOUT, A.J. (1983): Acid deposition, - Proc. CEC Workshop organized as part of the concerted action "Physico-Chemical behaviour of atmospheric Pollutants", Sept. 9, 1982, Berlin
- KAYSER, K.; JESSEL, K.; KÜHLER, A. & RÖNICKE, G. (1974): die pH-Werte des Niederschlags in der Bundesrepublik Deutschland 1967-1972. - Deutsche Forschungsgemeinschaft, Mitt. IX der Kommission zur Erforschung der Luftverunreinigung
- KLUG, H. (1972): Besonderheiten des Stadtklimas und Abhängigkeit der Luftverunreinigungen von Witterungsbedingungen. - In: Innerstädtisches Grün als Beitrag zur Umweltplanung, München
- KNABE, W. (1973): Zur Ausweisung von Immissionsschutzwaldungen. - Forstarchiv 44, H. 2: 21-27

- KÜLSKE, S. (1982): Hohe lokale Schadstoffbelastungen im Ruhrgebiet im Januar 1982. - Berichte d. Landesanstalt f. Immissionsschutz, NW, Nr. 24
- KONSTLE, E.; MITSCHERLICH, G. & RÖNIGKE, G. (1981): Untersuchungen über Konzentration und Gehalt an Schwefel, Chlorid, Kalium und Calcium sowie den pH-Wert im Freilandniederschlag und Kronendurchlaß von Nadel- und Laubholzbeständen bei Freiburg i. Br. - Allg. Forst- u. J.-Ztg. 152: 147-165
- KUTTLER, W. (1979a): Einflußgrößen gesundheitsgefährdender Wetterlagen und deren bioklimatische Auswirkungen auf potentielle Erholungsgebiete. - Bochumer Geographische Arbeiten, H. 36, Schöningh, Paderborn
- KUTTLER, W. (1979b): London-Smog und Los-Angeles-Smog. - Erdkunde, Bd. 33, Lfg. 3: 236-240
- KUTTLER, W. (1982a): Niederschlagswasseranalysen im Rahmen des Stauseeprojektes "Kemnade". - In: SCHREIBER, D. & HOTTES, K.: Stausee Kemnade. Geographische Beiträge im interdisziplinären Forschungsprojekt der Ruhr-Universität Bochum. Bochumer Geographische Arbeiten, H. 42: 24-66
- KUTTLER, W. (1982b): Belastung für den Boden. - Umweltmagazin, H. 10: 56-61
- KUTTLER, W. (1983a): Neuere Ergebnisse zum Problem "Saure Niederschläge". - Bericht über eine Intern. Tag. über "Acid Precipitation" in Lindau/Bodensee vom 7.-9. Juni 1983, - Monatsberichte aus dem Meßnetz, Nr. 4/83, Umweltbundesamt Berlin: 2-24
- KUTTLER, W. (1983b): Immissionsbelastungen des Bergisch-Sauerländischen Gebirges (Zwischenbericht). - Monatsberichte aus dem Meßnetz, 5/83, Umweltbundesamt Berlin: 1-37
- KUTTLER, W. (1983c): Anthropogenes Schwefelproblem und saure Niederschläge - Wohnbauforschung in Österreich, H. 1/2: 1-8
- KUTTLER, W. (1984): Zur Filterkapazität und zum Bestandsklima eines Buchen- und Fichtenforstes im Bergischen Land. - Jber. Naturwiss. Ver. Wuppertal, 37: 142-155
- LANDSBERG, H. (1954): Some observations on the pH of precipitation. - Archiv f. Met., Geophys, u. Bioklimatol. Serie A, 7: 219-226
- LARCHER, W. (1980): Ökologie der Pflanzen. Stuttgart
- LIS (=Landesanstalt für Immissionsschutz NW, Essen): Monatsberichte über die Luftqualität an Rhein und Ruhr (seit 1979)
- MALISSA, H.; PUXBAUM, H. & WOPENKA, B. (1980): Zur chemischen Zusammensetzung von urbanen Niederschlägen. - Fresenius Z. Anal. Chem. 301: 279-286
- MÉSZÁROS, E. (1981): Atmospheric Chemistry. Fundamental aspects. Elsevier Oxford, Amsterdam, New York
- MÖLLER, F. (1973): Einführung in die Meteorologie. Bd. I u. II. Hochschultaschenbücher Bd. 276
- NGUYEN BA CUONG, BONSANG, B. & LAMBERG, G. (1974): The atmospheric concentration of sulfur dioxide and sulfate aerosol over antarctic, subantarctic and oceans. - Tellus 24: 241-249

- OTTAR, B. (1978): An assessment of the OECD study on long-range transport of air pollutants. - Atmosph. Environ., 12: 445-454
- PACK, D.H.; FERBER, G.J.; HEFFTER, J.L.; TELEGADAS, K.; ANGELL, J.K.; HOECKER, W.H.; MACHTA, L. (1978): Meteorology of long-range transport. - Atmosph. Environ., 12: 425-444
- PERSEKE, C. (1982): Die trockene und feuchte Deposition säurebildender atmosphärischer Spurenelemente. - Berichte d. Inst. f. Meteorologie u. Geophys. Univ. Frankfurt/M. Nr. 48
- PRINZ, B.; KRAUSE, G.H.M. & STRATMANN, H. (1982): Waldschäden in der Bundesrepublik Deutschland, - Berichte der Landesanstalt für Immissionsschutz NW, Nr. 28
- ROBINSON, E. & ROBBINS, R.C. (1972): Emissions, concentrations, and fate of gaseous pollutants. - In: STRAUSS, W. (ed.): Air pollution control, Part II, p. 1-93
- RÖNICKE, G. & KLOCKOW, D. (1974): Der Grundpegel der Schwefelkonzentrationen der Luft in der Bundesrepublik Deutschland 1967-1972. - Mitteilung XII der Kommission zur Erforschung der Luftverunreinigung. DFG. Bonn
- SCHWELA, D. (1983): Vergleich der nassen Deposition von Luftverunreinigungen in den Jahren um 1870 mit heutigen Belastungswerten. - Staub-Reinh. Luft 43, Nr.4: 135-139
- SMITH, F.B. & HUNT, R.D. (1978): Meteorological aspects of the transport of pollution over long distances. - Atmosph. Environ. 12: 461-477
- TA-LUFT (=Technische Anleitung zur Einhaltung der Luft) vom 28.8.1974
- UBA (=Umweltbundesamt) (o.J.): Großräumige Luftbelastung in der Bundesrepublik Deutschland. Bericht aus dem Meßnetz des Umweltbundesamtes. Berlin
- UBA (=Umweltbundesamt) (1981): Luftreinhaltung '81 - Entwicklung, Stand, Tendenzen. Materialien zum 2. Immissionsschutzbericht der Bundesregierung. Berlin
- UBA (=Umweltbundesamt)-Texte (1982): Großräumige Luftverunreinigung in der Bundesrepublik Deutschland, Nr.33
- UBA (=Umweltbundesamt) (1983): Monatsberichte aus dem Meßnetz Nr. 6/83, Umweltbundesamt, Berlin
- ULRICH, B.; MAYER, R. & KHANNA, P.K. (1981): Deposition von Luftverunreinigungen und ihre Auswirkungen in Waldökosystemen im Solling. - Schriften aus der Forstl. Fak. Univ. Göttingen und der Nieders. Forstl. Vers. Anst. Bd. 58: 1-291
- ULRICH, B. & MAYER, R. (1980): Subjects area: Throughfall and Stemflow. - In: NICHOLSON, J.A.; PATERSON, J.S. & LAST, F.T. (eds.): Methods for studying acid precipitation in forest ecosystems. Definitions and research requirements. Proc. of a workshop held in Edinburgh 19-23 Sept. 1977
- UMWELT (1982): Informationen des Bundesministers des Innern zur Umweltplanung und zum Umweltschutz, Nr. 88
- VDI RDL (=Verein Deutscher Ingenieure, Kommission Reinhaltung der Luft) (1983): Säurehaltige Niederschläge - Entstehung und Wirkungen auf terrestrische Ökosysteme. Düsseldorf

-
- WINKLER, P. (1983): Saurer Niederschlag - eine Trendanalyse. -
Annalen der Meteorologie (N.F.), Nr.20: 117-118
- WMO (=World Meteorological Organization) (1981): Global Atmospheric
Background Monitoring for Selected Environmental
Parameters (BAPMON DATA for 1978), Genf

Anschrift des Verfassers: Dr. Wilhelm Kuttler, Geographisches In-
stitut der Ruhr-Universität Bochum, Postfach 102148, 4630 Bochum 1.