



Umweltforschungsplan des
Bundesministeriums für Umwelt,
Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit

Forschungskennzahl FKZ 3714 64 2010
UBA-FB-00 [trägt die UBA-Bibliothek ein]

PINETI-3: Modellierung und Kartierung atmosphärischer Stoffeinträge von 2000 bis 2015 zur Bewertung der ökosystem-spezifischen Gefährdung von Biodiversität in Deutschland

von

Martijn Schaap, Carlijn Hendriks, Richard Kranenburg, Jeroen Kuenen, Arjo Segers
TNO, Utrecht

Angela Schlutow, Hans-Dieter Nagel, Anja Ritter
ÖKO-DATA, Strausberg

Sabine Banzhaf
Freie Universität Berlin, Berlin

TNO, Postfach 80015, 3508 TA Utrecht, Niederlande

Gesellschaft für Ökosystemanalyse und Umweltdatenmanagement mbH (ÖKO-DATA),
Hegermühlenstraße 58, 15344 Strausberg, Deutschland

Freie Universität Berlin, FB Geowissenschaften, Institut für Meteorologie, Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10, D-12165 Berlin, Germany

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Juli, 2018

Stand der Dokumentvorlage: 29.01.2016

Kurzbeschreibung

Die Biodiversität ist durch den Eintrag von Schad- und Nährstoffen in die Ökosysteme gefährdet. Innerhalb des PINETI-3 Projektes wurden daher die atmosphärischen Einträge dieser Schad- und Nährstoffe für Deutschland für eine Zeitreihe von 2000 bis 2015 ermittelt. Die ermittelten mittleren Stickstoff-Gesamtdositionsflüsse über Deutschland ist von etwas mehr als 1300 eq ha⁻¹ a⁻¹ im Jahr 2000 auf etwas über 1050 eq ha⁻¹ a⁻¹ im Jahr 2015 zurückgegangen. Den größten Anteil an dieser Abnahme hat NO_y mit einem Rückgang von mehr als 200 eq ha⁻¹ a⁻¹ über den Gesamtzeitraum. Für die sogenannte Hintergrunddeposition, die in Genehmigungsverfahren angewendet wird, stehen nun neben Einjahreswerten auch Dreijahresmittelwerte zur Verfügung. Es wurden flächendeckende Karten für die unterschiedlichen Landnutzungsklassen erstellt. Die Karten zeigen, dass die Variabilität der Deposition über Deutschland signifikant ist. Die höchsten Einträge sind in Waldbeständen in oder in der Nähe von Regionen mit intensiver Landwirtschaft und Industrie zu finden. Zur Bewertung der Risiken, denen naturnahe Ökosysteme durch den Eintrag von Luftschadstoffen ausgesetzt sind, wurde in diesem Vorhaben der Critical-Load-Ansatz verwendet. Critical Loads für versauernde Schwefel- und Stickstoffeinträge sowie für die eutrophierende Stickstoffbelastung wurden aus der Berichterstattung 2017 an das ICP Modelling & Mapping übernommen. Die Berechnung der Überschreitung bzw. Einhaltung dieser Belastungsgrenzen (Exceedance) erfolgte entsprechend des 2017 aktualisierten Mapping Manual und wurden als Jahreswerte kartiert sowie im zeitlichen Trend dargestellt. Dabei wurden dem vorhandenen Ökosystem die diesem Landnutzungstyp entsprechenden Depositionswerte zugeordnet. Beim Schutz vor Versauerung zeigen die Maßnahmen zur Luftreinhaltung große Wirkung. So verminderte sich der Anteil an Ökosystemen, die von Überschreitungen des Critical Load für Säureinträge betroffen sind, von knapp 60 Prozent im Jahr 2000 auf ca. 30 Prozent im Jahr 2015. Deutlich geringere Entlastungen gab es beim Schutz vor Eutrophierung, wo auch im Jahr 2015 noch etwa 70 Prozent aller Ökosysteme durch Überschreitung der zulässigen Stickstoffeinträge gefährdet bleiben.

Abstract

Biodiversity in Europe is strongly affected by the deposition of nitrogen and potential acid on terrestrial ecosystems. We present new quantitative estimates of the deposition of atmospheric nitrogen and sulfur compounds as well as base cations to ecosystems across Germany for the period 2000 till 2015. On average, the nitrogen deposition in Germany has decrease from above 1300 eq ha⁻¹ yr⁻¹ in 2000 to values slightly above 1050 eq ha⁻¹ yr⁻¹ during 2015. The largest part of the change is explained by a decrease in oxidized nitrogen deposition with more than 200 eq ha⁻¹ yr⁻¹. For the deposition calculation, the result of which serves as the basis for political decisions, the average of the past three-year period is now provided in addition to a one-year value, since the results of individual years can be distorted by periods with very low or high precipitation amounts. Separate maps are available for the major land use classes. These maps show considerable variability across the German territory with highest deposition on forest ecosystems in or near the main agricultural and industrial areas. To evaluate the associated risks for ecosystems the critical load exceedances were quantified. Critical loads for acidifying sulfur and nitrogen inputs were taken from the 2017 reporting to the ICP Modelling & Mapping. The calculation of the exceeding of these load limits was done according to the 2017 updated Mapping Manual. Critical load Exceedances are mapped as annual values and displayed in a seasonal trend. To check compliance with ecological limits, depositions from 2000 to 2015 were evaluated for the whole of Germany. In the case of protection against acidification, the measures for air pollution control have great effects. Therefore, the share of ecosystems affected by exceedances of the critical load for acid inputs declined from just under 60 percent in 2000 to around 30 percent in 2015. Significantly lower relief was achieved in the protection against eutrophication, where in 2015 about 70 percent of all ecosystems still remain at risk from exceeding the permissible nitrogen inputs.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	6
Tabellenverzeichnis	11
Abkürzungsverzeichnis	13
Zusammenfassung	16
Summary	29
1 Einleitung	38
1.1 Hintergrund	38
1.2 Eintragspfade	38
1.3 Motivation	39
1.4 Zielstellung	40
2 Methoden zur Kartierung der atmosphärischen Deposition	41
2.1 Überblick	41
2.2 Chemietransportmodellierung	41
2.2.1 Emissionsdaten für Deutschland	42
2.2.2 Emissionsdaten für Europa	43
2.2.3 Integration der Emissionsdaten in die Modellierung	44
2.2.4 Modellierung der trockenen Deposition in LOTOS-EUROS	46
2.2.4.1 Modellierung landnutzungsspezifischer Datensätze	47
2.3 Ermittlung der nassen Deposition	49
2.3.1 Measurement data	49
2.3.2 Qualitätsbewertung und Qualitätssicherung	51
2.3.3 Niederschlagsfelder	56
2.4 Ermittlung der okkulten Deposition	59
2.5 Ermittlung der trockenen Deposition (BC)	62
2.6 Gesamtdeposition	62
3 Atmosphärischen Deposition zwischen 2000 und 2015	63
3.1 Zeitserie	63
3.2 Jahresspezifische Karten	63
3.3 Neue Depositionswerte für die Jahre 2013 bis 2015	69
4 Erklärung der Unterschiede in den Ergebnissen im Vergleich zum Vorgängerprojekt PINETI-2	77
4.1 LOTOS-EUROS v2.1	77
4.1.1 Änderungen des Modells	77
4.1.2 Effekt auf die Modellergebnisse	79
4.2 Emissionsinventar	82

4.2.1	Änderungen im Emissionskataster und Zeitliche Variabilität	82
4.2.2	Sensitivität der Modellierung.....	85
4.3	Gesamteffekt für die LOTOS-EUROS-Modellierung.....	88
4.4	Gesamteffekt für die PINETI-Kartierung	91
5	Qualitätssicherung der Depositionskartierung.....	92
5.1	Chemietransportmodellierung	92
5.1.1	Luftkonzentrationen.....	92
5.1.2	Nasse Deposition.....	98
5.1.3	Mögliche Schritte zur Verbesserung der Modellierung	100
5.2	Vergleich mit der Kronenraumbilanz.....	102
5.3	Vergleich mit Dänemark und den Niederlanden	105
5.4	Vergleich mit der Literatur und vorangegangenen Studien	106
6	Bewertung der Einträge von versauernden und eutrophierenden Luftschadstoffen in terrestrische Ökosysteme	109
6.1	Das Critical Load Konzept	109
6.1.1	Critical Load zum Schutz vor Versauerung.....	110
6.1.2	Critical Load zum Schutz vor Eutrophierung.....	114
6.2	Bewertung der Deposition von Luftschadstoffen im Vergleich zu den Critical Loads, Critical Load Exceedance	116
6.2.1	Methodischer Ansatz zur Berechnung der Exceedance.....	116
6.2.2	Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015	117
6.2.3	Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015.....	120
6.2.4	Abschätzung der Minderungserfordernisse für Stickstoffeinträge.....	122
6.2.5	Critical Load Überschreitung als Indikator für Maßnahmen zur Luftreinhaltung.....	126
6.2.5.1	Critical Load Überschreitungen im mehrjährigen Mittel	127
6.2.5.2	Critical Load Überschreitungen in Naturschutzgebieten	134
7	Schlussfolgerungen.....	138
8	Quellenverzeichnis.....	142

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Zeitreihe mit der durchschnittlichen Deposition von Stickstoff und Schwefel über Deutschland	18
Abbildung 2:	Schätzung der Stickstoff-Gesamtdeposition über Deutschland in früheren Forschungsarbeiten sowie in dieser Studie	21
Abbildung 3:	Überschreitung der Critical Load-Funktion durch Säureeinträge im Jahr 2015	24
Abbildung 4:	Überschreitung der Critical Load für eutrophierenden Stickstoff im Jahr 2015	25
Abbildung 5:	Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen	27
Abbildung 6:	Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff	28
Abbildung 7:	Exceedance of Critical Load by Acidification for 2015	34
Abbildung 8:	Exceedance of Critical Load by Eutrophication for 2015	35
Abbildung 9:	Exceedance of Critical Load by Acidification in the years 2000 to 2015 averaged over three years of sulphur and nitrogen compound input rates	36
Abbildung 10:	Exceedance of Critical Load for Eutrophication in the years 2000 to 2015 averaged over three years of nitrogen input rates	37
Abbildung 11:	Vergleich der in sechs verschiedenen Vorhaben berechneten mittleren Stickstoffdepositionsflüsse für die Gesamtfläche Deutschlands	40
Abbildung 12:	Schematische Skizze des Chemietransportmodells LOTOS-EUROS....	45
Abbildung 13:	Teilmengen der Ammoniumkonzentrationswerte in den Daten aus den nationalen und regionalen Überwachungsnetzen, die aus gegebenem Grund zurückgewiesen wurden. Im unteren Diagramm sind jene Daten dargestellt, die für eine Nutzung im Kriging-Verfahren zugelassen werden können	54
Abbildung 14:	Gesamtzahl der Stationen und Gesamtzahl der gültigen Stationen (also der Stationen, die das Kriterium einer jährlichen Datenverfügbarkeit von 40 Prozent erfüllen) für den Betrachtungszeitraum 2000 bis 2015	55
Abbildung 15:	Jährliche Gesamtniederschlagshöhe im RSMS-Datensatz (oben links) und dem REGNIE-Datensatz (oben rechts) sowie deren absoluter (unten links) und relativer (unten rechts) Unterschied (REGNIE-RSMS) für das Jahr 2009	57
Abbildung 16:	Vergleich zwischen der jährlichen Gesamtniederschlagshöhe im RSMS- (links) und REGNIE-Datensatz (rechts) sowie der Gesamtniederschlagshöhe, die an den Beobachtungsstellen für die	

	nasse Deposition gemessen wurde, die 2009 für die Bestimmung der Gesamtdeposition in Deutschland zum Einsatz kamen.....	58
Abbildung 17:	Berechneter 5-Jahres-Durchschnittswert für den Nebelwasserdepositionsfluss auf Nadelwald	61
Abbildung 18:	Zeitreihe mit der durchschnittlichen Deposition von Stickstoff und Schwefel über Deutschland	64
Abbildung 19:	NH _x -Gesamtdeposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015.....	65
Abbildung 20:	NO _y -Gesamtdeposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015.....	66
Abbildung 21:	Stickstoff-Gesamtdeposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015	67
Abbildung 22:	Schwefel-Gesamtdeposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015	68
Abbildung 23:	Deposition von Schwefel, NO _y , NH _x und Gesamt N über Deutschland, 2013-2015.....	69
Abbildung 24:	Gesamtdeposition (links) von basischen Kationen sowie der nicht aus Seesalz stammende Anteil (rechts) für die Jahre 2013 bis 2015. Für Natrium (unten) wurde der der nicht aus Seesalz stammende Anteil nicht berechnet	70
Abbildung 25:	Anteil der NO _y - (links) und NH _x -Deposition (rechts) an der Stickstoff-Gesamtdeposition, 2013 bis 2015	71
Abbildung 26:	Verhältnis von trockener Deposition zu Gesamtdeposition für NH _x (oben), NO _y (Mitte) und Stickstoff (unten) bei Nadelwald (links) und Gras (rechts)	74
Abbildung 27:	Verhältnis von NH _x zur Gesamtdeposition bei Nadelwald (links) und Gras (rechts)	75
Abbildung 28:	Vergleich der gemessenen (schwarze Punkte) und modellierten (alt-blau; neu-grün) Tagesgänge von NO ₂ für das Standort Grebenau in Hessen. Für alle Variablen sind auch die Standardabweichungen um den Mittelwert angegeben.	79
Abbildung 29:	Relative Veränderung der trockenen (oben), nassen (Mitte) und Gesamtdeposition (unten) für NO _y (links) und NH _x (rechts) im LOTOS-EUROS-Modell v2.1 von PINETI-3 und LOTOS-EUROS v1.1.10 in PINETI-2 am Beispiel des Jahres 2009	81
Abbildung 30:	Relative Veränderung der Gesamtdeposition für NH _x (oben) und NO _y (unten) im LOTOS-EUROS-Modell v2.1 von PINETI-3 und LOTOS-EUROS v1.10 in PINETI-2 für Nadelwald (links) und Ackerland (rechts) am Beispiel des Jahres 2009	82
Abbildung 31:	Emissionskarten für Deutschland (GRETA) mit NO _x - (oben) und NH ₃ -Werten (unten).....	84
Abbildung 32:	Zeitliche Variabilität von Ammoniakemissionen im LOTOS-EUROS-Modell.....	85

Abbildung 33:	Gemessener und modellierter NH_4 -Fluss mit dem Effekt veränderter NH_3 - Emissionsvariabilität in LOTOS-EUROS für die Ergebnisse der Modellrechnungen	86
Abbildung 34:	Relative Veränderung der trockenen (oben), nassen (Mitte) und Gesamtdeposition (unten) von NO_y (links) und NH_x (rechts) im LOTOS-EUROS-Modell bei Verwendung der GRETA- beziehungsweise der PAREST-Emissionen	87
Abbildung 35:	Unterschied zwischen den Ergebnissen der PINETI-3- und der PINETI-2-Modellrechnung (ohne Einbeziehung der Messwerte der nassen Deposition) für NO_y (links) und NH_x (rechts) bei Nadelwald (oben), Ackerland (Mitte) und der tatsächlichen Landnutzung in Deutschland	89
Abbildung 36:	Unterschied zwischen den endgültigen Ergebnissen nach PINETI-3 und PINETI-2 für NO_y (links) und NH_x (rechts) bei Nadelwald (oben), Ackerland (Mitte) und der tatsächlichen Landnutzung in Deutschland (unter Einbeziehung der Messwerte der nassen Deposition)	90
Abbildung 37:	Vergleich der LOTOS-EUROS-Ergebnisse im PINETI-3-Verfahren mit den Luftkonzentrationsmesswerten für NO_2 und SO_2	93
Abbildung 38:	Vergleich der LOTOS-EUROS-Ergebnisse im PINETI-3-Verfahren mit den Luftkonzentrationsmesswerten für NH_3	94
Abbildung 39:	Vergleich der modellierten und gemessenen Ammoniakkonzentrationen (Monatswerte) für alle verfügbaren Standorte innerhalb Deutschland zwischen 2002 und 2015. Oben: Vergleich für PINETI-2 Methodik, Unten: Vergleich für PINETI-3 Modellierung	95
Abbildung 40:	Vergleich der gemessenen NH_4 -, NO_3 - und SO_4 -Konzentrationen mit modellierten Konzentrationswerten aus dem LOTOS-EUROS-Modellrechenverfahren nach PINETI-3	96
Abbildung 41:	Vergleich der EMEP-Messungen für die nasse Deposition von Sulfat, Nitrat und Ammonium mit den Ergebnissen der LOTOS-EUROS-Modellrechnung	97
Abbildung 42:	Relativer Unterschied zwischen den gekrigten Feldern (also inklusive Messdaten) und dem dazugehörigen Modelllauf (ohne Messdaten) der nassen deposition für NH_x (oben) und NO_y (unten) innerhalb PINETI-2 (links) und PINETI-3 (rechts).....	99
Abbildung 43:	Vergleich der KRB-Ergebnisse (Methode de Vries, 2001) mit den PINETI-3-Ergebnissen. Oben: Durchschnittswert über den Zeitraum 2000 bis 2015 für die einzelnen Stationen; Unten: Ein Datenpunkt pro Station und Jahr	104
Abbildung 44:	Stickstoffgesamtdeposition über den Niederlanden gemäß der niederländischen GDN-Berechnung	105
Abbildung 45:	Geschätzte Stickstoff-Gesamtdeposition (in kg N/ha) über Dänemark für das Jahr 2015 auf der Grundlage von Berechnungen mit dem DEHM-Modell sowie von Messungen (links, Ellermann et al., 2016).	

	Rechts: Stickstoff-Gesamtdeposition nach PINETI-3 für das Jahr 2015.	106
Abbildung 46:	Schätzung der Stickstoff-Gesamtdeposition über Deutschland in früheren Forschungsarbeiten sowie in dieser Studie.	107
Abbildung 47:	Links: EMEP-Deposition von NO_y (oben) und NH_x (unten) in $\text{mg N/m}^2/\text{a}$ (Fagerli et al., 2017). Rechts: PINETI-3-Deposition in derselben Einheit und Farbskala.	108
Abbildung 48:	Critical Load für Versauerung in Schwefeleinheiten, CL_{maxS}	112
Abbildung 49:	Critical Load für Versauerung in Stickstoffeinheiten, CL_{maxN}	113
Abbildung 50:	Critical Load für eutrophierenden Stickstoff, CL_{nutN}	115
Abbildung 51:	Critical Load-Funktion sowie die beispielhafte Lage der Depositionspunkte in unterschiedlichen Regionen zur Bestimmung der Critical Load-Überschreitung.....	116
Abbildung 52:	Überschreitung der Critical Load-Funktion durch Säureeinträge im Jahr 2015	118
Abbildung 53:	Überschreitung der Critical Load-Funktion durch Säureeinträge in den Jahren 2000 bis 2015	119
Abbildung 54:	Überschreitung der Critical Load für eutrophierenden Stickstoff im Jahr 2015	121
Abbildung 55:	Überschreitung der Critical Load für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015	122
Abbildung 56:	Stickstoffeinträge auf Flächen mit Critical Loads im Jahr 2015	123
Abbildung 57:	Stickstoffeinträge verteilt auf Landnutzungsklassen (DE_N_dep), auf Flächen mit Critical Loads (CL_N_dep) und auf die Landnutzungsklassen mit Critical Load Exceedance (Ex_N_dep) im Jahr 2015	124
Abbildung 58:	Überschreitung der Critical Load für Stickstoff in den Jahren 1980 bis 2030 (Maas and Grennfelt 2016).....	126
Abbildung 59:	Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen	129
Abbildung 60:	Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über fünf Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen	129
Abbildung 61:	Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff	130
Abbildung 62:	Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über fünf Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff	130

Abbildung 63:	Überschreitung der Critical Load für Versauerung mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen	133
Abbildung 64:	Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff	133
Abbildung 65:	Überschreitung der Critical Loads für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015 in FFH-Gebieten (SAC)	135
Abbildung 66:	Überschreitung der Critical Loads für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015 in Vogelschutzgebieten (SPA)	136
Abbildung 67:	Überschreitung der Critical Loads für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015 in unter nationalem Schutz stehenden Gebieten (NPA)	137

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Gesamtdeposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) für alle Spezies, Durchschnittswerte 2013 bis 2015.....	19
Tabelle 2:	Total deposition (eq ha ⁻¹ a ⁻¹) for all species and each land use class for 2013 bis 2015.....	31
Tabelle 3:	Unterschiede in NH ₃ -Emissionen (kT) für zwei ausgewählte landwirtschaftliche Quellgruppen im Vergleich zwischen den Berichterstattungen 2016 (UBA, 2016) und 2014 (UBA, 2014).....	43
Tabelle 4:	Monitoringmessnetze, deren Depositionsdaten verwendet wurden	50
Tabelle 5:	Durchschnittliches Verhältnis zwischen gemessenen Flüssen von Wet-Only- und Bulk-sammler (Gauger et al., 2008).....	51
Tabelle 6:	Durchschnittliche Anreicherungsfaktoren pro Spezies	61
Tabelle 7:	Effektive Depositionsgeschwindigkeit von Gasen und Partikeln in LOTOS-EUROS (cm/s), Durchschnittswerte 2013 bis 2015.....	72
Tabelle 8:	Trockene Deposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) für alle Spezies, Durchschnittswerte 2013 bis 2015. Nss = nicht von Seesalz stammender Anteil.....	72
Tabelle 9:	Gesamtdeposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) für alle Spezies, Durchschnittswerte 2013 bis 2015. Nss = nicht von Seesalz stammender Anteil.....	73
Tabelle 10	Vergleich der mittleren Landnutzungsspezifische Flüsse und der mittleren Flüsse berechnet anhand der realen Landnutzungsverteilung für 2013-2105 [eq ha ⁻¹ a ⁻¹]	76
Tabelle 11	Rauhheitslänge (z ₀) und Parameter zur Bestimmung des Blattflächenindex (LAI) für unterschiedliche Landnutzungsklassen ...	77
Tabelle 12:	Emissionen (in Kilotonnen) für Deutschland im Jahr 2009 gemäß den verwendeten Emissionen der Berichterstattung 2014 bzw. 2017	83
Tabelle 13:	Mit LOTOS-EUROS modellierte Deposition (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) in Deutschland für das PINETI-2-Projekt und das PINETI-3-Modellrechenverfahren mit den PINETI-2- bzw. PINETI-3-Emissionen (ohne Einbeziehung der Messwerte der nassen Deposition).....	88
Tabelle 14:	Vergleich der Depositionsschätzungen von MAPESI, PINETI-2 und PINETI-3 N mit Messwerten.....	108
Tabelle 15:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Versauerung	119
Tabelle 16:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung	120
Tabelle 17:	Anteil (%) der Stickstoffeinträge nach Landnutzungsklassen und auf Critical Load Flächen	122
Tabelle 18:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Versauerung unter Verwendung der gemittelten Einträge über drei Jahre	131

Tabelle 19:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in eq ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Versauerung unter Verwendung der gemittelten Einträge über fünf Jahre	131
Tabelle 20:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung unter Verwendung der gemittelten Einträge über drei Jahre	132
Tabelle 21:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung unter Verwendung der gemittelten Einträge über fünf Jahre	132
Tabelle 22:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung in FFH-Gebieten (SAC).....	136
Tabelle 23:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung in Vogelschutzgebieten (SPA)	137
Tabelle 24:	Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha ⁻¹ a ⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung in unter nationalem Schutz stehenden Gebieten (NPA).....	138

Abkürzungsverzeichnis

a	Year, Jahr
ara	Arable – Ackerland Landnutzungs-klasse
BC	Basische Kationen
Ca²⁺	Kalzium
Cl⁻	Chlorid
CLC	Corine Land Cover
CBD	Übereinkommen über die biologische Vielfalt (Convention on Biological Diversity, CBD)
CL	Critical Load
CLC	CORINE Land Cover, Bodennutzung nach dem europäischen CORINE Projekt
CLRTAP	Übereinkommen über weiträumige grenzüberschreitende Luftverunreinigung von 1979 der UNECE (Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, CLRTAP)
CORINE	Karte der Bodenbedeckung, CORINE Land Cover 2012 (CLC 2012), <u>hochaufgelöste Version LBM-DE2012 © BKG/Geobasis-DE</u>
cnf	Coniferous – Nadelwald Landnutzungs-klasse
crp	Crops – Dauerkulturen Landnutzungs-klasse
CTM	Chemie-Transport-Model
dec	Deciduous – Laubwald Landnutzungs-klasse
DEPAC	Deposition of Acidifying Compounds,
DWD	Deutscher Wetterdienst
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP), siehe online im Internet: URL: http://www.emep.int
eq	Versauerungsequivalent
EUNIS	Europäische Klassifikation der Ökosysteme, European Nature Information System (EUNIS), siehe online im Internet: URL: http://eunis.eea.europa.eu
FFH	Schutzgebiete nach der Flora, Fauna, Habitat Direktive, im englischen Sprachraum Special Areas of Conservation (SAC)
FKZ	Forschungskennzahl des UBA
GIS	Geografisches Informationssystem
grs	Grasland Landnutzungs-klasse
ha	Hektar
HNO₃	Salpetersäure
IB	ion balance
K⁺	Kalium

KRB	Kronenraumbilanz
LRT	Lebensraumtyp
MAPESI	Modelling Air Pollutants and Ecosystem Impact (Forschungsprojekt)
Mg²⁺	Magnesium
mix	Mixed forest – Mischwald Landnutzungs-kategorie
N	Stickstoff
Na⁺	Natrium
NatPark	Nationalpark
Natura 2000	nach der europäischen Schutzverordnung ausgewiesene Gebiete
NFC	National Focal Center, Nationale Partner- und Koordinierungsstellen für das ICP Modelling & Mapping
NH₃	Ammoniak
NH₄	Ammonium
NH_x	Reduzierte Stickstoffkomponenten
NO₂	Stickstoffdioxid
NO₃	Nitrat
NO_y	Oxidierete Stickstoffkomponenten
nss	Non sea-salt, seesalzkorrigiert
oth	other - Andere Landnutzungs-kategorien
PAREST	Particle Reduction Strategies (Forschungsprojekt)
PINETI	Pollutant Input and Ecosystem Impact, UBA-Projektreihe
QAQC	Quality Assessment and Quality Control
RIVM	Dutch Institute for Public Health and Environment
RMSE	root mean squared error
S	Schwefel
SAC	Schutzgebiete nach der Flora, Fauna, Habitat Direktive, im englischen Sprachraum Special Areas of Conservation (SAC)
sem	Semi-natural – seminaturliche Ökosysteme Landnutzungs-kategorie
SIA	Sekundär Anorganisches Aerosol (Secondary Inorganic Aerosol)
SMB	Einfache Massenbilanzmethode (Simple Mass Balance)
SO₂	Schwefeldioxid
SO₄	Sulfat
SO_x	Oxidierete Schwefelverbindungen
SPA	Vogelschutzgebiete, im englischen Sprachraum Special Protection Areas (SPA)
urb	Urban – bebaute Gebiete Landnutzungs-kategorie
UNFCCC	Klimarahmenkonvention der vereinten Nationen

wat	Water – Gewässer Landnutzungs-kategorie
------------	---

Zusammenfassung

Der Eintrag von Luftschadstoffen in Ökosysteme ist einer der wesentlichen Gründe für die Gefährdung der Artenvielfalt in Deutschland. Vor allem der erhöhte Eintrag von reaktivem Stickstoff kann zur Destabilisierung von Ökosystemen und einer Verdrängung empfindlicher Arten führen. Die letzte Analyse innerhalb des PINETI-2-Projekts zeigt, dass im Jahr 2009 noch immer fast 70 Prozent der Ökosysteme in Deutschland durch Stickstoffdeposition gefährdet waren (Schaap et al., 2017). Es ist daher zu erwarten, dass die für 2020 gesteckten Ziele bei Weitem nicht erreicht werden. International wurden mehrere Richtlinien zur Minderung aufgestellt, wie zum Beispiel die Thematische Strategie der EU zur Luftreinhaltung (Clean Air for Europe - CAFE), die EU-NEC-Richtlinie und das Göteborg-Protokoll der UNECE. Diese Ziele sind ehrgeizig und erfordern erhebliche Investitionen in Minderungsmaßnahmen.

In Übereinstimmung mit den Zielen der nationalen und internationalen Luftreinhaltungspolitik und zur Unterstützung des Ländervollzugs immissionsschutzrechtlicher und naturschutzrechtlicher Regularien sind atmosphärische Einträge versauernder und eutrophierender Luftschadstoffe zu modellieren, zu kartieren und im Hinblick auf die Gefährdung der Biodiversität durch Vergleich mit kritischen Belastungsschwellen zu bewerten. Flächendeckende und räumlich detaillierte Daten der atmosphärischen Stoffeinträge in Deutschland wurden in einer Reihe von Projekten für das Umweltbundesamt erhoben. Die Ergebnisse der ermittelten mittleren Depositionsfracht für Deutschland verschiedener Projekte sind in Abbildung 3 dargestellt. Die Zeitreihe weist allerdings große Sprünge zwischen den einzelnen Jahren auf. Die Ursache liegt nicht am rückläufigen Trend der Emissionen, sondern darin, dass die Zeitreihe nur relativ kurze Zeiträume methodisch homogen abdeckt. Die Sprünge erklären sich aus Änderungen in der methodischen Vorgehensweise und den Eingangsdaten. Eine konsistente und aktuelle Zeitreihe ohne größere Lücken wurde daher zu Beginn des Projekts dringend benötigt.

Dieses Vorhaben hat daher zum Ziel, die bisher verwendete Modellkombination, bestehend aus geostatistischen Verfahren, dem von TNO entwickelten LOTOS-EUROS-Modell und den Critical-Load-Datenbanken der ÖKO-DATA Strausberg, im Hinblick auf bestehende Forschungsfragen weiterzuentwickeln und zur Erstellung einer konsistenten Zeitreihe der atmosphärischen Einträge von 2000 bis 2015 anzuwenden und die erzielten Ergebnisse für Politikberatung und Vollzug aufzubereiten.

Ermittlung der Depositionskarten

Der Eintrag atmosphärischer Verbindungen in Ökosysteme erfolgt über drei Eintragspfade: die trockene Deposition, die nasse Deposition und die feuchte (oder okkulte) Deposition. Zur Ermittlung der Gesamtdosition werden die trockenen, nassen und feuchten Einträge von NH_x , NO_y , SO_x und die Einträge der basischen Kationen Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ und Na^+ berechnet und aufsummiert.

Für die Ermittlung des vollständigen Schad- und Nährstoffeintrags in Ökosysteme werden hierfür fünf Berechnungsschritte durchgeführt:

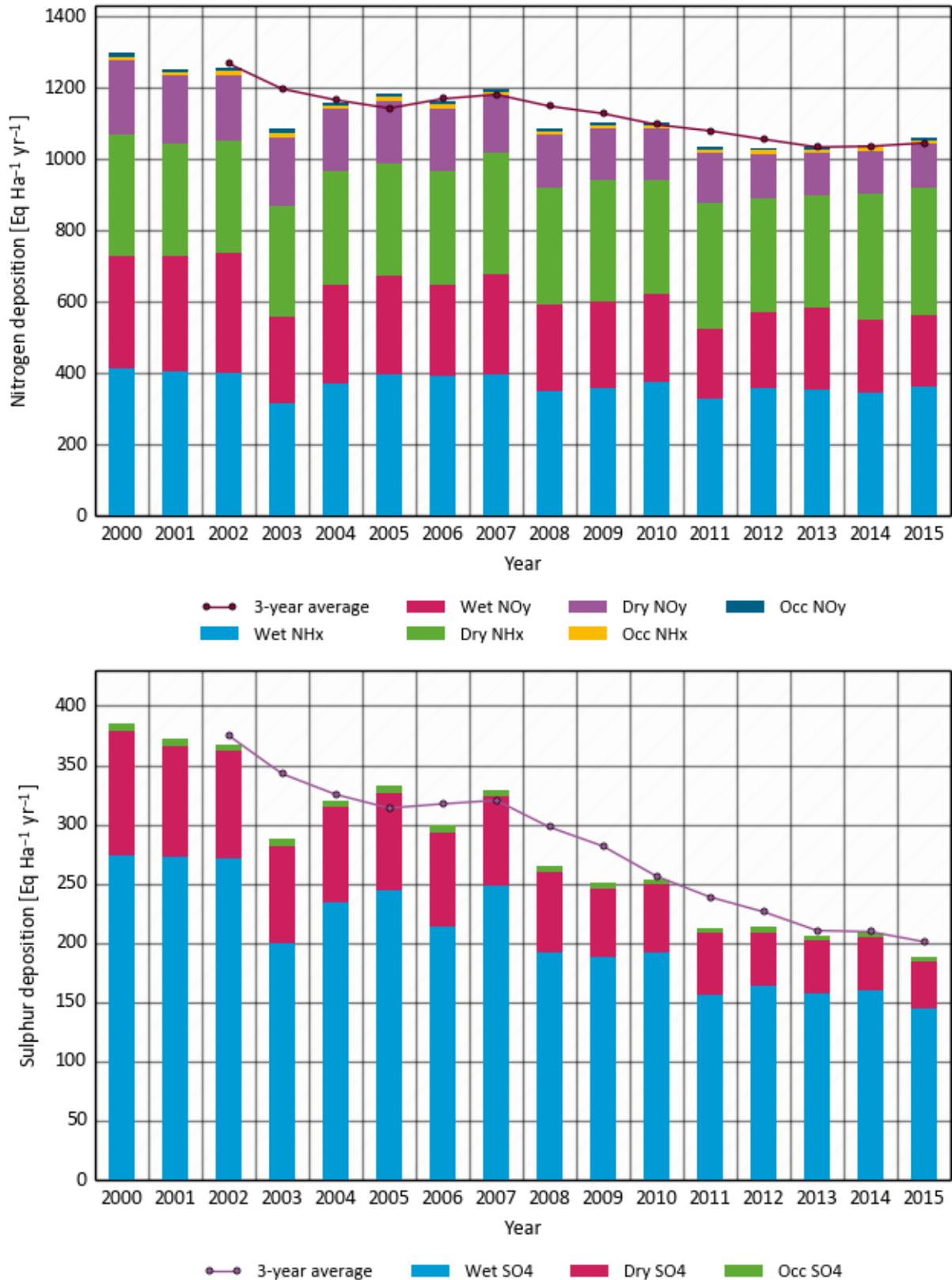
1. **Berechnung der Depositions- und Konzentrationsfelder auf Basis von Emissions- und Meteorologiedaten mit einem Chemie-Transport-Modell** (Ergebnis: trockene Deposition für N und S). Die trockene Deposition wird derzeit nur im Rahmen von Forschungsvorhaben messtechnisch erfasst; ein entsprechendes Messnetz gibt es nicht. Die flächendeckende Ermittlung der trockenen Deposition muss daher mit Chemie-Transport-Modellen erfolgen. Die Güte dieser Modelle kann u.a. durch Vergleiche mit Messungen, z.B. der Luftkonzentration, oder mit den Ergebnissen anderer Modelle untersucht werden.

In der vorliegenden Studie wurde das Modell LOTOS-EUROS verwendet, welches seit vielen Jahren zur Beantwortung von Fragestellungen u.a. im Hinblick auf den Stickstoff- und Schwefelkreislauf genutzt wird und seine Güte in verschiedenen internationalen Vergleichsstudien unter Beweis

stellte (e.g. Schaap et al., 2015; Im et al., 2015; Vautard et al., 2006). In der verwendeten Version beinhaltet LOTOS-EUROS auch die Parametrisierung eines Ammoniak-Kompensationspunktes und berücksichtigt damit den bi-direktionalen Austausch von Ammoniak, für das Ökosysteme sowohl Senke, als auch Quelle sein können. Das Modell wird in Deutschland mit einem Raster von etwa $7*7$ km² betrieben. Wesentliche Eingangsgrößen sind die meteorologischen Daten, die Landnutzung und die Emissionen aus der offiziellen Berichterstattung. Die räumliche Verteilung der aktuellen Emissionen erfolgte auf Basis des UBA-GRETA tools. Die meteorologischen Daten wurden vom European Centre of Medium Range Weather Forecasting (ECMWF) verwendet.

2. **Berechnung der nassen Depositionsfelder auf Basis von Messdaten.** Die flächendeckende Interpolation der gemessenen Konzentrationen im Niederschlag erfolgt durch geostatistische Verfahren, wobei für N und S zusätzlich die Informationen über die räumliche Verteilung aus dem Chemie-Transport-Modell genutzt werden (Ergebnis: nasse Deposition).
3. **Verwendung eines heuristischen Ansatzes zur Abschätzung der Nebeldeposition.** Hierfür wird die Konzentration im Nebelwasser über empirische Faktoren aus der Konzentration im Niederschlag (vgl. Punkt 2) abgeleitet. Der Nebelbeitrag wird anschließend über berechnete Depositionsgeschwindigkeiten ermittelt (Ergebnis: feuchte Deposition).
4. **Verwendung eines scavenging ratio Ansatzes zur Berechnung der trockenen Deposition für die basischen Kationen.** In diesem Ansatz wird die Luftkonzentration mit empirischen Faktoren aus der Konzentration im Niederschlag abgeleitet. Die trockene Deposition wird anschließend über berechnete Depositionsgeschwindigkeiten ermittelt (Ergebnis: trockene Deposition für BC).
5. **Transformation der Ergebnisse der trockenen und feuchten Deposition auf das feiner aufgelöste $1*1$ km²-Raster und Addition aller Teilflüsse zur Gesamtdeposition mit einer räumlichen Auflösung von $1*1$ km²** (Ergebnis: Gesamtdeposition).

Abbildung 1: Zeitreihe mit der durchschnittlichen Deposition von Stickstoff und Schwefel über Deutschland



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Die Stickstoff-Gesamtdeposition im Zeitraum 2000 bis 2015 über Deutschland ist, wie in Abbildung 1 dargestellt, von etwas mehr als 1300 eq ha⁻¹ a⁻¹ im Jahr 2000 auf etwas über 1050 eq ha⁻¹ a⁻¹ im Jahr 2015 zurückgegangen. Den größten Anteil an dieser Abnahme hat NO_y mit einem Rückgang von mehr als 200 eq ha⁻¹ a⁻¹ über den Gesamtzeitraum, während sich die NH_x-Deposition um lediglich 25 eq ha⁻¹ a⁻¹ verringerte. Die NO_y-Deposition setzt sich über den gesamten Erfassungszeitraum hinweg aus zwei Drittel Nass- und einem Drittel Trockendeposition zusammen, während die Trockendeposition bei NH_x zwischen 43 und 50 Prozent beträgt.

Die ermittelte Gesamtdepositionen für die unterschiedlichen betrachteten Komponenten sowie die einzelnen Landnutzungsklassen sind gemittelt über Deutschland für 2013-2015 in Tabelle 1 gegeben. Die in Tabelle 1 dargestellte landnutzungsspezifische Mittelung erfolgte so, als ob Deutschland vollständig von einer der Klassen bedeckt wäre (theoretischer Fall). Eine reale Mittelung weicht davon ab und ist in Kapitel 3.3 dargestellt. Die Gesamtdeposition von N auf Nadelwald beträgt im Mittel über Deutschland 1304 eq ha⁻¹ a⁻¹ während die Gesamtdeposition von Schwefel (S_{nss}) im Mittel 238 eq ha⁻¹ a⁻¹ beträgt. Die Maxima der Stickstoff-Gesamtdeposition liegen im Nordwesten und Südosten des Landes, da diese Regionen landwirtschaftlich am intensivsten bewirtschaftet sind. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass die Depositionen von oxidiertem und reduziertem Stickstoff voneinander abweichende Verteilungen über Deutschland aufweisen. Oxidierter Stickstoff trägt in nicht landwirtschaftlich genutzten Regionen einen großen Beitrag zur Stickstoff-Gesamtdeposition bei und bedingt in Regionen wie zum Beispiel dem Schwarzwald über die Hälfte der Stickstoff-Gesamtdeposition. Die Schwefel-Gesamtdeposition weist die höchsten Werte im Ruhrgebiet auf. Sekundäre Maxima zeigen sich in den Mittelgebirgen. Die Einträge in Waldbestände sind etwa 25-50% höher als die in Wasserflächen, was durch die Rauigkeitslänge und höhere Niederschläge bedingt wird.

Die Basischen Kationen Natrium (Na⁺) und Magnesium (Mg⁺), deren Hauptquelle Seesalz ist, weisen Depositionsmaxima an der Nordseeküste auf. Die Verteilung der Deposition von Kalium weist ein eher anthropogen geprägtes Muster auf, mit maximalen Werten in Regionen mit den höchsten Niederschlägen. Kalzium stammt sowohl aus anthropogenen Quellen als auch aus Seesalz. Daher weist die Deposition von Kalzium sowohl in den Mittelgebirgen als auch in Küstenregionen Maxima auf.

Tabelle 1: Gesamtdeposition (in eq ha⁻¹ a⁻¹) für alle Spezies, Durchschnittswerte 2013 bis 2015.

Spezies	Ara	cnf	crp	dec	grs	mix	oth	sem	urb	wat
NHx	627	908	718	792	586	850	598	610	909	672
NOy	308	396	343	381	302	388	284	321	380	279
N	935	1304	1062	1173	888	1238	883	931	1289	951
SO4	181	238	207	231	196	235	171	219	196	203
SO4 _{nss}	152	199	177	199	167	199	142	171	167	174
Na	175	256	187	194	176	225	174	330	179	177
K	32	44	34	36	32	40	32	55	33	32
K _{nss}	29	40	30	32	29	36	28	49	29	29
Mg	59	89	63	67	59	78	59	115	61	60
Mg _{nss}	19	28	20	21	19	25	19	37	20	19
Ca	100	143	106	111	100	127	99	181	102	100
Ca _{nss}	92	132	98	103	93	118	91	168	95	93

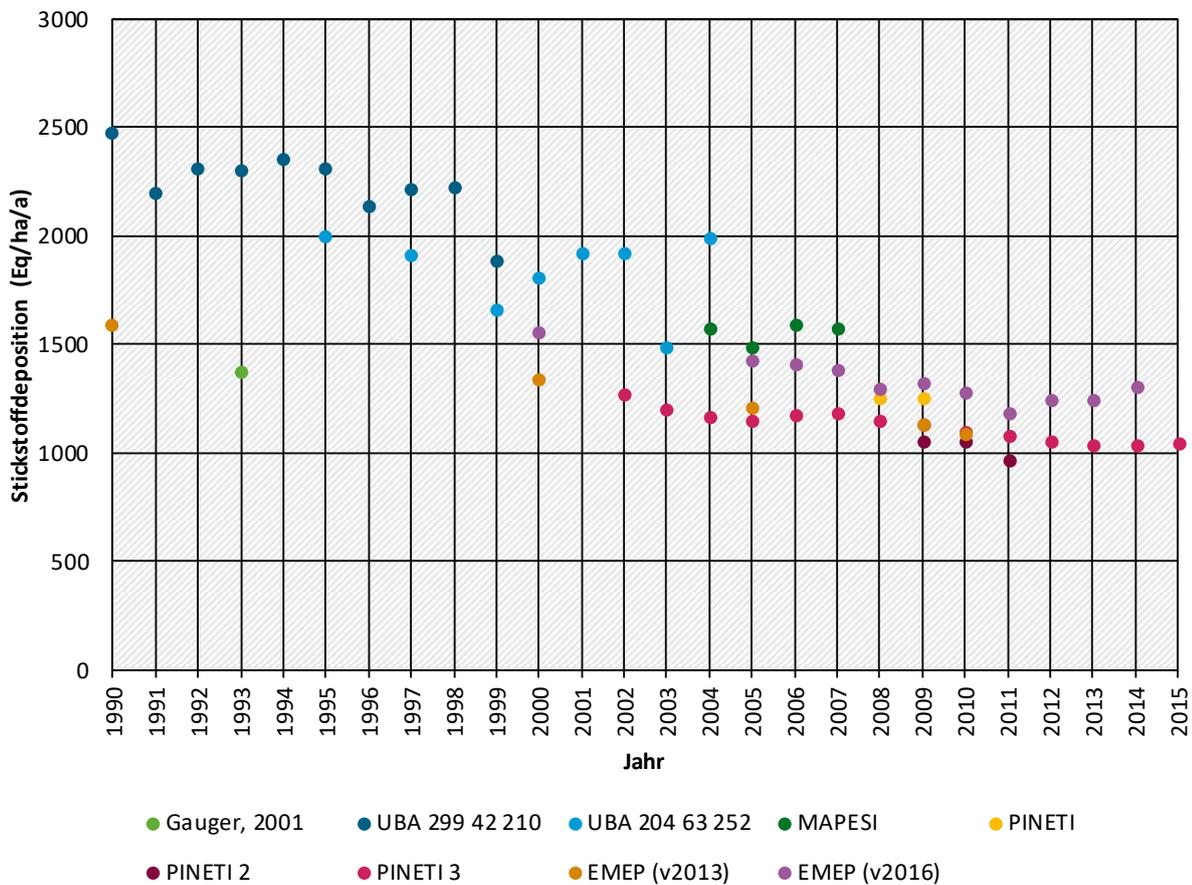
Zwischen dem für dieses Projekt verwendeten Modell LOTOS-EUROS v2.1 und dem für das PINETI-2-Projekt genutzten Modell LOTOS-EUROS v1.10 gibt es einige Unterschiede in der Betrachtung der Bewuchshöhe für Ackerland im Winter, der Berechnung der atmosphärischen Stabilität und der Auflösung der meteorologischen Daten. Zudem wurde in PINETI-3 für Deutschland anstelle des PAREST-Emissionsdatensatzes der GRETA-Emissionsdatensatz verwendet. Der Europäische Emissionsdatensatz wurde auf den neueren Stand des TNO-MACC-III-Datensatzes gebracht. Diese unterscheiden sich sowohl in Bezug auf die Gesamtemissionswerte als auch auf die geografische Verteilung.

Die Änderungen in der Modellierung hatten Effekte auf die modellierten Depositionen zur Folge, welche innerhalb des Projekts quantifiziert wurden. In jenen Regionen in der Nordhälfte Deutschlands, in denen viel Landwirtschaft betrieben wird, erhöht sich die modellierte NH_x -Deposition um 30 bis 50 Prozent, während die Deposition an einigen anderen Orten um 20 Prozent geringer ausfällt. Dies ist eine Folge der Veränderungen in den geografischen Emissionsmustern. Die Unterschiede in der Modellierung zwischen PINETI-2 und PINETI-3 werden durch die Einbeziehung der Messungen für die nasse Deposition teilweise ausgeglichen, die wesentlichen Muster haben jedoch Bestand. Im PINETI-3-Gesamtergebnis fallen die Depositionswerte für Nadelwälder höher aus als bei PINETI-2; davon ausgenommen sind örtlich begrenzte Flächen und die Grenzregion Hessen/Baden-Württemberg/Bayern. In Bezug auf NO_y sind die Unterschiede klein; in den Gebieten mit hoher NO_x -Emission kommt es jedoch zu einer stärkeren Deposition. Insgesamt ergibt sich dadurch ein Anstieg der NH_x -Deposition in der Nordosthälfte des Landes sowie im Süden, während die NH_x -Gesamtdeposition im Rest des Landes abnimmt. Die neuen Zahlen zeigen, dass sich der Kontrast zwischen den Landnutzungsklassen Nadelwald und Ackerland verstärkt hat.

In Bezug auf NO_2 und NH_3 ist deutlich, dass die neue Modellierung die Übereinstimmung mit der räumlichen und zeitlichen Variabilität in die Messzeitreihen deutlich gesteigert hat. Die modellierte Regenwasserkonzentration von Ammonium stimmt durch den Wechsel vom PINETI-2- zum PINETI-3-Rechenverfahren besser mit den Messwerten überein. Die Umstellung auf eine aktualisierte Grundlage für die Emissionsdaten hat hier einen großen Unterschied gemacht. Für den hier dargestellten Vergleich zu Kronenraumbilanzen wurden KRB-Daten des Thünen-Instituts für 94 Standorte in den Jahren 2000 bis 2015 verwendet. Aus dem Vergleich geht hervor, dass die PINETI-3-Daten im Großen und Ganzen gut mit den KRB-Daten übereinstimmen. Die räumliche Korrelation ist besser als im Vorgängerprojekt.

Schon vor dem PINETI-3-Projekt hat es eine Vielzahl anderer Forschungsvorhaben zur Bestimmung der Stickstoffdeposition über Deutschland gegeben. In Abbildung 2 wird die berechnete mittlere Stickstoff-Gesamtdeposition der betreffenden Jahre aus diesen Projekten dargestellt. Auch die im EMEP-Programm berechnete Stickstoff-Gesamtdeposition für Deutschland ist für eine Anzahl von Jahren angegeben. Aus dieser Grafik geht hervor, dass die PINETI-3-Ergebnisse über denen von PINETI-2 liegen, jedoch niedriger sind als die PINETI- und MAPESI-Ergebnisse. Die PINETI-3-Zeitreihe fügt sich sehr gut in die EMEP-Berechnungen aus dem Jahr 2013, unterschreitet jedoch die EMEP-Berechnung von 2016. Dieser Minderbefund im Vergleich zu EMEP lässt sich vor allem durch ein ungefähr 30 Prozent niedrige Deposition von NO_y erklären. In Bezug auf NH_x liegen die Werte des EMEP-Modells sehr nah an der mit PINETI-3 berechneten Deposition.

Abbildung 2: Schätzung der Stickstoff-Gesamtdeposition über Deutschland in früheren Forschungsarbeiten sowie in dieser Studie



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Überschreitung der kritischen ökologischen Belastungsgrenzen

Durch Inkrafttreten der Genfer Luftreinhaltekonvention soll einer Überschreitung der kritischen ökologischen Belastungsgrenzen, der Critical Loads, durch Einträge von Luftschadstoffen entgegengewirkt werden, indem alle technischen Möglichkeiten ausgeschöpft und negative Wirkungen der Luftschadstoffe vermieden werden. Die Einhaltung oder Unterschreitung solcher Critical Loads gibt nach heutigem Wissen Gewähr dafür, dass ein ausgewähltes Schutzgut, der ökologische Rezeptor, weder akut noch langfristig geschädigt wird. Die Definition von Critical Load lautet:

“A quantitative estimate of an exposure to one or more pollutants below which significant harmful effects on specified sensitive elements of the environment do not occur according to present knowledge” (Nilsson and Grennfelt 1988).

Neben der Genfer Luftreinhaltekonvention wurde eine Reihe weiterer Regelwerke erlassen, mit denen eine Minderung vor allem der schädlichen Wirkung von Eutrophierung und Versauerung der Ökosysteme in Europa erreicht werden soll. Auch innerhalb Deutschlands steigt die Bedeutung des Critical Load-Konzeptes, was unter anderem zur Formulierung der Deutschen Nachhaltigkeitsstrategie 2016 als Zielstellung bis zum Jahr 2030 führte: "Die ökologischen Belastungsgrenzen sind ein Maß für die Empfindlichkeit eines Ökosystems gegenüber dem Eintrag eines Schadstoffs. Liegen die Einträge von Luftschadstoffen über den Critical Loads, kann es langfristig zur Schädigung der Struktur und Funktion

von Ökosystemen kommen. Fast die Hälfte der Farn- und Blütenpflanzen, die in Deutschland in der Roten Liste aufgeführt sind, sind durch Nährstoffeinträge gefährdet. Bis zum Jahr 2030 soll der Flächenanteil mit erhöhtem Stickstoffeintrag um 35 Prozent gegenüber 2005 reduziert werden (Bundesregierung 2016).

Die Verwendung von Critical Load und die Kontrolle deren Einhaltung sind in Deutschland vielfältig auch Bestandteil der umweltbezogenen Genehmigungsplanung geworden (u.a. Umweltverträglichkeitsprüfung, FFH-Gutachten, Anlagengenehmigung nach TA-Luft). Zudem wird in zahlreichen Einzelgutachten zur Umweltverträglichkeit von Anlagenplanungen Critical Load als Bemessungsgrundlage für die Bewertung der betriebsbedingten Zusatzbelastungen verwendet. Critical Loads als ökologische Belastungsgrenzen sind damit fester Bestandteil der vorsorgenden Umweltpolitik in Deutschland geworden.

Die Grundlagen für die Modellierung von Critical Loads (CL) sind vom International Co-operative Programme on Modelling and Mapping of Critical Loads and Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends (ICP Modelling & Mapping) in einem Mapping Manual publiziert (UBA 2004 und CLRTAP 2016). Dabei wird unterschieden zwischen Critical Loads zum Schutz vor Versauerung und zum Schutz vor Eutrophierung. Zur Bestimmung der ökologischen Belastungsgrenzen wird der allgemeinen Definition der Critical Loads folgend für beide (Typen) ein Gleichgewichtsansatz verfolgt.

Die Belastungsgrenze für Versauerung ist abhängig von der Gültigkeit der Senkenprozesse aus der Massenbilanz und dem zur Verfügung stehenden Stickstoff in den Ökosystemen. Sie kann zum einen als maximal zulässige Deposition von Schwefelverbindungen ohne Stickstoff ($CL_{\max S}$) ermittelt oder aber als maximal zulässiger Stickstoffeintrag unter Beachtung des Mindestanspruchs an Stickstoff Ökosystemen ($CL_{\min N}$), der als Nährstoff zur Verfügung stehen muss und nicht unterschritten werden darf, formuliert werden.

Zur Bestimmung des Critical Loads für den eutrophierenden Stickstoffeintrag ins Ökosystem, als $CL_{\text{nut}}(N)$ oder $CL_{\text{eut}}(N)$ bezeichnet, wird die einfache Massenbilanzmethode (Simple Mass Balance, SMB) herangezogen. Diese setzt sich zusammen aus dem Stickstoff, der von Pflanzen aufgenommen (N_i), durch Denitrifikation in die Atmosphäre ausgegast (N_{de}) oder durch Immobilisierung im Humus akkumuliert (N_u) wird. Hinzu kommt der verbleibende Rest an deponiertem und mineralisiertem Stickstoff, der mit dem Niederschlag aus dem Bodenwasser in die tieferen Schichten und ins Grundwasser ausgewaschen wird (N_{ie}). Zum Schutz der terrestrischen wie aquatischen Ökosysteme muss dieser Austrag auf ein tolerierbares Maß begrenzt werden. Im Mapping Manual (CLRTAP 2016) sind daher kritische Konzentrationen für den Stickstoff in der Bodenlösung definiert.

Zur Überprüfung der Einhaltung ökologischer Belastungsgrenzen wurden Depositionen aus den Jahren 2000 bis 2015 für ganz Deutschland ausgewertet. Einträge von Luftschadstoffen, die den Critical Load überschreiten, werden als Critical Load Exceedance bezeichnet. Dabei wird zwischen der Bewertung von Säureeinträgen und der für eutrophierenden Stickstoff unterschieden.

Schwefel- und Stickstoffeinträge tragen beide zur Versauerung bei, haben jedoch keinen gemeinsamen Critical Load. Mittels Critical Load-Funktion (CLF) wird ein Ansatz zur Kontrolle der Einhaltung oder Überschreitung von ökologischen Belastungsgrenzen beschrieben. Die Funktion verdeutlicht, bei welchem Schadstoff und in welchem Umfang Maßnahmen zur Emissionsreduzierung getroffen werden müssen. Über die Eckpunkte $CL_{\max S}$, $CL_{\max N}$ und $CL_{\min N}$ wird ein Bereich definiert, in dem unterschiedliche Kombinationen von Schwefel- und Stickstoffeinträgen möglich und zulässig sind. Depositionswerte außerhalb der beschriebenen Fläche markieren eine Überschreitung der Critical Load (Exceedance). Für die Berechnung der Überschreitungsrates wurde festgelegt (CLRTAP 2015), dass die kürzeste Distanz zwischen dem Depositionspunkt und dem Schnittpunkt mit der äußeren Begrenzungslinie

nie der Critical Load-Funktion als Grundlage für die Berechnung dient. Der Schnittpunkt dieser kürzesten Verbindung des Depositionspunktes mit der Critical Load-Funktion ist der Zielpunkt für die Reduktion von Depositionen.

Die Einhaltung oder Überschreitung des Critical Loads wird als ein Indikator für die Belastung der Ökosysteme durch Luftschadstoffe gesehen. Critical Load-Überschreitungen (Exceedance) werden als Jahreswerte kartiert sowie im zeitlichen Trend dargestellt. Dabei werden dem vorhandenen Ökosystem (Rezeptor) die diesem Landnutzungstyp entsprechenden Depositionswerte zugeordnet.

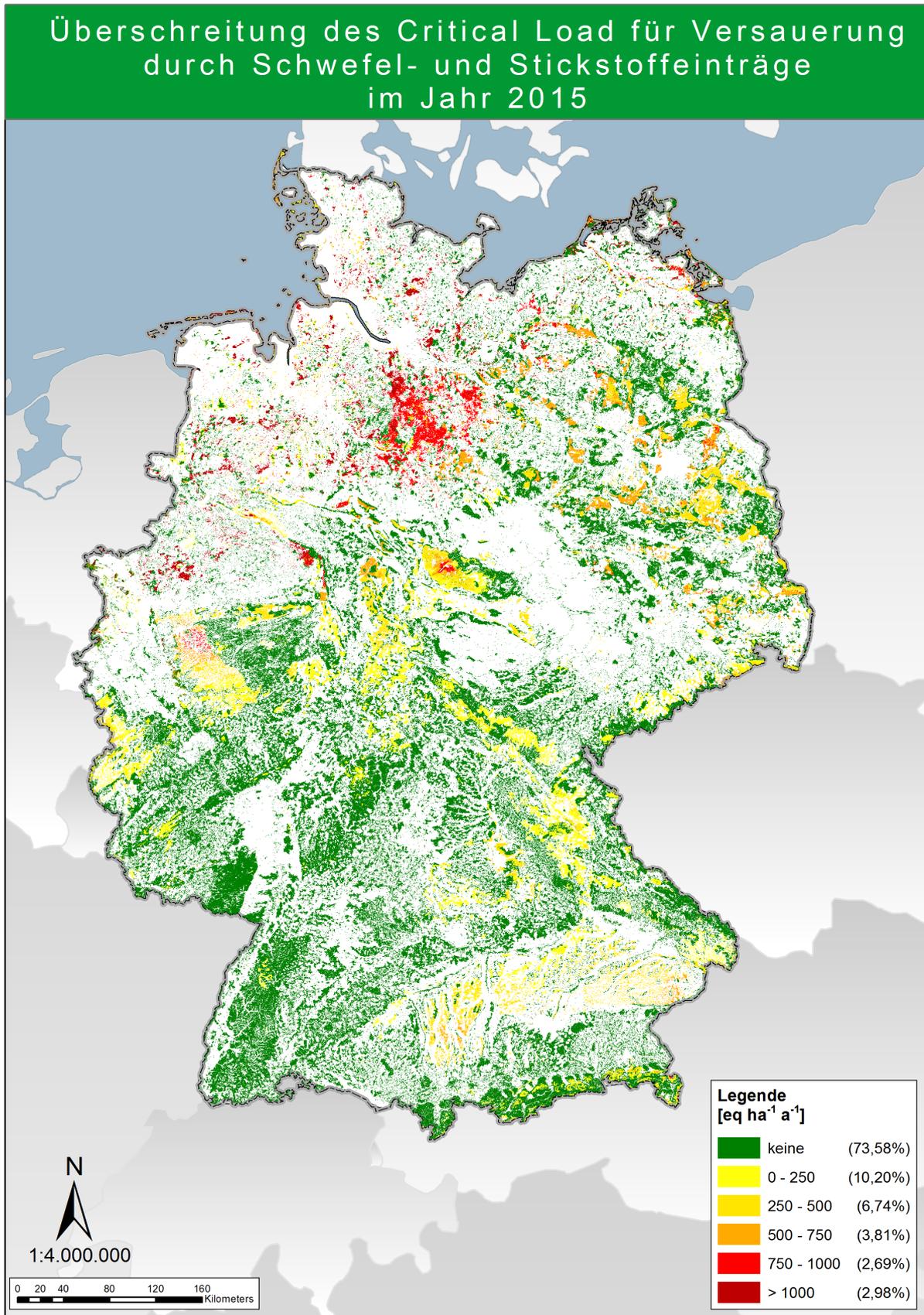
Noch Anfang der 90er Jahre des letzten Jahrhunderts litten in Deutschland über 85 % aller Ökosysteme unter zu hohen Säurebelastungen. Aufgrund der erfolgreichen nationalen wie internationalen Luftreinhaltepolitik hat sich dieses Bild umgekehrt, sodass aktuell (2015) bereits bei knapp 70 % der Ökosysteme die Critical Loads eingehalten sind. Bei den weiterhin von einer Critical Load-Überschreitung betroffenen 30 % der Rezeptorflächen ist jedoch zukünftig die Verminderung von Säureeinträgen geboten.

Im zeitlichen Verlauf der Jahre 2000 bis 2015 betrachtet ist der Anteil hoher ($750 - 1000 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) bis sehr hoher Säurebelastung ($> 1000 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) ständig gesunken, während gleichzeitig der Anteil von nicht oder gering belasteten (bis $250 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) stieg.

Die räumliche Verteilung der Überschreitung der Critical Loads durch Säureeinträge für das Jahr 2015 zeigt die Abbildung 3 auf der nachfolgenden Seite.

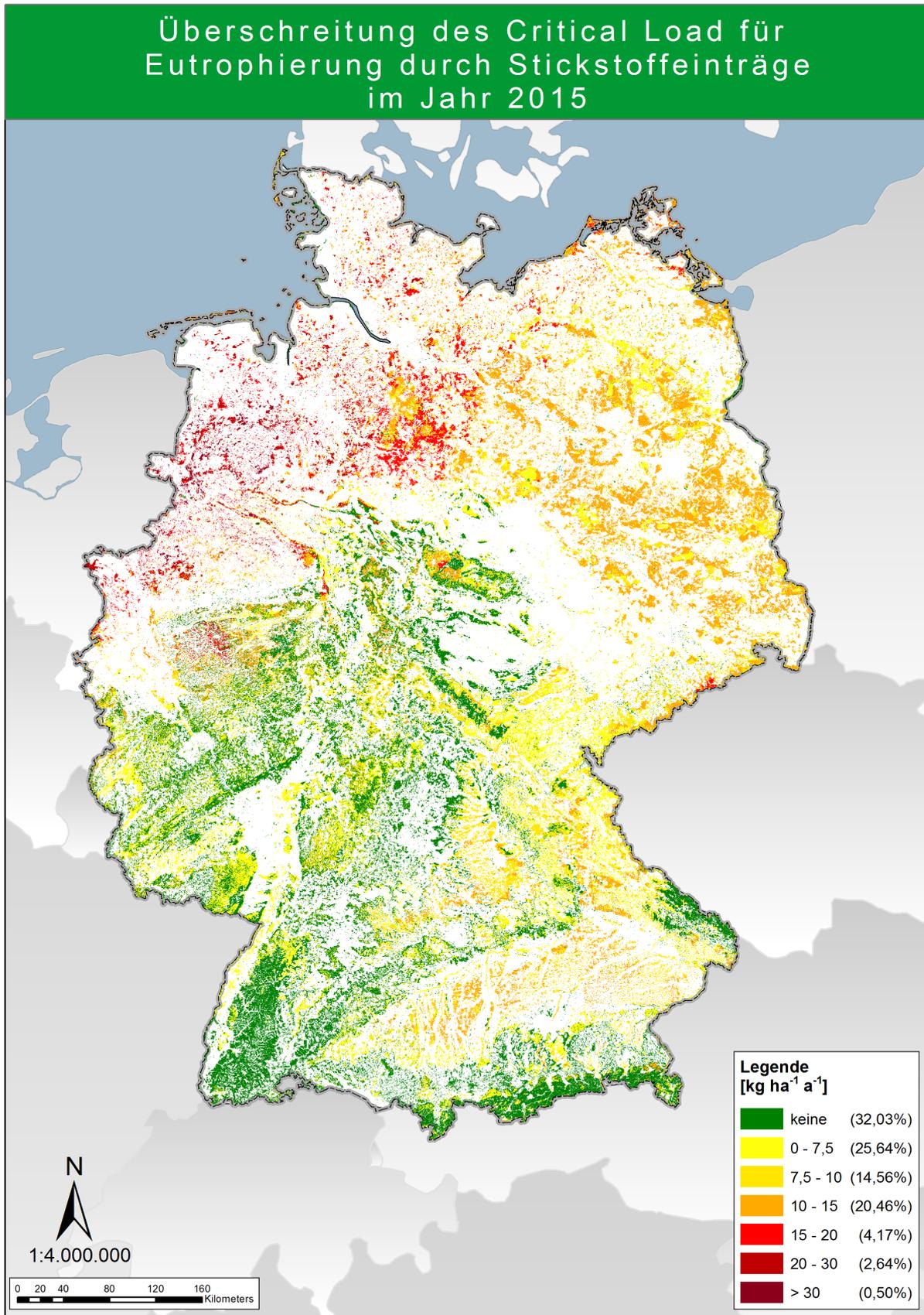
Die Ergebnisse dieses Projektes zeigen, dass der Zielstellung der Nationalen Strategie zur biologischen Vielfalt (NBS), nach der bis zum Jahr 2020 alle Critical Loads eingehalten werden sollen (BMU 2007 und BMUB 2015), nahe gekommen werden kann. Anzumerken ist jedoch auch, dass die in vergangenen Jahrzehnten eingetragene Säurefracht durchaus noch wirksam ist und eine Erholung der Ökosysteme von dieser Belastung längere Zeiträume erfordert. Auch zeichnet sich ab, dass zukünftig die Einbeziehung des Schutzgutes Biodiversität in die Critical Load-Berechnung die Empfindlichkeit von Ökosystemen gegenüber Säureeinträgen erhöhen kann.

Abbildung 3: Überschreitung der Critical Load-Funktion durch Säureeinträge im Jahr 2015



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 4: Überschreitung der Critical Load für eutrophierenden Stickstoff im Jahr 2015



September 2017

Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Auch die fast flächendeckende Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung zu Beginn der 90er Jahre in Deutschland war sehr bedenklich. Im nationalen Statusreport an das europäische Koordinierungszentrum für das ICP Modelling & Mapping konnte nur für knapp 5 % der Ökosysteme eine Einhaltung der ökologischen Belastungsgrenzen (Bezugsjahr 1993) vermeldet werden (Gregor et al. 1997). Anders als bei der Säurebelastung sind Fortschritte bei der Verminderung von Stickstoffeinträgen allerdings nur sehr moderat verlaufen, sodass im Jahr 2015 nur bei etwa 32 % der Fläche der Critical Load nicht überschritten wurde. Somit ist die Zielstellung aus der Nationalen Strategie zur biologischen Vielfalt (NBS), die für das Jahr 2020 die Einhaltung der Critical Loads fordert (BMU 2007 und BMUB 2015), nicht mehr realistisch. Daher hat die Bundesregierung in der Nachhaltigkeitsstrategie 2016 als Zielwert angegeben, dass sich bis zum im Jahr 2030 der Anteil der Ökosystemflächen auf den die Einträge oberhalb der Critical Load erhalten liegen, um weitere 35 % Punkte gegenüber 2005 reduzieren soll (Bundesregierung 2016). In Bezug auf die Ergebnisse dieses Projekts darf der Anteil der Flächen oberhalb der Critical Loads dann nur noch 50 % betragen.

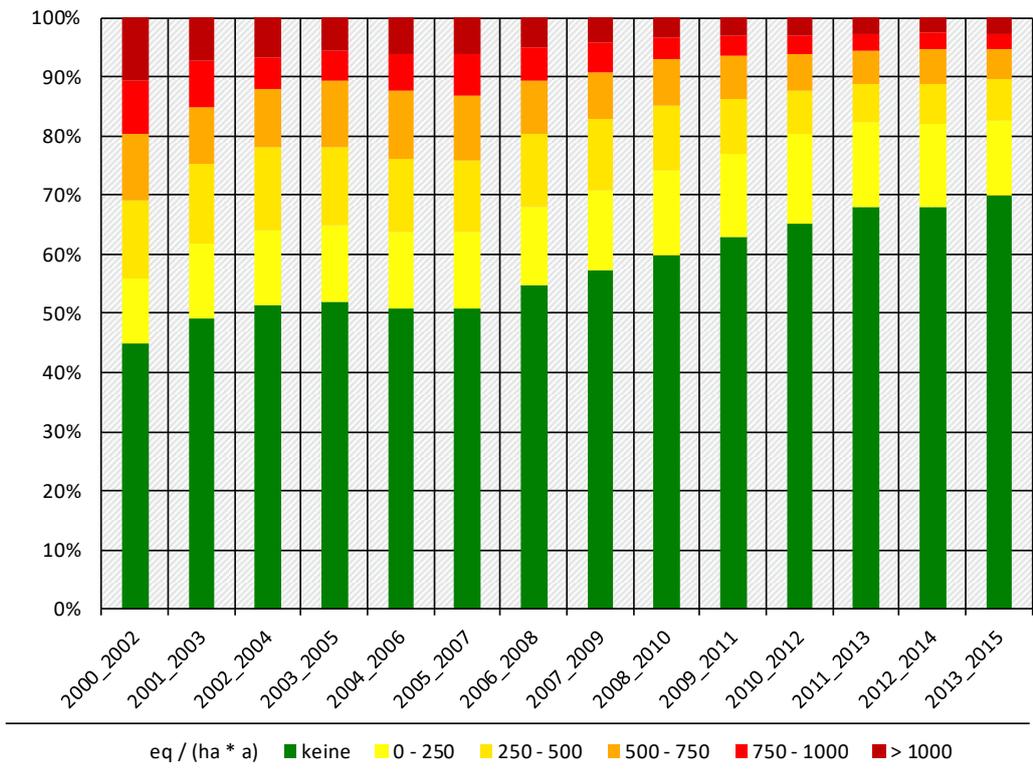
Die räumliche Verteilung der Überschreitung der Critical Loads für eutrophierenden Stickstoff für das Jahr 2015 zeigt die Abbildung 4 auf der vorigen Seite.

Die Reduzierung der Stickstoffeinträge bleibt ein dringendes Problem (SRU 2015). Da zukünftig auch der Erhalt der Biodiversität als ein Schutzgut betrachtet werden soll, kann sich die Empfindlichkeit der Ökosysteme gegenüber Stickstoffeinträgen noch erhöhen und dadurch der Anteil von Flächen geringer werden, auf denen die Critical Loads eingehalten werden.

Zur Abschätzung der Minderungserfordernisse für die Stickstoffeinträge wurde die Stickstofffracht, die auf die etwa 31 % der Landfläche Deutschlands mit ökologischen Belastungsgrenzen entfällt, berechnet. Im Jahr 2015 betrug diese 170 Kilotonnen, wobei 67 Kilotonnen über dem Critical Load lagen. In einem vereinfachten Ansatz wurde berechnet in welchem Umfang die Stickstoffeinträge auf der Gesamtfläche Deutschlands gesenkt werden müssten, damit an allen Rezeptoren, keine Überschreitungen der Critical Loads mehr auftreten. Dieser vereinfachten Methodik folgend, wäre es notwendig, in Deutschland insgesamt die Stickstoffeinträge um 319 kt N zu senken, um die Critical Loads nicht mehr mit den ausgewiesenen 67 kt N zu überschreiten.

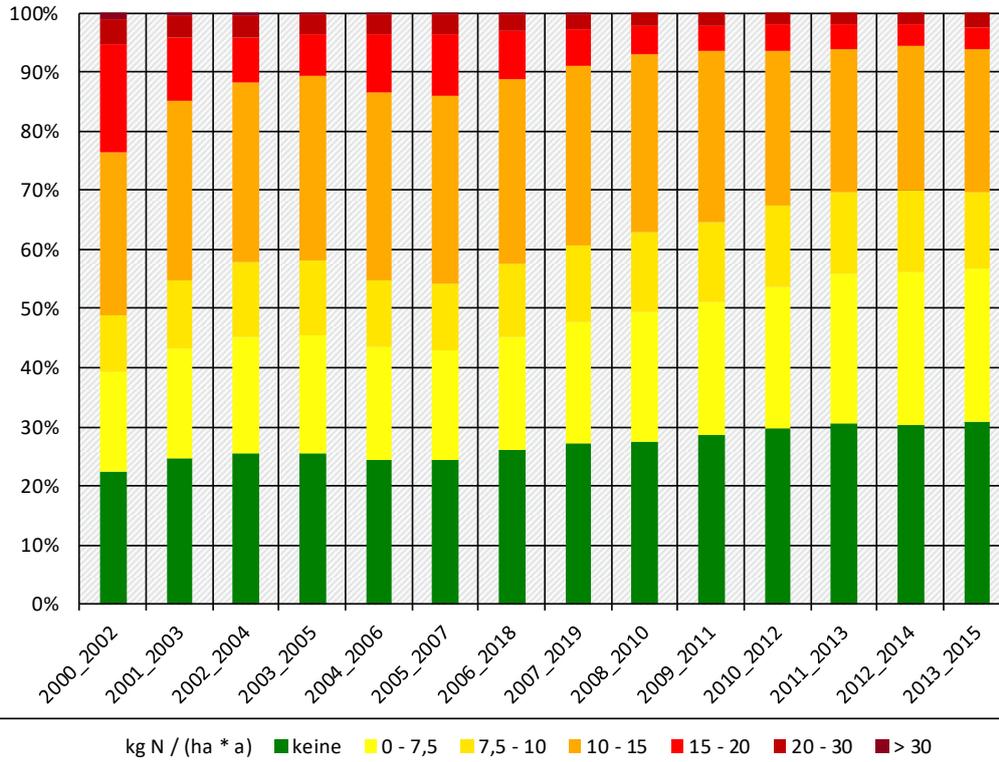
Um jahresbezogene meteorologische Unterschiede zu nivellieren erfolgte eine Mittelung der Depositionswerte zu drei- und fünfjährigen Durchschnittswerten. Mit diesen konnte die Einhaltung oder Überschreitung der Critical Load bestimmt werden. Dabei zeigt sich, dass die in der Auswertung einzelner Jahre noch zu verzeichnenden Unterschiede von bis zu 5 Prozentpunkten, die nicht ursächlich auf Maßnahmen zur Luftreinhaltung zurückgeführt werden können, aufgefangen werden und tatsächliche Trends der Umweltentlastung besser zur Geltung kommen. Für die Darstellung der zeitlichen Entwicklung wird daher das Mittel über einen Zeitraum von drei Jahren empfohlen, wie in Abbildung 5 und Abbildung 6 gezeigt.

Abbildung 5: Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 6: Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Summary

The deposition of air pollutants into ecosystems is one of the main reasons threatening biodiversity in Germany. Above all, the increased input of reactive nitrogen may lead to a destabilization of ecosystems and a displacement of sensitive species. The latest analysis made within the PINETI 2 project shows that almost 70 percent of ecosystems in Germany was endangered by nitrogen deposition in 2009 (Schaap et al., 2017). It is therefore expected that the targets set for 2020 (zero exceedance) will be far from being achieved. Several international mitigation directives have been put in place internationally, such as the Clean Air for Europe (CAFE), the EU NEC Directive and the UNECE Gothenburg Protocol. To reach their goals is ambitious and requires significant investment in mitigation measures.

To fulfill the objectives of national and international air pollution policies and to support the implementation of air quality and nature conservation regulations, the atmospheric deposition of acidifying and eutrophying components are to be modeled and mapped. In addition, the risk for biodiversity loss is to be assessed by comparison with critical loads. National high resolution maps on atmospheric deposition in Germany were constructed in a series of projects for the Federal Environmental Agency. The time series of the estimated average deposition flux for Germany is shown in Abbildung 2. From the year 2000 onwards, the emissions of reactive nitrogen have decreased by several percent annually. Hence, after accounting for meteorological variability there should be a slight downward trend visible in the timeseries. However, the time series shows large jumps between individual years. The reason is the time series consists of several relatively short periods for which a homogeneous methodology was applied. These periods can be easily linked with the individual projects. Thus, the jumps are explained by changes in methodology and input data between individual projects. Hence, a consistent and up-to-date time series without gaps is urgently needed but is not available.

The aim of this project is therefore to further develop the existing mapping approach consisting of a combination of geostatistical methods, the LOTOS EUROS model developed by TNO and the Critical Load Databases of ÖKO-DATA, Strausberg, with a view to existing research questions and to create a consistent time series of atmospheric deposition from 2000 to 2015 for use in policy support.

Determination of deposition

The deposition of atmospheric compounds into ecosystems occurs via three pathways: dry deposition, wet deposition, and occult deposition. To determine the total deposition, the dry, wet and occult deposition of NH_x , NO_y , SO_x as well as the basic cations Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ and Na^+ are calculated and summed. In this study, five calculation steps are carried out to this end:

1. **Calculation of deposition and concentration fields based on meteorological data and an emission database using a chemistry transport model** (Result: dry deposition for N and S). Dry deposition flux measurements are currently only performed in research projects; there is no observation network for dry deposition. This means that the quantification of the dry deposition across the full German territory can only be performed by using a chemistry transport model. These models can be evaluated by comparing their results to e.g. observations of pollutant concentrations in air or by comparing their results to those of other models.

In this study the LOTOS-EUROS model is used, that has been applied among others to answer questions in the field of the nitrogen and sulphur cycle and that has proved its quality in several international comparison studies (e.g. Schaap et al., 2015; Im et al., 2015; Vautard et al., 2006). In the version used in this work LOTOS-EUROS includes a parameterization of the compensation point for ammonia, thus accounting for the bi-directional exchange of ammonia for which ecosystems can be sinks as well as sources. The model is run over Germany with a resolution of about $7 \times 7 \text{ km}^2$. Crucial input data are meteorological data, land use data and the officially reported emission database. The

spatial distribution of emissions is taken from the UBA-GRETA tool. Meteorological data were obtained from the European Centre of Medium Range Weather Forecasting (ECMWF). Details of the model setup are described in Section 2.

2. **Calculation of wet deposition fields based on observations.** The interpolation of observations of measured concentrations in rain to produce a deposition field covering the entire surface of Germany is performed using geostatistical methods, whereby the information about the spatial distribution from the chemistry transport model is also used for N and S (result: wet deposition).
3. **Use of a heuristic approach to estimate occult deposition.** The concentration in fog water is derived from the concentration in rainwater (see point 2) using empirical factors. Using calculated cloud water deposition rates, the contribution of cloud water to the total deposition is calculated (result: occult deposition).
4. **Use of a scavenging ratio approach for the calculation of the dry deposition for the base cations.** In this approach, the air concentration is derived from the concentration in rain using empirical factors. The dry deposition is then determined using calculated deposition rates (result: dry deposition for base cations).
5. **Transformation of the results of dry and occult deposition onto the finely resolved 1 * 1 km² raster and addition of the wet, dry and occult deposition fluxes to the total deposition with a spatial resolution of 1 * 1 km²** (result: total deposition).

On average, the nitrogen deposition in Germany has decreased from above 1300 eq ha⁻¹ yr⁻¹ in 2000 to values slightly above 1050 eq ha⁻¹ yr⁻¹ during 2015 (Abbildung 1). The largest contribution to this negative trend is made by a decrease in oxidized nitrogen deposition of more than 200 eq ha⁻¹ a⁻¹, whereas reduced nitrogen deposition has only decreased by about 25 eq ha⁻¹ a⁻¹. The total NO_y deposition roughly consists of two thirds wet deposition and one third dry deposition. Dry deposition is more important in the deposition of reduced nitrogen (43 to 50 %).

The estimated total deposition for the components considered as well as the individual land use classes averaged over Germany for 2013-2015 are provided in Tabelle 2. The average total nitrogen deposition on coniferous forest in Germany was estimated to be about 1304 eq ha⁻¹ a⁻¹ while the average total deposition of sulfur (S_{nss}) amounted 238 eq ha⁻¹ a⁻¹. The areas with highest nitrogen deposition are located in the northwest and southeast of the country, as these regions are characterized by large scale intensive agriculture. At this point it should be noted that the distributions of oxidized and reduced nitrogen deposition over Germany differ from each other. Oxidized nitrogen makes a major contribution to total nitrogen deposition in non-agricultural regions and accounts for more than half of total nitrogen deposition in more remote regions such as the Black Forest. The deposition distribution for sulfur shows the highest values in the Ruhr area. Secondary maxima show up in the mountain ranges. The inputs into forest stands are about 25-50% higher than those into surface waters, which is explained by the difference in roughness length. The base cations sodium (Na⁺) and magnesium (Mg⁺), whose main source is sea salt, have deposition maxima on the North Sea coast. The deposition distribution of potassium has a more anthropogenic signature, with maximum values in regions with the highest rainfall. Calcium originates from anthropogenic sources as well as sea salt. Therefore, the distribution for calcium shows maxima in both upland and coastal regions.

Between the LOTOS-EUROS v2.1 model used for this project and the LOTOS-EUROS v1.10 model used for the PINETI-2 project, there are some differences in the consideration of the assumed vegetation height at arable land in winter, the calculation of the atmospheric stability and the resolution of the meteorological data. In addition, instead of the PAREST emission database the new GRETA emission distributions were used to prescribe the national emissions in PINETI 3. The applied European emission database was updated to the latest version of the TNO MACC dataset (III). The national as well as the international data differ in terms of emission totals and geographic distribution from their predecessor.

The changes in the modeling caused differences between the modeled deposition fluxes between PINETI-2 and PINETI-3, which were quantified within the project. In agricultural regions in the north eastern Germany, the modeled NHx deposition increased by 30 to 50 percent, while deposition at some other locations have decreased by 20 percent. This is a consequence of changes in spatial distribution of the emissions. The differences in modeling between PINETI-2 and PINETI-3 are partially offset by the inclusion of measurements for the quantification of wet deposition, but the main patterns persist. Overall, the deposition values for coniferous forests are higher in PINETI-3 than in PINETI-2, except in the border region between Hessen, Baden-Württemberg and Bavaria and a few other, relatively small areas. With respect to NOy, the differences are small, albeit that in the high NOx emission areas the deposition increases slightly. As a result of all changes, NHx deposition increased in the northeast and in the south, while the overall NHx deposition in the remainder of the country decreases slightly. The new numbers show that the contrast between the land use classes coniferous forest and arable land has increased.

With respect to NO₂ and NH₃, it is clear that the updates has significantly increased the correspondence between modelled and observed concentration and their spatial and temporal variability. Also, the modeled rainwater concentration of ammonium matches the observations better when switching from the PINETI-2 to the PINETI-3 calculation method. The update of the emissions data has made a big difference here. For the comparison to throughfall measurements, KRB data for 94 sites in the years 2000 to 2015 from the von Thünen Institute were used. The comparison shows that the PINETI-3 data generally agrees better than in the predecessor project.

In the past, a series of research projects targeted the mapping of nitrogen deposition across Germany. Abbildung 2 shows the calculated country averaged total nitrogen deposition for the years covered by individual projects. Also, the total nitrogen deposition for Germany as calculated in the EMEP program is provided for a number of years. This graph shows that the PINETI-3 results are above those of PINETI-2, but lower than the PINETI and MAPESI results. The PINETI-3 time series fits very well into the 2013 EMEP calculations, but is systematically lower than the EMEP calculation from 2016. The difference with EMEP is mainly explained by the fact that our NOy deposition is about 30 percent lower. In terms of NHx, the values of the EMEP model are very close to the deposition calculated in PINETI-3.

Tabelle 2: Total deposition (eq ha⁻¹ a⁻¹) for all species and each land use class for 2013 bis 2015.

Spezies	ara	cnf	crp	dec	grs	Mix	oth	sem	urb	wat
NHx	627	908	718	792	586	850	598	610	909	672
NOy	308	396	343	381	302	388	284	321	380	279
N	935	1304	1062	1173	888	1238	883	931	1289	951
SO4	181	238	207	231	196	235	171	219	196	203
SO4_nss	152	199	177	199	167	199	142	171	167	174
Na	175	256	187	194	176	225	174	330	179	177
K	32	44	34	36	32	40	32	55	33	32
K_nss	29	40	30	32	29	36	28	49	29	29
Mg	59	89	63	67	59	78	59	115	61	60
Mg_nss	19	28	20	21	19	25	19	37	20	19
Ca	100	143	106	111	100	127	99	181	102	100
Ca_nss	92	132	98	103	93	118	91	168	95	93

Critical load exceedance

The entry into force of the Geneva Convention on Air Pollution is intended to counteract the exceeding of the critical ecological load limits, the critical loads, by pollutants by exhausting all technical possibilities and avoiding negative effects of the air pollutants. According to current knowledge, exposure levels less or equal to these limits cause no acute or long-term damage to the ecological receptors. The definition of Critical Load is:

“A quantitative estimate of an exposure to one or more pollutants below which significant harmful effects on specified sensitive elements of the environment do not occur according to present knowledge” (Nilsson and Grennfelt 1988).

In addition to the Geneva Convention on Air Pollution, a number of other regulations have been adopted with the aim of reducing, above all, the harmful effects of eutrophication and acidification of ecosystems in Europe. Also within Germany the importance of the critical load concept is increasing, which among others led to the formulation of the Deutsche Nachhaltigkeitsstrategie 2016 (German Sustainability Strategy) as an objective until 2030, wherein by the year 2030 the area proportion with increased nitrogen input is to be reduced by 35 percent compared to 2005 (Bundesregierung 2016).

The usage of Critical Load and the monitoring of compliance with it have in many cases also become part of environmental approval planning in Germany. In addition, Critical Load is used in numerous individual reports on the environmental compatibility of plant design as a basis of assessment for the evaluation of operational additional loads. Critical Loads as ecological load limits have thus become an integral part of the precautionary environmental policy in Germany.

The fundamentals for the modeling of critical loads (CL) are published in a Mapping Manual (UBA 2004 and CLRTAP 2016) by the International Co-operative Programs on Modeling and Mapping of Critical Loads and Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends (ICP Modeling & Mapping). A distinction is made between critical loads for protection against acidification and for protection against eutrophication. To determine the ecological load limits based on the general definition of critical loads for both types an equilibrium approach is followed.

The exposure limit for acidification depends on the validity of the sinking processes from the mass balance and the available nitrogen in the ecosystems. It can be formulated on the one hand as the maximum permissible deposition of sulfur compounds without nitrogen ($CL_{\max S}$) or as the maximum permissible nitrogen input, taking into account the minimum requirement for nitrogen ecosystems ($CL_{\min N}$), which must be available as a nutrient and must not be undershot.

To determine the critical load for the eutrophic nitrogen input into the ecosystem, referred to as $CL_{\text{nut}}(N)$ or $CL_{\text{eut}}(N)$, the simple mass balance method (SMB) is used. It is composed of the nitrogen, which is absorbed by plants (N_i), outgassed by denitrification into the atmosphere (N_{de}) or accumulated by immobilization in humus (N_u). Further included is the remainder of deposited and mineralized nitrogen, which is washed out with the precipitation from the soil water into the deeper layers and into the groundwater (N_{le}). In order to protect terrestrial and aquatic ecosystems, this discharge must be limited to a tolerable level. The Mapping Manual (CLRTAP 2016) therefore defines critical concentrations for nitrogen in the soil solution.

To check compliance with ecological limits, depositions from 2000 to 2015 were evaluated for Germany. Inputs of air pollutants exceeding the critical load are referred to as Critical Load Exceedance. A distinction is made between the evaluation of acid inputs and that for eutrophic nitrogen.

Sulfur and nitrogen inputs both contribute to acidification, but have no common critical load. The Critical Load Function (CLF) describes an approach to control compliance with or exceedance of ecological limits. The function clarifies with which pollutant and to what extent emission reduction measures have to be taken. The vertices $CL_{\max S}$, $CL_{\max N}$ and $CL_{\min N}$ define a range in which different combina-

tions of sulfur and nitrogen inputs are possible and permissible. Deposition values outside the described area mark an exceedance of the critical load. For the calculation of the excess rate, it was determined (CLRTAP 2015) that the shortest distance between the deposition point and the intersection point with the outer limit value of the critical load function serves as the basis for the calculation. The intersection of this shortest connection of the deposition point with the critical load function is the target point for the reduction of depositions.

The compliance with or exceedance of the critical load is seen as an indicator of pollution of ecosystems by air pollutants. Critical load exceedances are mapped as annual values and displayed in seasonal trend. The existing ecosystem (receptor) is assigned the deposition values corresponding to this type of land use.

At the beginning of the 90s of the last century, more than 85% of all ecosystems in Germany suffered from excessive acidity. Due to the successful national and international air pollution control policy, this picture has reversed, so that currently (2015) for just under 70% of the ecosystems the critical loads are complied with. In the case of the 30% of the receptor surfaces, which are still affected by a critical load exceedances, the reduction of acid inputs is still very much required.

Over the course of the years 2000 to 2015, the proportion of high (750-1000 eq ha⁻¹ a⁻¹) to very high acid load (> 1000 eq ha⁻¹ a⁻¹) has steadily declined, while at the same time the proportion of non-or slightly loaded (up to 250 eq ha⁻¹ a⁻¹) rose.

The spatial distribution of the critical loads exceeded by acid inputs for the year 2015 is shown in Abbildung 7 on the following page.

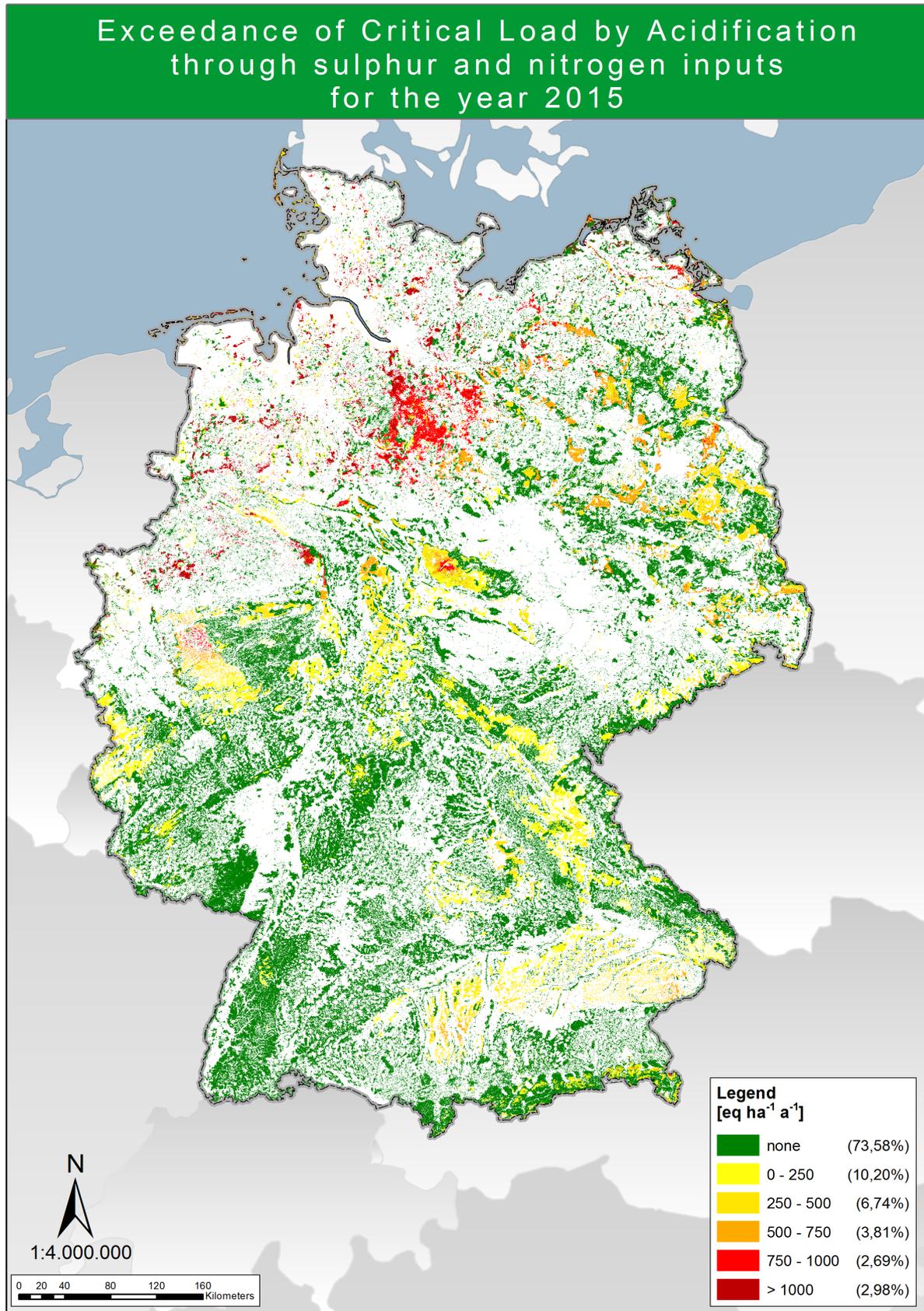
The results of this project show that the objective of the National Strategy on Biological Diversity (NBS), according to which all critical loads are to be met by 2020 (BMU 2007 and BMUB 2015), can be approached. However, it should be noted, that the acid load recorded in past decades is indeed still effective and that recovery of ecosystems from this burden requires longer periods of time. It also appears that the inclusion of the legally protected good biodiversity in the Critical Load calculation can in future increase the sensitivity of eco-systems to acid inputs.

The almost nationwide exceedance of the critical load for eutrophication at the beginning of the 1990s in Germany was also very questionable. In the national status report to the European Coordination Center for ICP Modeling & Mapping, it could only be reported that the ecological load limits (reference year 1993) were met for just under 5% of the ecosystems (Gregor et al., 1997). However, unlike acid pollution, progress in reducing nitrogen inputs has been very modest, meaning that in 2015, only about 32% of the area did not exceed the critical load. Thus, the objective of the National Biodiversity Strategy (NBS), which requires compliance with critical loads for 2020 (BMU 2007 and BMUB 2015), is no longer realistic. Therefore, the Federal Government has set a target value in the Sustainability Strategy 2016 to reduce the area of the ecosystems that receive deposition above the critical load by 2030 by 35 % (Bundesregierung 2016). With respect to the results of this study, that means that Critical Loads may be exceeded only at 50 % of the sensitive area.

The spatial distribution of the exceedance of the critical loads for eutrophic nitrogen for 2015 is shown in Abbildung 8 on the second next page.

The reduction of nitrogen inputs remains an urgent problem (SRU 2015). Since the conservation of biodiversity is also to be regarded as a protected resource in the future, the sensitivity of ecosystems to nitrogen inputs may increase, thereby reducing the proportion of areas where the critical loads are met.

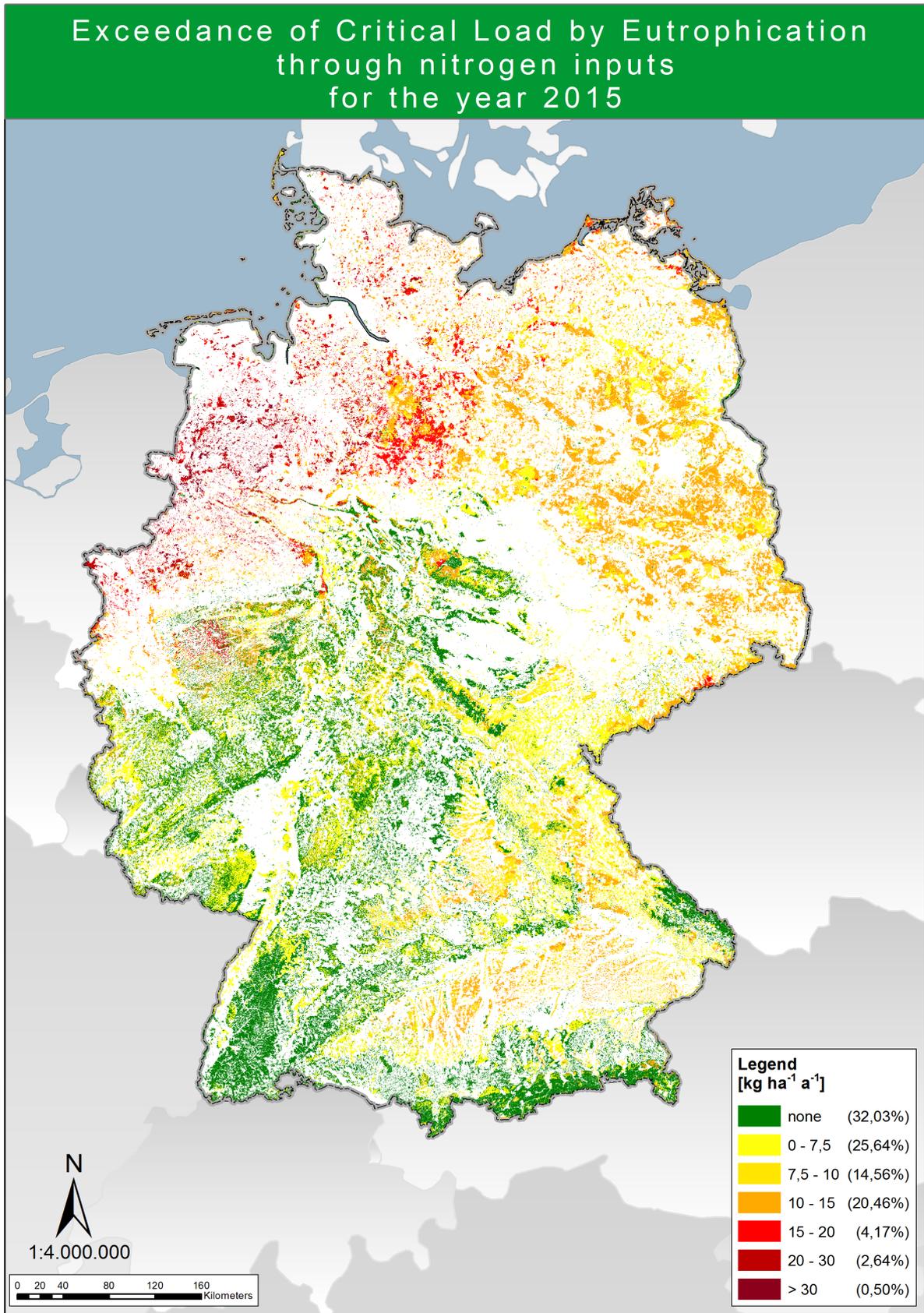
Abbildung 7: Exceedance of Critical Load by Acidification for 2015



September 2017

Source: own Graphic, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 8: Exceedance of Critical Load by Eutrophication for 2015



Source: own Graphic, ÖKO-DATA Strausberg

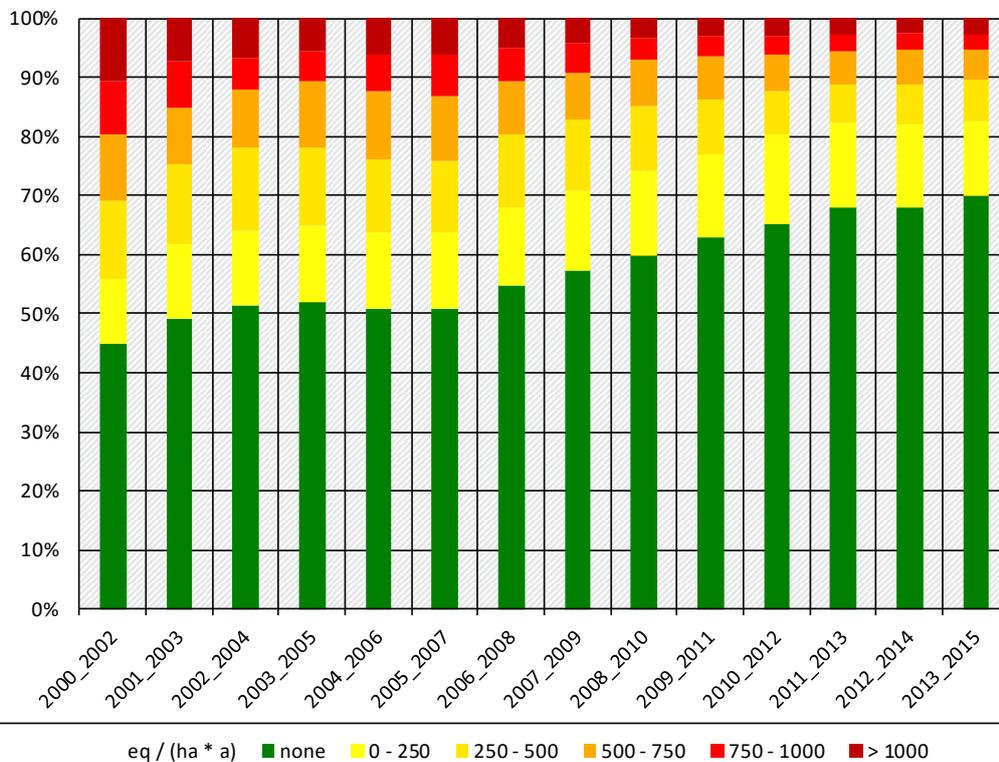
To estimate the reduction requirements for nitrogen inputs, the nitrogen load, which accounts for approximately 31% of Germany's land area with ecological limits, was calculated. In 2015, this was 170 kilotons, with 67 kilotons above the critical load. In a simplified approach the overall need for reduction of nitrogen deposition to meet Critical Loads everywhere in Germany, was calculated. Following this simple approach; it would be necessary to lower the nitrogen inputs by 319 kt N in Germany in order to avoid exceeding of the critical loads with the designated 67 kt N.

At the national level, as well as for Europe as a whole, the efficiency of air pollution control measures will need to be prioritized based on the positive effects achieved. An indicator for air pollution control is the compliance of the Critical Load. Both the National Strategy on Biological Diversity (BMU 2007, BMUB 2015) and the German Sustainability Strategy (Bundesregierung 2016) mention the compliance with the ecological limits as an attainable goal.

The annual rates of air pollutant inputs naturally have a close link with the meteorological year, and the use of these identified critical load transgressions is therefore sometimes very sensitive to interannual variations. In this context, and taking into account the existing uncertainties in the modeling of depositions, ways were also explored of complementing the indicator with more robust parameters (e.g. the average excess).

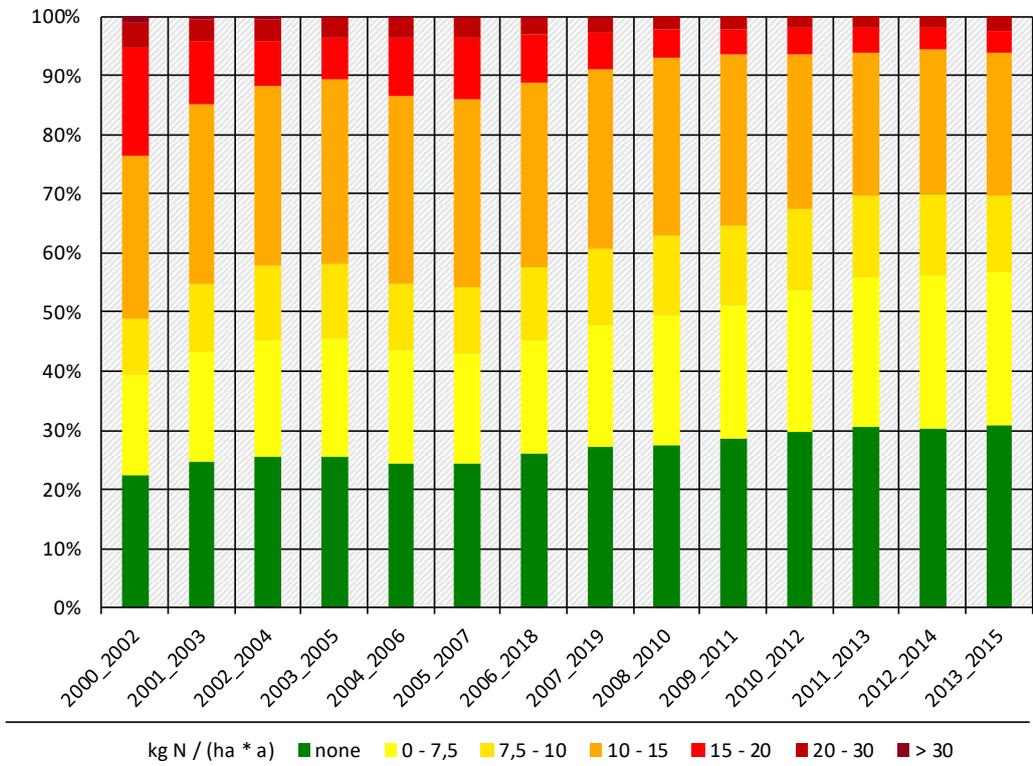
In order to level year-related meteorological differences, the deposition values were averaged over three and five years. With these, the compliance or exceedance of the critical load could be determined. It shows that the differences of up to 5 percentage points in the evaluation of individual years, which cannot be attributed to air pollution control measures, are compensated for and actual trends of environmental relief are better emphasized. For the presentation of the temporal development, therefore, the funding over a period of three years is recommended, as shown in Abbildung 9 and Abbildung 10.

Abbildung 9: Exceedance of Critical Load by Acidification in the years 2000 to 2015 averaged over three years of sulphur and nitrogen compound input rates



Quelle: own Graphic, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 10: Exceedance of Critical Load for Eutrophication in the years 2000 to 2015 averaged over three years of nitrogen input rates



Quelle: own Graphic, ÖKO-DATA Strausberg

1 Einleitung

1.1 Hintergrund

Der Eintrag von Luftschadstoffen in Ökosysteme ist einer der wesentlichen Gründe für die Gefährdung der Artenvielfalt in Deutschland. Vor allem der erhöhte Eintrag von reaktivem Stickstoff kann zur Destabilisierung von Ökosystemen und einer Verdrängung empfindlicher Arten führen. Nährstoffliebende, schnell wachsende Pflanzen nehmen anderen Licht und Platz für Wachstum und Verbreitung. Derartige Veränderungen sind aufgrund der zeitlichen Verzögerung oftmals nicht direkt und sofort wahrnehmbar. Fast die Hälfte der Pflanzenarten auf der "Roten Liste" ist durch erhöhte Nährstoffeinträge gefährdet (Bundesamt für Naturschutz (BfN), 2004 und 2012). Zusätzlich wird die Anfälligkeit vieler Pflanzen gegenüber weiteren Stressfaktoren (zum Beispiel Frost, Dürre oder Herbivorie) durch erhöhte Stickstoffverfügbarkeit gesteigert (Bobbink et al., 2010). Weltweit gilt der Stickstoffeintrag als einer der fünf Hauptgründe für die Gefährdung der biologischen Vielfalt. Eine negative Beeinflussung kann nur dann sicher ausgeschlossen werden, wenn die Einträge unter den ökologischen Belastungsgrenzen, den sogenannten Critical Loads, für Eutrophierung (Überdüngung) liegen. Auch die Versauerung von Ökosystemen wird in Europa mittlerweile vor allem durch den Eintrag reaktiver Stickstoffverbindungen verursacht. In der Deutschen Nachhaltigkeitsstrategie 2016 wurde deshalb als Ziel vereinbart, die Nährstoffeinträge bis 2030 so weit zu senken, dass der Flächenanteil mit Critical Load Überschreitungen auf allen empfindlichen Ökosystemflächen um 35 Prozent gegenüber 2005 reduziert werden kann (Bundesregierung 2016). Die letzte Analyse innerhalb des PINETI-2-Projekts zeigt, dass im Jahr 2009 noch immer fast 70 Prozent der Ökosysteme in Deutschland durch Stickstoffdeposition gefährdet waren (Schaap et al., 2017). International wurden mehrere Richtlinien zur Minderung aufgestellt, wie zum Beispiel die Thematische Strategie der EU zur Luftreinhaltung (Clean Air for Europe - CAFE), die EU-NEC-Richtlinie und das Göteborg-Protokoll der UNECE. Diese Ziele sind ehrgeizig und erfordern erhebliche Investitionen in Minderungsmaßnahmen. Das Umweltbundesamt (UBA) und der Sachverständigenrat Umwelt (SRU) haben vor kurzem empfohlen, eine nationale, ressortabgestimmte Stickstoffstrategie zu entwickeln. Um die Einhaltung der gesetzten Umweltqualitätsziele zu überprüfen, sind aktuelle Daten zu den Schadstoffeinträgen und deren Erheblichkeit im Hinblick auf den Schutz der Biodiversität erforderlich.

1.2 Eintragspfade

Der Eintrag atmosphärischer Verbindungen in Ökosysteme erfolgt über drei Eintragspfade: die trockene Deposition, die nasse Deposition und die feuchte (oder okkulte) Deposition.

Die "trockene Deposition" bezieht sich auf die Adsorption beziehungsweise Ablagerung gasförmiger Stoffe oder Partikel an Oberflächen und die Aufnahme von Gasen durch die Vegetation. Daher hängt die trockene Deposition stark von lokalen meteorologischen Parametern, der Reaktivität und Wasserlöslichkeit der Verbindungen und den Eigenschaften des Rezeptors ab.

Den Eintrag gelöster und ungelöster Verbindungen in Ökosysteme durch Niederschläge bezeichnet man als "nasse Deposition". Die nasse Deposition ist daher von der Konzentration der Stoffverbindungen im Niederschlag sowie von Niederschlags- (Intensität und Tropfengröße) und Wolkeneigenschaften (Tropfengröße, Flüssigwassergehalt) abhängig, im Gegensatz zur trockenen Deposition jedoch nicht von der Art des Rezeptors.

Unter der "feuchten Deposition" versteht man die Abscheidung gelöster und ungelöster Verbindungen mit Wolken- beziehungsweise Nebeltröpfchen an Rezeptoroberflächen. Die feuchte Deposition hängt daher insbesondere von der Konzentration der Stoffverbindungen in den Wolken- beziehungsweise Nebeltropfen und lokalen meteorologischen Parametern ab, welche die Turbulenz antreiben. Besonders relevant ist die feuchte Deposition an orografisch exponierten Standorten (zum Beispiel Gebirgsketten), an denen Wolken häufig auf Grund treffen.

Addiert man trockene, nasse und feuchte Deposition, so erhält man die Gesamtdeposition. Innerhalb des hier beantragten Vorhabens soll die Gesamtdeposition von Luftschadstoffen, das heißt die Summe aus trockener, nasser und feuchter Deposition ermittelt werden.

1.3 Motivation

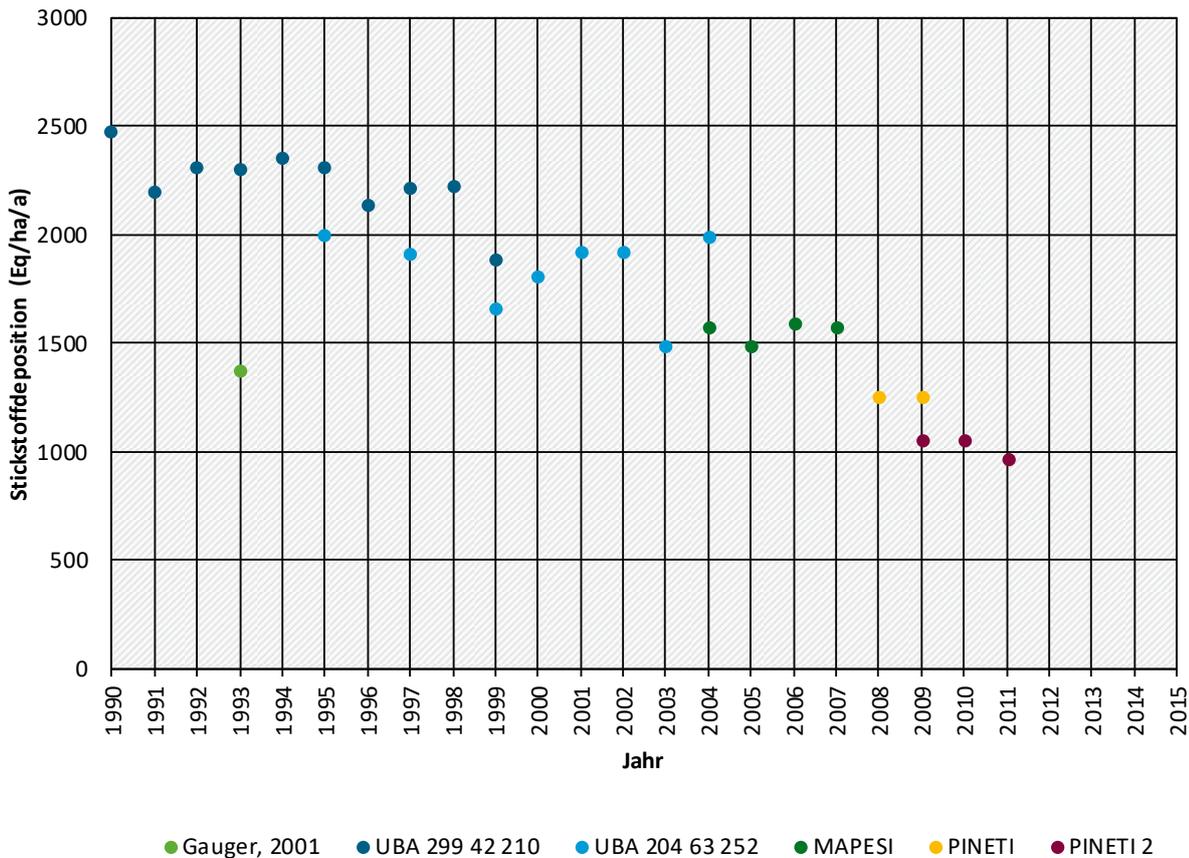
In Übereinstimmung mit den Zielen der nationalen und internationalen Luftreinhaltepolitik und zur Unterstützung des Ländervollzugs immissionsschutzrechtlicher und naturschutzrechtlicher Regularien sind atmosphärische Einträge versauernder und eutrophierender Luftschadstoffe zu modellieren, zu kartieren und im Hinblick auf die Gefährdung der Biodiversität durch Vergleich mit kritischen Belastungsschwellen zu bewerten. Flächendeckende und räumlich detaillierte Daten der atmosphärischen Stoffeinträge in Deutschland wurden in einer Reihe von Projekten für das Umweltbundesamt erhoben:

- ▶ FKZ 200 85 212 (2004)
- ▶ FKZ 204 63 252 (Gauger et al., 2008)
- ▶ FKZ 3707 64 200 (MAPESI, Builtjes et al. 2011)
- ▶ FKZ 3710 63 246 (PINETI-1, Wichink Kruit et al., 2014)
- ▶ FKZ 3712 63 240 1 (PINETI-2, Schaap et al., 2017)

Die aus diesen Projekten resultierende Zeitreihe der ermittelten mittleren Depositionsfracht für Deutschland ist am Beispiel der Stickstoffkomponenten in Abbildung 11 dargestellt. Vom Jahr 2000 an sind die Emissionen von reaktivem Stickstoff jährlich um mehrere Prozent gesunken. Unter Berücksichtigung der meteorologischen Variabilität ergibt sich auch ein leicht rückläufiger Trend für die Stickstoffdeposition. Die Zeitreihe weist allerdings große Sprünge zwischen den einzelnen Jahren auf. Die Ursache liegt darin, dass die Zeitreihe nur relativ kurze Zeiträume methodisch homogen abdeckt. Die Zeiträume lassen sich auf einfache Weise mit den individuellen Projekten verknüpfen. Die Sprünge erklären sich aus Änderungen in der methodischen Vorgehensweise und den Eingangsdaten. Eine konsistente und aktuelle Zeitreihe ohne größere Lücken wird aber z.B. für den Indikator „Eutrophierende Stickstoffeinträge“ der Deutschen Nachhaltigkeitsstrategie dringend benötigt, ist bisher aber nicht vorhanden.

Dieses Vorhaben hat daher zum Ziel, die bisher verwendete Modellkombination, bestehend aus geostatistischen Verfahren, dem von TNO entwickelten LOTOS-EUROS-Modell und den Critical-Load-Datenbanken der ÖKO-DATA Strausberg, im Hinblick auf bestehende Forschungsfragen weiterzuentwickeln und zur Erstellung einer konsistenten Zeitreihe der atmosphärischen Einträge von 2000 bis 2015 anzuwenden und die erzielten Ergebnisse für Politikberatung und Vollzug aufzubereiten.

Abbildung 11: Vergleich der in sechs verschiedenen Vorhaben berechneten mittleren Stickstoffdepositionsflüsse für die Gesamtfläche Deutschlands



Quelle: eigene Darstellung, TNO

1.4 Zielstellung

Das PINETI-3-Projekt hat zum Ziel:

1. eine qualitätsgesicherte Datenreihe zum Eintrag der Schadstoffe für die Periode 2000 bis 2015 landnutzungsspezifisch zu erstellen;
2. den Schutz beziehungsweise die Belastung von terrestrischen Ökosystemen durch den Eintrag von Luftschadstoffen zu bewerten und mittels robuster Indikatoren in ihrer zeitlichen Entwicklung darzustellen.

Mit den ermittelten Daten kann der internetbasierte, hochaufgelöste (1 x 1 km²) und flächendeckende Kartendienst zur Ermittlung der Hintergrundbelastung von Ökosystemen mit Stickstoffdepositionen aktualisiert werden, welcher zum Beispiel im Rahmen immissionschutzrechtlicher Genehmigungsverfahren (TA Luft Nr. 4.8) Anwendung findet (<http://gis.uba.de/website/depo1>).

2 Methoden zur Kartierung der atmosphärischen Deposition

2.1 Überblick

Für die Ermittlung des vollständigen Stickstoffeintrags in Ökosysteme müssen alle drei Eintragungspfade berücksichtigt werden. Innerhalb von PINETI-3 werden dafür vier Berechnungsschritte durchgeführt:

1. **Berechnung der Depositions- und Konzentrationsfelder auf Basis von Emissions- und Meteorologiedaten mit einem Chemietransportmodell** (Ergebnis: trockene Deposition). Die trockene Deposition wird derzeit nur im Rahmen von Forschungsvorhaben messtechnisch erfasst; ein entsprechendes Messnetz gibt es nicht. Die flächendeckende Ermittlung der trockenen Deposition muss daher mit Chemietransportmodellen erfolgen. Die Güte dieser Modelle kann unter anderem durch Vergleiche mit Messungen, zum Beispiel der Luftkonzentration, oder mit den Ergebnissen anderer Modelle untersucht werden.

Im PINETI-3-Vorhaben wurde das Modell LOTOS-EUROS verwendet, welches seit vielen Jahren zur Beantwortung von Fragestellungen unter anderem im Hinblick auf den Stickstoff- und Schwefelkreislauf genutzt wird und seine Güte in verschiedenen internationalen Vergleichsstudien unter Beweis stellte. In der verwendeten Version beinhaltet LOTOS-EUROS auch die Parametrisierung eines Ammoniak-Kompensationspunktes und berücksichtigt damit den bidirektionalen Austausch von Ammoniak, für das Ökosysteme sowohl Senke als auch Quelle sein können. Das Modell wird in Deutschland mit einem Raster von etwa $7 \times 7 \text{ km}^2$ betrieben.

2. **Berechnung der nassen Depositionsfelder auf Basis von Messdaten.** Die flächendeckende Interpolation der gemessenen Konzentrationen im Niederschlag erfolgt durch geostatistische Verfahren, wobei zusätzlich die Informationen über die räumliche Verteilung aus dem Chemietransportmodell genutzt werden (Ergebnis: nasse Deposition). Die Konzentrationsfelder werden mit Regendaten des DWD in einer Auflösung von $1 \times 1 \text{ km}^2$ zu gemittelten Jahresfrachten verschnitten. Das methodische Vorgehen ist im Detail in Wichink Kruit et al. (2014) dokumentiert.
3. **Verwendung eines heuristischen Ansatzes zur Abschätzung der Nebeldeposition.** Hierfür wird die Konzentration im Nebelwasser über empirische Faktoren aus der Konzentration im Niederschlag (vergleiche Punkt 2) abgeleitet. Der Nebelbeitrag wird anschließend über berechnete Depositionsgeschwindigkeiten ermittelt (Ergebnis: feuchte Deposition). Der Beitrag der feuchten Deposition ist im Allgemeinen (mit Ausnahme von topografisch sehr stark strukturierten Gebieten wie Schwarzwald und Harz) sehr niedrig.
4. **Transformation und Zusammenstellung der Gesamtdeposition:** Die Ergebnisse der trockenen und feuchten Deposition werden auf das feiner aufgelöste $1 \times 1 \text{ km}^2$ -Raster interpoliert und alle Teilflüsse zur Gesamtdeposition mit einer räumlichen Auflösung von $1 \times 1 \text{ km}^2$ addiert (Ergebnis: Gesamtdeposition).

2.2 Chemietransportmodellierung

Der atmosphärische Eintrag durch trockene Deposition in Deutschland wird anhand der Modellierung mit dem großräumigen CTM-Modell LOTOS-EUROS ermittelt. Das Modell enthält Parametrisierungen für den Transport, die chemischen Umwandlungen sowie für die trockene und nasse Deposition von gasförmigen und partikulären atmosphärischen Substanzen. In jeder Gitterbox wird eine Bilanz zwischen den verschiedenen Prozessen berechnet, somit ist die Gesamtberechnung masseerhaltend. Das bedeutet, dass die Konzentration einer Substanz in einer Gitterzelle das Resultat vieler verschiedener vorausgegangener Prozesse ist. Wird zum Beispiel ein Mol NH_x durch trockene Deposition aus einer

Gitterzelle entfernt, wird die Masse in der Gitterzelle auch um ein Mol reduziert. Hierbei werden die Konzentrationsänderungen und Depositionsflüsse stündlich für jeden Gitterpunkt berechnet.

Das Gitternetz für das großräumige CTM wird zweifach genestet:

- D1, 25 x 25 km² über ganz Europa;
- D2, 7 x 7 km² über Deutschland;

Wesentliche Eingangsgrößen sind die meteorologischen Daten, die Landnutzung und die Emissionen aus der offiziellen Berichterstattung. Die räumliche Verteilung der aktuellen Emissionen erfolgte auf Basis der Ergebnisse des Gridding Emission Tools for ArcGIS (GRETA). Die zeitliche Verteilung der Emissionen der Landwirtschaft findet mit einem typischen Zeitprofil statt. Die meteorologischen Daten wurden vom European Centre of Medium Range Weather Forecasting (ECMWF) erhoben. Im Vergleich zum Vorgängerprojekt wurden vor allem die Emissionsdaten aktualisiert. Diese Daten werden daher hier etwas ausführlicher beschrieben.

2.2.1 Emissionsdaten für Deutschland

Für Deutschland wurden räumlich aufgelöste Emissionsdaten des GRETA-Systems (Schneider et al., 2016) vom UBA bereitgestellt. Grundlage für die räumliche Verteilung waren die im Jahr 2017 offiziell nach den internationalen Berichtsvorschriften unter der UNECE Luftreinhaltekonvention vom Umweltbundesamt berichteten Luftschadstoffemissionen, mit denen eine Emissionszeitreihe für die Jahre 1990-2015 veröffentlicht wurde (UBA, 2017). Erstmals wurden räumlich verteilte Emissionsdaten für jedes Einzeljahr 2000 – 2015 bereitgestellt, d.h. für jedes Jahr wurden die zugehörigen nationalen Summen, PRTR-Punktquellen und zum Jahr zeitlich passende Verteilparameter verwendet.

Die Emissionen aus der Landwirtschaft für Deutschland werden für diese Berichterstattung im Auftrag vom Umweltbundesamt jährlich vom Thünen-Institut für Agrarklimaschutz berechnet. Emissionen aus der Landwirtschaft setzen sich zusammen aus den Emissionen, die bei der Tierhaltung (zum Beispiel Rinder, Schweine) entstehen, und den Emissionen, die bei der Bearbeitung der landwirtschaftlichen Flächen entstehen. Diese Emissionen werden teilweise auch nach Landkreisen aufgeschlüsselt. Im GRETA-System werden die landwirtschaftlichen Emissionen je nach Quellgruppe anteilig auf die Landkreise verteilt. Im nächsten Schritt dann auf die Agrarfläche der Landkreise. Nur ein kleiner Teil der landwirtschaftlichen Betriebe, die zur Abgabe einer PRTR-Emissionserklärung verpflichtet sind, werden als Punktquellen dargestellt. Für die verfügbaren Punktquellen wurden aus GRETA verschiedene Höhenlevel exportiert, d.h. bei PRTR-Anlagen wird eine Emissionshöhe abgeschätzt und die Emission einem im Modell definierten Höhenlevel zugewiesen. Je nach Emissionshöhe führt das zur kleinräumigen oder großflächigen Ausbreitung der Emissionen.

Die Emissionen von Stickstoffoxiden und Schwefeldioxiden aus dem Verkehrs-, dem Energie- und dem Industriesektor sowie aus anderen Sektoren werden vom Umweltbundesamt selbst berechnet. Die nationalen Jahreswerte werden im Gegensatz zu den Landwirtschaftsemissionen mit dem GRETA-Tool auf Basis anderer Informationen, wie z.B. Beschäftigtenzahlen bestimmter Branchen, Landbedeckungs- oder Landnutzungsdaten oder abschnittsbezogener Gewichtungen auf Straßen-, Schienen- oder Binnenschiffahrtsnetzen verteilt (Schneider et al., 2016).

Es wichtig zu erwähnen, dass seit der Berichterstattung 2015 der NH₃-Emissionsfaktor für die Harnstoff-Mineraldüngeranwendung entsprechend dem EMEP Guidebook 2013 (EEA, 2013) angewendet worden ist, was eine deutliche Zunahme der NH₃-Gesamtemission im Bereich der Mineraldüngerausbringung im Vergleich zu vorherigen Berichterstattungsperioden zu Folge hatte (siehe Tabelle 3). Seit der Berichterstattung 2016 wird außerdem die Gärrestlagerung und -ausbringung bei der Emissionsberichterstattung mit erfasst. Auch das führt zu einer Erhöhung der NH₃-Emissionen gegenüber vorher-

rigen Berichterstattungen und damit gegenüber früheren in der Modellierung verwendeten Emissionsdaten. Die berichteten Ammoniakemissionen für Deutschland sind innerhalb von zwei Jahren also deutlich gestiegen, was für dieses Projekt berücksichtigt worden ist (Tabelle 3) (siehe 4.2).

Tabelle 3: Unterschiede in NH₃-Emissionen (kT) für zwei ausgewählte landwirtschaftliche Quellgruppen im Vergleich zwischen den Berichterstattungen 2016 (UBA, 2016) und 2014 (UBA, 2014).

Sektor	Berichterstattung 2016			Berichterstattung 2014		
	2005	2010	2014	2005	2010	2014
3Da1 Mineraldünger (inklusive Harnstoff)	132,6	126,3		64,3	61,8	
3da2c Andere Wirtschaftsdünger (inklusive Gärreste)	10,0	37,0	62,5	-	-	-

2.2.2 Emissionsdaten für Europa

Für die Berücksichtigung des grenzüberschreitenden Transports ist es notwendig, die Emissionen von ganz Europa zu betrachten. Für Europa wird in dieser Studie das hochaufgelöste Emissionskataster TNO-MACC-III, eine Weiterentwicklung des in Europa breit verwendeten TNO-MACC-II-Inventars (Kuenen et al., 2014), verwendet. Dieses Inventar enthält Emissionskarten für die Jahre 2000 bis 2012. In diesem Inventar wurden, soweit wie möglich, die offiziellen Emissionen aus der Berichterstattung der Länder an die UNECE CLRTAP (für Luftschadstoffe) und die UNFCCC (für CH₄) übernommen. Die Berichterstattung enthält jedes Jahr die Emissionsdaten für alle vorausgegangenen Jahre (die in den meisten Fällen bis 1990 zurückreichen). Die in dem vorliegenden Bericht erwähnten Emissionen werden gemäß NFR- und CRF-Klassifikationen wiedergegeben. Das TNO-MACC-III-Inventar wurde auf der Grundlage des Berichts von 2014 entwickelt.

Bei Ländern, für die keine amtlich festgestellten Daten zur Verfügung standen, wurden stattdessen Emissionen des GAINS-Modells verwendet (Amann et al., 2011). Für Armenien, Aserbaidschan und Georgien stehen GAINS-Emissionen leider nicht zur Verfügung. Für diese Länder wurden stattdessen EDGAR-Emissionen (Janssen-Maenhout et al., 2015) als Alternative verwendet. Die Emissionsdaten aus unterschiedlichen Quellen basieren auf unterschiedlichen Definitionen der Sektoren. Daher wurden die Emissionsdaten in einer gemeinsamen Sektorstruktur harmonisiert, welche auf den 10 SNAP-Sektoren basiert, die normalerweise bei der Modellierung der Luftqualität verwendet werden. Die meisten SNAP-Sektoren sind in einer detaillierteren Aufspaltung der Aktivitäten weiter aufgeschlüsselt. Auf dieser Ebene wurden die Emissionen über Europa mit Hilfe einer Reihe von verfügbaren Proxy-Karten räumlich verteilt.

In dieser Studie wurden die Emissionen der europäischen Länder innerhalb von TNO-MACC-III für die Jahre 2000 bis 2012 aktualisiert und für die Jahre 2013 bis 2015 auf Basis der Berichterstattung von 2016 weitergeführt. Dies war notwendig, weil viele Länder, darunter auch Deutschland, die Emissionen der Landwirtschaft und des Verkehrs korrigiert hatten. Im Gegensatz zu den offiziell gemeldeten Länderdaten wurden die TNO-MACC-III-Emissionswerte, die aus anderen Quellen (wie GAINS oder EDGAR) stammten, nicht aktualisiert. Das bedeutet, dass die gemeldeten Daten bei einigen Ländern, deren Meldedaten für den Gebrauch in TNO-MACC-III (wegen fehlender Jahre, inkonsistenter Zeitreihen oder ähnlicher Probleme) abgelehnt wurden, in dieser Studie auch keine Berücksichtigung fanden. Meistens ist dies jedoch nur bei einzelnen EU-Staaten (Bulgarien, Rumänien, Ungarn, Griechenland)

und Nicht-EU-Staaten der Fall. Für Deutschland und dessen Anrainer wurden die zuletzt gemeldeten Emissionsdaten in den aktualisierten Datensatz eingearbeitet (siehe 4.2).

2.2.3 Integration der Emissionsdaten in die Modellierung

Die hochaufgelösten Emissionsdaten des GRETA-Tools wurden im europäischen Raster mit einer Auflösung von $0,125 \times 0,0625^\circ$ ($\approx 7 \times 7 \text{ km}^2$) integriert. Die aktualisierten Emissionsraten des TNO-MACC-III-Inventars wurden nur für die Länder außerhalb Deutschland verwendet. Das kombinierte Inventar wurde in das operationelle LOTOS-EUROS-System eingebettet.

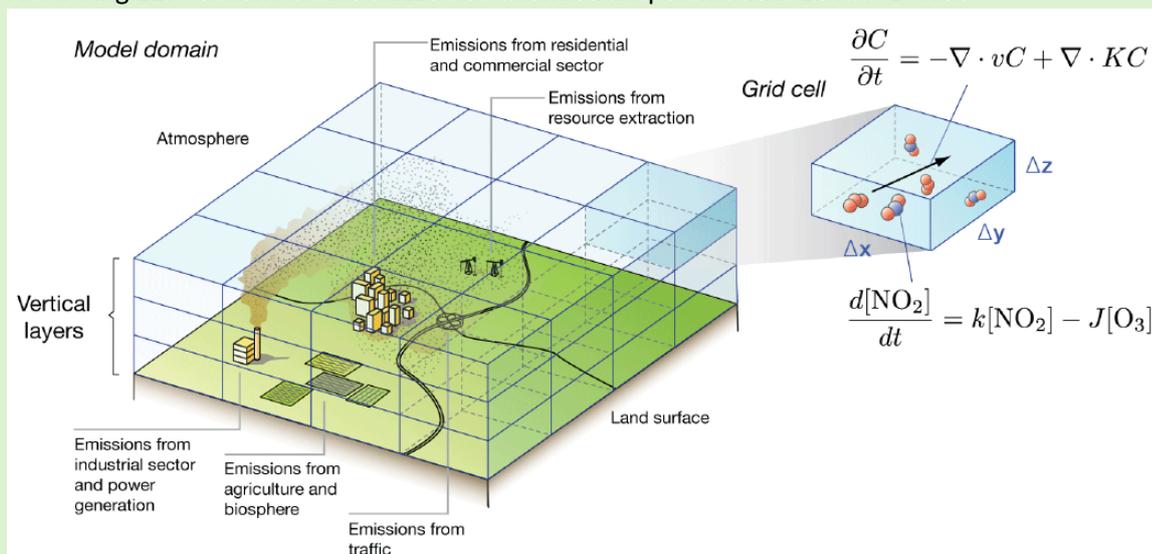
Die Berechnung der stündlichen Emissionsraten innerhalb LOTOS-EUROS erfolgt anhand fester Zeitprofile. In dieser Studie folgt man den Profilen und der Höhenverteilung des TNO-MACC-III-Inventars. Damit verschiebt sich der Verlauf der Ammoniakemissionen im Jahresgang aus der Landwirtschaft gegenüber dem Vorgängerprojekt PINETI-2 in gewissem Maß zum Frühling hin. Das Ergebnis davon ist eine verbesserte Übereinstimmung zwischen den modellierten und den gemessenen Jahresgängen der Ammoniakkonzentration und der nassen Deposition (siehe Kapitel 4.2).

Was ist LOTOS-EUROS?

LOTOS-EUROS ist ein regionales 3-D-Chemietransportmodell, welches die Prozesse der Emission, Konzentration und Deposition chemischer Stoffe in der unteren Troposphäre simuliert. Das Modell findet breite Anwendung sowohl für wissenschaftliche Forschungsarbeiten als auch für regulatorische Bewertungen, zum Beispiel für Prognosen der Luftqualität oder die Durchrechnung von Szenarien. LOTOS-EUROS wird von Wissenschaftlern und Entwicklern der Institute TNO, FUB¹, RIVM² und KNMI³ kontinuierlich weiterentwickelt und an den neuesten Stand der wissenschaftlichen Erkenntnisse angepasst.

Das Modell ist von mittlerer Komplexität, und zwar in dem Sinne, dass die Prozessbeschreibungen für die Rechenanforderungen optimiert sind. Dadurch können die Inhalte in Bezug auf Emission, Konzentration und Deposition mit einer stündlichen Frequenz über mehrere Jahre in akzeptabler Rechenzeit berechnet werden. Das Modell ist ein sogenanntes Euler-Rastermodell, was bedeutet, dass die Berechnungen auf einem festen dreidimensionalen Gitter durchgeführt werden. In diesem Raster werden die Konzentrationsänderungen durch Advektion, vertikale Durchmischung, chemische Umwandlung und Entfernung durch nasse und trockene Deposition durchgeführt. Die Skizze eines solchen Modellsystems zeigt Abbildung 12. Die Prozessbeschreibung erfordert Informationen über die anthropogenen Emissionen, die Flächennutzung und die meteorologischen Bedingungen. Die Ergebnisse des Modells werden in Ausgabedateien gespeichert, welche die modellierten Konzentrationen und Depositionsflüsse enthalten.

Abbildung 12: Schematische Skizze des Chemietransportmodells LOTOS-EUROS



Besondere Features

- LOTOS-EUROS ermittelt die trockene Deposition anhand der Widerstandsanalogie.
- LOTOS-EUROS ist in Europa das einzige Depositionsmodell mit einer Parametrisierung eines Ammoniak-Kompensationspunktes (Wichink Kruit et al., 2012a). Dadurch wird der bidirektionale Austausch von Ammoniak berücksichtigt, nach dem Ökosysteme sowohl Senke als auch Quelle sein können. Vorteile sind eine bessere Beschreibung der Realität und eine erhöhte Modellgenauigkeit.

Validierung

¹ Freie Universität Berlin

² Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu (staatliches Institut Gesundheit und Umwelt)

³ Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut (niederländisches Wetterinstitut)

- LOTOS-EUROS wird regelmäßig anhand von Messwerten aus Überwachungsnetzen (NO₂, NH₃, KRB, und so weiter) sowie Satellitendaten validiert. Seine Güte konnte bereits in verschiedenen internationalen Vergleichsstudien unter Beweis gestellt werden (Schaap et al., 2015a; Im et al., 2015, Vautard et al., 2009).
- LOTOS-EUROS modelliert eine große Anzahl inerter und chemisch aktiver Stoffe. Die Modellierung der Stoffe wurde bereits in vielen vorangegangenen Studien untersucht und validiert:
 - anorganisches Aerosol (Schaap et al., 2004b; 2011; Erisman und Schaap, 2004; Banzhaf et al., 2014)
 - Seesalz (Manders et al., 2010)
 - Feinstaub (Manders et al., 2009; Hendriks et al., 2013)
 - Ozon (Curier et al., 2012; Beltman et al., 2013)
 - Stickstoffdioxid (Schaap et al., 2013; Curier et al., 2014)
 - Ammoniak (Wichink Kruit et al., 2012a; Van Damme et al., 2014; Hendriks et al., 2016)

Siehe für weitere Informationen über LOTOS-EUROS auch: www.lotos-euros.nl/

2.2.4 Modellierung der trockenen Deposition in LOTOS-EUROS

In diesem Abschnitt werden die wesentlichen Funktionsmerkmale von LOTOS-EUROS in der Version 2.1 beschrieben, die für dieses Vorhaben zum Einsatz kam. Die Bestimmung der Verteilung zwischen der Gas- und der Aerosolphase von Ammoniak und Ammonium sowie Salpetersäure und Nitrat erfolgte mit Hilfe von ISORROPIA II (Fountoukis und Nenes, 2007). Die Reaktion von Salpetersäure mit Seesalz zu grobkörnigem Natriumnitrat fließt auf dynamische Weise in die Berechnungen ein. Diese Modellversion bietet ferner eine Methode für die pH-Wert-abhängige Simulation der Wolkenchemie (Banzhaf et al., 2012). In Bezug auf die Sättigung der Wassertropfen wird die Methode zur Beschreibung der Ausspülung von Gasen und Partikeln in und unter Wolken herangezogen (Banzhaf et al., 2012). Das LOTOS-EUROS-Modell ist eines von sehr wenigen Chemietransportmodellen mit einer Beschreibung des bidirektionalen Austauschs von NH₃ zwischen bodennahen und atmosphärischen Schichten (Wichink Kruit et al., 2012). Das DEPAC-Modul für die Modellierung des Austauschs zwischen bodennahen und atmosphärischen Schichten wird für die trockene Deposition von Gasen angewendet (Van Zanten et al., 2010). Das in LOTOS-EUROS vorhandene Modul wurde erweitert, so dass nunmehr auch der Effekt der kombinierten Deposition von Schwefeldioxid und Ammoniak berücksichtigt wird. Die Deposition von Partikeln fließt mit Hilfe der geänderten Methodik von Zhang et al. (2001) in das Modell ein.

Der Fluss F der trockenen Deposition errechnet sich aus der Konzentration C der Substanz in einer Referenzhöhe, dem Kompensationspunkt (C_{comp}) und verschiedenen Widerständen (turbulenter Transferwiderstand R_a , quasi-laminarer Transferwiderstand R_b und Oberflächenwiderstand R_c):

$$F = \frac{C_a - C_{comp}}{R_a + R_b + R_c} = v_d \cdot (C_a - C_{comp}) \quad (\text{Eq. 1})$$

Die Berechnung des Flusses (F) ergibt sich in Analogie zum ohmschen Gesetz der Elektrizitätslehre, wonach der elektrische Strom (I) aus dem Quotienten von Potentialdifferenz (der Spannung $U_1 - U_2$) und ohmschem Widerstand (R) berechnet wird. Im Analogiemodell wird dabei der elektrische Strom durch den atmosphärischen Fluss ersetzt, so dass der elektrischen Spannung eine Konzentrationsdifferenz ($C_a - C_{comp}$) und der ohmsche Widerstand (R) zugeordnet werden kann. Vertikale Stoffflüsse zwi-

schen Vegetation/Boden und Atmosphäre werden dabei von einem Transportwiderstand, der die turbulenten (Ra) und laminaren (Rb) Transportphänomene der Atmosphäre und des Bestands repräsentiert, sowie einem Oberflächenwiderstand (Rc) gesteuert. Die Spurengasaufnahme durch die Vegetation über die Stomata (interne Blattoberflächen) oder Cuticula (externe Blattoberflächen) wird von zahlreichen meteorologischen und auch Bodenparametern wie Strahlung, Temperatur, Luft- und Bodenfeuchte und so weiter beeinflusst. Dies wird im Modell anhand des DEPAC-Moduls (Van Zanten et al., 2010) über den sogenannten Oberflächenwiderstand erfasst.

Der Kehrwert der Summe der Widerstände wird auch Depositionsgeschwindigkeit (v_a) genannt. Die trockene Deposition bildet für die Masse in einer Gitterzelle des Chemietransportmodells einen Verlustterm. In PINETI ist die Berechnung der trockenen Deposition direkt in der Massenbilanzberechnung enthalten, um die Erhaltung der Masse im Modellsystem zu gewährleisten.

Für die meisten Schadstoffe ist der Kompensationspunkt gleich null. Die bedeutendste Ausnahme bildet dabei Ammoniak. Ammoniak-Lösungen besitzen einen Dampfdruck. Daher kann es zu Emissionen aus dem Bestand kommen, wenn die atmosphärische Konzentration geringer ist als der Dampfdruck. Bei NH_3 können sich daher bidirektionale Flüsse bilden. In der Modellierung wird auf die lufttemperaturabhängige Berechnung des Kompensationspunkts für NH_3 nach Wichink Kruit et al. (2012) zurückgegriffen. Bisher ist LOTOS-EUROS das einzige europäische Chemietransportmodell, in dem der Kompensationspunkt berücksichtigt wird (Schaap et al. 2017).

Für die Auswertung der Ergebnisse wird auch die effektive Depositionsgeschwindigkeit verwendet. Diese darf nicht mit der mittleren Depositionsgeschwindigkeit verwechselt werden. Die effektive Depositionsgeschwindigkeit wird berechnet, indem man die Jahresfracht durch die Jahresdurchschnittskonzentration teilt. Dabei fließt somit auch der Kompensationspunkt in die Austauschgeschwindigkeit ein. Daher ist die effektive Depositionsgeschwindigkeit oder Austauschgeschwindigkeit vor allem in Quellgebieten von Ammoniak deutlich geringer als die mittlere Depositionsgeschwindigkeit. Dies zeigt sich auch bei Messkampagnen in Deutschland (Zöll et al., 2016).

Innerhalb PINETI-3 wurden einige methodische Änderungen in der Modellierung durchgeführt. Diese Änderungen umfassen:

- Umstellung auf GRETA Emissionen für Deutschland (statt PAREST)
- Umstellung auf TNO-MACC-III Emissionen basierend auf der Berichterstattung von 2016 für weitere Europäische Länder
- Anpassung des Jahresgangs der Ammoniak-Emissionen
- Umstellung auf einen meteorologischen Datensatz des ECMWFs mit erhöhter räumlicher Auflösung
- Einzelne Bug-fixes im LOTOS-EUROS Modell
- Anpassung der Rauigkeit von Agrarland im Winter (nach unten)

Auf die Änderungen in der Modellierung und deren Effekte auf die Ergebnisse wird in Kapitel 5 detailliert eingegangen.

2.2.4.1 Modellierung landnutzungsspezifischer Datensätze

Die Ergebnisse des LOTOS-EUROS-Modellgitters (trockene Deposition) werden vom $7 \times 7 \text{ km}^2$ -Gitter auf ein $1 \times 1 \text{ km}^2$ -Raster interpoliert. Innerhalb einer $7 \times 7 \text{ km}^2$ großen Gitterzelle (aber auch innerhalb einer $1 \times 1 \text{ km}^2$ -Gitterzelle) können unterschiedliche Vegetationstypen mit daraus resultierenden Depositionsflüssen vorkommen, die deutlich voneinander abweichen. Die Werte in jeder $7 \times 7 \text{ km}^2$ -Gitterzelle werden aus den landnutzungsabhängigen Depositionsflüssen und dem jeweiligen Anteil der

entsprechenden Landnutzungsclassen innerhalb der Gitterzelle berechnet. Je Gitterzelle ergeben sich im Resultat rechnerische Mischdepositionsflüsse, die sich durch Landnutzungsverteilung, also die Anteile der Landnutzungsclassen innerhalb einer Gitterzelle, ergeben. Für die Genehmigungspraxis ist im Gegensatz dazu die Kenntnis der Flüsse für eine einzelne Landnutzungsclassen (am Beurteilungspunkt) erforderlich. Dafür werden die landnutzungsabhängigen Depositionsdatensätze direkt benötigt. Auch für den Fall, dass ein höher aufgelöster Landnutzungsdatensatz zur Verfügung steht, können anhand landnutzungsabhängiger Depositionskarten höher aufgelöste Informationen aus den Daten gewonnen werden. Letzteres findet für die Berechnung der Überschreitungen der Critical Load unter Verwendung der CLC2012-Landnutzungsdaten statt.

Zur Erstellung der landnutzungsspezifischen trockenen Depositionskarten wird innerhalb der Modellierung angenommen, dass es in allen Gitterzellen mindestens einen Quadratmeter der 10 betrachteten LOTOS-EUROS-Landnutzungsclassen gibt. Die ermittelten Flüsse pro Landnutzungsclassen werden separat ausgeschrieben.

Für die Berechnung der Konzentrationsänderungen der Gase und Partikel durch trockene Deposition in der Modellberechnung werden die landnutzungsabhängigen Depositionsflüsse und die jeweiligen Flächen der entsprechenden Landnutzungsclassen berücksichtigt. Also, für eine Gitterzelle ohne Laubwald steht zwar ein rechnerischer Fluss für Laubwald zur Verfügung, dieser bekommt aber eine Nullgewichtung in der Modellierung der Massenbilanz im CTM.

Auf diese Weise stehen nach der Modellierung 11 Depositionsergebnisse je Gitterzelle zur Verfügung: Eine landnutzungsgewichtete Mischdeposition, die die Grundlage für die Konzentrationsänderung- und Weitergabe an die nächsten Gitterzellen ist, und 10 landnutzungsspezifische theoretische Flüsse als Grundlage für die Mischdeposition.

Die Karten der landnutzungsspezifischen Flüsse werden auf ein $1 \times 1 \text{ km}^2$ -Raster interpoliert und bilden die Grundlage der Daten für den Kartendienst des UBA (<http://gis.uba.de/website/depo1/>).

Für die Erstellung der Depositionskarte auf Basis der realen Landnutzungsverteilung wird ein $1 \times 1 \text{ km}^2$ Raster anhand des realen Landnutzungsmosaiks und der landnutzungsabhängigen Depositionskarten gebaut. Weil die Landnutzungsdatenbasis die gleiche ist, sind die Flächen der betrachteten Landnutzungen innerhalb die $7 \times 7 \text{ km}^2$ Zelle gleich, wodurch Konsistenz gewährleistet ist.

Steht also ein höher aufgelöster Landnutzungsdatensatz zur Verfügung, so können anhand der landnutzungsabhängigen Depositionskarten höher aufgelöste Informationen aus den Daten gewonnen werden. Letzteres findet für die Berechnung der Überschreitungen der Critical Load unter Verwendung der CLC2012-Landnutzungsdaten statt. Die Bereitstellung der landnutzungsabhängigen Depositionskarten ermöglicht auch Flüsse für Flächen, die falsch klassifiziert sind, abzuschätzen.

An dieser Stelle möchten wir darauf hinweisen, dass die Berechnung der deutschlandweiten Mittelwerte der landnutzungsspezifischen, flächendeckenden Karten in diesem Bericht zum einen auf Basis der realen Landnutzungsverteilung durchgeführt wurde und zum anderen unter der Annahme, dass es in jeder Gitterzelle in Deutschland mindestens einen Quadratmeter aller Landnutzungsclassen gäbe (theoretischer Fall) erfolgte (siehe Kapitel 3.3).

2.3 Ermittlung der nassen Deposition

Im Rahmen dieser Studie wurde die von Wichink Kruit et al. (2014) entwickelte "Residual Kriging"-Methodik verwendet, um die Verteilung der Regenwasserkonzentration über Deutschland zu simulieren. Bei diesem Verfahren erfolgt eine Interpolation der Differenz zwischen den Messwertabweichungen und einer Apriori-Verteilung (der mit LOTOS-EUROS simulierten Konzentration des Niederschlagswassers). Zu diesem Zweck wird die räumliche Korrelation zwischen den Zeitreihen in Bezug auf die Differenz zwischen den modellierten und gemessenen Niederschlagskonzentrationen für Stationspaare (als Funktion der Entfernung zwischen den Stationen) analysiert. Das so erstellte Korrelationsmodell dient als Basis für das Kriging-Verfahren, in dem die simulierten jährlichen durchschnittlichen Niederschlagskonzentrationen entsprechend den gemessenen jährlichen durchschnittlichen Niederschlagskonzentrationen berichtigt werden. Eine umfassendere Beschreibung des Kriging-Verfahrens findet sich in Wichink Kruit et al. (2014).

2.3.1 Measurement data

Die Konzentrationen der einzelnen Verbindungen in den Niederschlägen über Deutschland werden von einem flächendeckenden Messnetz erfasst, das im Rahmen verschiedener nationaler und regionaler Überwachungsprogramme betrieben wird, die in Tabelle 4 aufgeführt sind. Die Zahl der Messstationen des deutschen UBA-Netzes und der einzelnen regionalen Netze schwankt während des Zeitraums 2000 bis 2014 (die Zahlen für die einzelnen Jahre werden im Folgenden wiedergegeben und behandelt). Während der Messintervall im UBA-Messnetz eine Woche beträgt, sind die Intervalle der regionalen Netze unterschiedlich lang und erfolgt die Messung hier wahlweise im Abstand von einer Woche, zwei Wochen, vier Wochen oder einem Monat. Die Beprobungstakte der regionalen Netze sind nicht synchronisiert. Die Datenbank für die nasse Deposition wird derzeit von dem UBA verwaltet; dorthin werden alle von den Messnetzbetreibern gesammelten Daten übermittelt. Für die vorliegende Studie wurde ein Auszug aus dieser Datenbank vom Juni 2017 verwendet. Vorgelegt wurden Niederschlagshöhen, Merker für Qualitätsbewertung und Qualitätssicherung (QAQC, Quality Assessment and Quality Control), die Konzentrationen von SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Mg^{2+} , Na^+ , Ca^{2+} , K^+ und Cl^- sowie der pH-Wert von Niederschlagswasser.

An den verfügbaren Messstationen kommen verschiedene Arten von Beprobungsvorrichtungen für die mengenmäßige Bestimmung der nassen Deposition zum Einsatz. Bei diesen Vorrichtungen lassen sich zwei Ausführungen unterscheiden: solche, mit denen nur die nasse Deposition registriert wird, und solche für die Bulk-deposition. Bei den letztgenannten Massenbeprobungsvorrichtungen werden die Niederschläge in einem Eimer aufgefangen, der ständig offen ist. In den meisten Fällen sorgt ein Schutznetz oder Ähnliches dafür, dass keine Blätter in den Trichter fallen. Bei dieser Methode der Probenahme ist eine leichte Tendenz zu überhöhten Messwerten für die nasse Deposition gegeben, da es bei trockener Witterung zu trockener Deposition kommen kann. Im Gegensatz dazu steht der Trichter bei einer reinen Nassbeprobungsvorrichtung (Wet-only) nur dann für die Aufnahme von Depositionen offen, wenn es regnet; ein Sensor registriert eventuellen Regenfall. Zu Beginn eines Regenereignisses öffnet sich der Deckel automatisch; wenn der Regen aufhört, schließt er sich wieder. In Deutschland werden die Daten überwiegend mit Bulk-Samler gesammelt. Um die von diesen Vorrichtungen stammenden Daten für die vorliegende Analyse nutzen zu können, bedürfen sie einer Berichtigung, damit die Werte nicht durch die trockene Deposition in den Trichtern verfälscht werden. Die Korrektur erfolgt auf der Grundlage früherer Untersuchungen, bei denen Messungen zeitgleich sowohl mit Wet-only als auch mit Bulksammler stattfanden (Gauger et al., 2000, 2008). Die mit den Bulk-Sammler gemessenen Werte werden mit Hilfe mittlerer Korrekturfaktoren für die einzelnen Verbindungen nach Gauger et al. (2008) auf Nassdepositionswerte reduziert; siehe dazu Tabelle 5. Die Umrechnung von Bulk- in Nassdepositionswerte erfolgt für jene Stationen, die das im nächsten Abschnitt beschriebene QAQC-Verfahren mit gutem Ergebnis durchlaufen haben.

Tabelle 4: Monitoringmessnetze, deren Depositionsdaten verwendet wurden

Bundesland	Netzwerk	Anzahl Standorte
Brandenburg	Landesamt für Umwelt, Gesundheit und Verbraucherschutz Brandenburg (Wassergütemessnetz)	3
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring Berlin-Brandenburg	6
Berlin	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring Berlin-Brandenburg	3
Baden-Württemberg	Forstliche Versuchs- und Forschungsanstalt Freiburg, Abteilung Boden und Umwelt	29
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring Baden-Württemberg	18
Bayern	Bayerisches Landesamt für Umwelt, Referat 16, Medienübergreifende Umweltbeobachtung	31
	Bayerisches Landesamt für Umwelt, Referat 83, Hydrologie des Grundwassers	11
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring Bayern	23
Hessen	Nordwestdeutsche Forstliche Versuchsanstalt - Abteilung Umweltkontrolle, SG 1	5
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring der NW-FVA	13
Mecklenburg-Vorpommern	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring Mecklenburg-Vorpommern	2
Niedersachsen	Niedersächsischer Landesbetrieb für Wasserwirtschaft, Küsten- und Naturschutz; Geschäftsbereich Gewässerbewirtschaftung, Flussgebietsmanagement	58
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring der NW-FVA	8
Nordrhein-Westphalen	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring der NRW	8
Rheinland-Pfalz	Forschungsanstalt für Waldökologie und Forstwirtschaft Rheinland-Pfalz, Ref. 6.2 Waldmonitoring und Umweltvorsorge	5
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring der FAWF	7
Schleswig-Holstein	Landesamt für Landwirtschaft, Umwelt und ländliche Räume des Landes Schleswig-Holstein, Technischer Umweltschutz, Lufthygienische Überwachung Schleswig-Holstein	25

Bundesland	Netzwerk	Anzahl Standorte
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring der NW-FVA	1
Saarland	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring Saarland	1
	Landesamt für Umwelt- und Arbeitsschutz, Fachbereich Bodenschutz und Waldökologie	8
Sachsen	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des des Staatsbetriebs Sachsenforst	8
Sachsen-Anhalt	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag des forstlichen Umweltmonitoring Sachsen	3
Thüringen	Thüringenforst - Forstliches Forschungs- und Kompetenzzentrum, Referat Monitoring, Klima und Forschung	7
	Thünen Institut für Waldökologie und Waldinventuren, im Auftrag von Sachsenforst	7
Bund	Umweltbundesamt	17
GESAMT		307

Tabelle 5: Durchschnittliches Verhältnis zwischen gemessenen Flüssen von Wet-Only- und Bulk-sammler (Gauger et al., 2008)

	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	SO ₄ ²⁻ -S	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	pH	mm	H ⁺
Anzahl Simultanmessungen	66	65	67	67	87	54	86	79	35	54	37
mittleres Verhältnis Wet-only/Bulk	0,62	0,63	0,76	0,81	0,82	0,85	0,9	0,95	0,97	1,03	1,34
Maximum	1,44	1,77	1,36	1,47	1,07	1,42	2,01	1,79	1,06	3,00	3,17
Minimum	0,09	0,21	0,18	0,22	0,26	0,32	0,3	0,29	0,83	0,84	0,48
Standardabweichung	0,24	0,24	0,25	0,2	0,17	0,19	0,22	0,25	0,06	0,29	0,62

2.3.2 Qualitätsbewertung und Qualitätssicherung

Obwohl Maßnahmen zur Qualitätssicherung von den unabhängigen Messnetzen durchgeführt werden, ist der Datensatz nicht homogen. Aus diesem Grund kommen ein QAQC-Protokoll und ein Datenauswahlverfahren aus eigenem Hause zur Anwendung. Daten fließen nur dann in die Berechnung eines Jahresmittelwerts und in die weiteren Analysen ein, wenn sie mindestens 40 Prozent eines bestimmten Jahres abdecken. Für Datenlücken an einer Messstation gibt es mehrere Gründe; so kann es zum

Beispiel sein, dass Daten nicht übermittelt werden, die Niederschläge zu gering sind oder ganz ausbleiben, die Ionenbilanz starke Abweichungen aufweist oder Ausreißer auftreten. Bei der Auswahl der Stationen für das räumliche Interpolationsverfahren wird jede Zeitreihe auf diese Punkte hin geprüft. In den folgenden Abschnitten wird näher auf die Datenmindestmenge und auf die Faktoren eingegangen, die Einfluss auf die Datenverfügbarkeit haben.

Für das Kartierungsverfahren wird die durchschnittliche jährliche Niederschlagskonzentration benötigt. Diese Konzentration wird dadurch berechnet, dass man den jährlichen Gesamtfluss durch die jährliche Gesamtniederschlagshöhe teilt. Bei der Festlegung eines Kriteriums für die Datenverfügbarkeit muss ein Kompromiss zwischen einer möglichst großen Zahl von Stationen einerseits und der Wahrung einer hohen Datenqualität andererseits gefunden werden. Aus diesem Grund wurde eine Datenverfügbarkeit von 40 Prozent als Beteiligungskriterium gewählt; dabei hält sich die Zahl der ausgesonderten Stationen in Grenzen, während dieser 40-prozentige Durchschnittswert nach wie vor repräsentativ für den tatsächlichen Jahresdurchschnitt ist. Die Annahme, dass der jährliche Durchschnittswert von Stationen mit einer gültigen Datenmenge von 40 Prozent oder mehr repräsentativ für deren jährlichen Durchschnittswert ist, wurde im Rahmen des PINETI-1 Projekts aufgestellt und in dem dazugehörigen Bericht anhand mehrerer Teilmengen eines Datensatzes mit 52 wöchentlichen Messungen in Neuglobsow belegt (siehe Abbildung 14 in Wichink Kruit et al., 2014).

Um den Prozentsatz der gültigen Stationsdaten zu bestimmen, werden zunächst alle Proben in eine Gültigkeits- beziehungsweise mehrere Ungültigkeitsklassen eingeordnet. Letztere gliedern sich in die folgenden Kategorien:

Fehlende Daten: Es liegen keine Messdaten vor.

Fehlende Niederschläge: Im Erfassungszeitraum hat es nicht geregnet.

Mangelnde Niederschläge: Wegen zu geringer Niederschläge während des Erfassungszeitraums war keine chemische Analyse möglich.

Fehlende Analyse: Wegen fehlender chemischer Analyse einer oder mehrerer Verbindungen war keine QAQC möglich.

Ionenbilanz: Die Netto-Ionenbilanz beträgt mehr als ungefähr 20 Prozent.

Ausreißer: Ausreißerprüfung nicht bestanden.

Die drei ersten Indikatoren werden von den Messnetzen gemeldet. In Gesprächen mit den Messnetzbetreibern wurde darauf hingewiesen, dass manchmal fälschlicherweise fehlende Daten gemeldet werden. Wenn die Station nicht zugänglich oder eine Probe eingefroren ist, erfolgt kein Austausch von Proben. Das bedeutet, dass die Probenahme bei der nächsten Sammelrunde stattfindet und dabei angegeben wird, dass für die Probe keine Daten verfügbar sind, während der betreffende Zeitraum sehr wohl erfasst worden ist. Diese Situation kommt selten vor, kann jedoch im Winter an einigen Standorten in Bergregionen eine Rolle spielen.

Im Rahmen des QAQC-Verfahrens für dieses Projekt wurde für alle Proben die Ionenbilanz berechnet. Die Netto-Ionenladung dieser Konzentrationen soll nahe bei null liegen; sie sollen somit keine positive oder negative Vorspannung aufweisen. Wenn die Netto-Ionenladung mehr als ungefähr 20 Prozent beträgt, wird die Messung zurückgewiesen. Die Ionenbilanz (IB) wird in dem Qualitätssicherungshandbuch des UBA-Überwachungsnetzes (2004), dem EMEP-Programm (EMEP, 1996) und dem WMO-GAW-Bericht 160 (2004) mit der folgenden Gleichung beschrieben:

$$IB[\%] = \frac{(NH_4^+ + Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^+ + Na^+ + H^+) - (SO_4^{2-} + NO_3^- + Cl^- + HCO_3^-)}{(NH_4^+ + Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^+ + Na^+ + H^+) + (SO_4^{2-} + NO_3^- + Cl^- + HCO_3^-)} \cdot 100$$

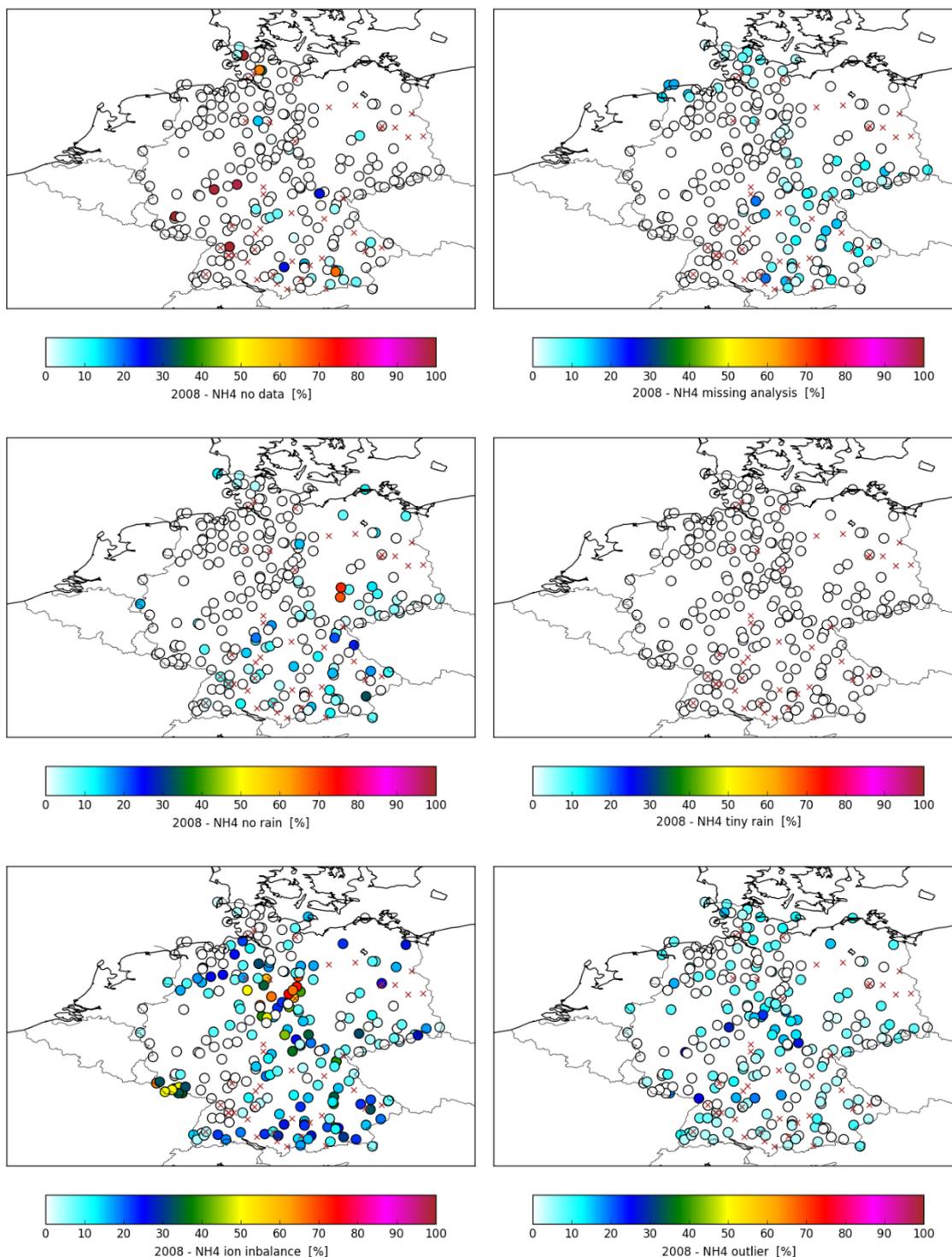
Die Konzentrationen sind in meq/l angegeben. Um die Ionenbilanz berechnen zu können, müssen mit der Niederschlagsanalyse alle relevanten Verbindungen ermittelt werden. Wenn eine oder mehrere der relevanten Verbindungen fehlen, kann das betreffende Messereignis oder sogar der gesamte Datensatz für dieses Projekt nicht mehr verwendet werden, da die Qualität nicht überprüfbar ist. Dies wird in der obenstehenden Klassifikationsliste mit "Fehlende Analyse" angegeben.

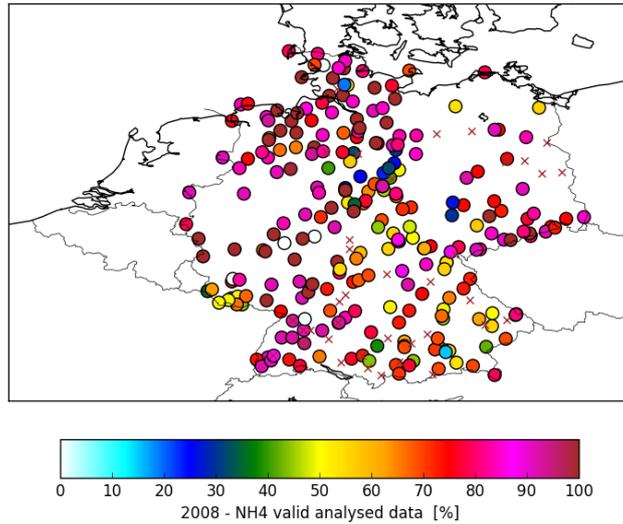
Darüber hinaus findet, um Ausreißer zu eliminieren, für die Zeitreihe einer jeden Station ein statistischer Ausreißertest statt. Der dafür verwendete Algorithmus stellt eine Anwendung des Grubbs-Prüfverfahrens dar (Grubbs, 1969). Der Ablauf ist in dem Sinne iterativ, dass das Verfahren nach der Erkennung und Eliminierung eines Ausreißers so lange wiederholt wird, bis keine Ausreißer mehr festgestellt werden oder zu viele Einträge in der Zeitreihe eliminiert worden sind. Da die Daten für das „Residual Kriging“ einer logarithmischen Transformation unterzogen werden, wird das Verfahren auf die Zeitreihe der Log-Konzentrationen angewendet.

Es kann vorkommen, dass zwei oder mehr Stationen eines Messnetzes nahe beieinander liegen. Wenn die an diesen Stationen gemessenen Werte sehr unterschiedlich ausfallen, kann das Kriging-Verfahren zu unrealistischen Gradienten in der Nähe dieser Stationen führen, da bei dem derzeitigen Verfahren lediglich ein Variogramm-Modell für die gesamte Domäne verwendet wird. Für den angenommenen Beobachtungsfehler wird bei dieser Annahme ein Durchschnittswert angesetzt, der kleiner sein kann, als es der örtlich angetroffene Unterschied zwischen nahe beieinander liegenden Standorten vermuten lässt. Um dieses Problem zu vermeiden, werden die Zeitreihen von Stationen, die sich in einem Umkreis von ungefähr 1 Kilometer zueinander befinden, durch einen einzigen Durchschnittswert ersetzt. Für die gesamte Zeitreihe erfolgte diese Kombination von Messwerten nahe beieinander gelegener Stationen bei jeweils vier Stationspaaren in Baden-Württemberg und Hessen, sechs Stationspaaren in Bayern, jeweils einem Stationspaar in Rheinland-Pfalz, Sachsen-Anhalt und dem UBA-Messnetz sowie zwei Stationspaaren in Schleswig-Holstein. Wir weisen mit Nachdruck darauf hin, dass auf der Liste der nahe beieinander gelegenen Stationen auch solche Stationen aufgeführt sein können, die ersetzt oder an einen neuen, nahe gelegenen Standort verlegt worden sind.

In Abbildung 13 werden die Ergebnisse des QAQC-Verfahrens für die Ammoniummessungen im Jahr 2008 dargestellt. Stationen, die im Zeitraum 2000 bis 2015 für mindestens ein Jahr, nicht jedoch für das Stichjahr, hier also 2008, verfügbar waren, sind mit roten Kreuzen gekennzeichnet. Allgemein wird der Erfassungsgrad nur in geringem Maße durch Ausreißer sowie fehlenden oder mangelnden Regen beeinträchtigt, da zumeist weniger als 10 bis 15 Prozent der Daten von diesen Faktoren betroffen sind. Nur in Bezug auf die Ungültigkeitsklassen "Fehlende Daten" und "Fehlende Analyse" liegen die Werte bei einer Reihe von Standorten bei 20 Prozent oder mehr. In den meisten Fällen wurden Daten als ungültig gekennzeichnet, weil sie die Kriterien der Ionenbilanz-Prüfung nicht erfüllten. Für die nationalen und regionalen Messnetze liegt die Menge der wegen Ionenungleichgewichten zurückgewiesenen Daten im Bereich von 0 bis 60 Prozent (Schautafel links unten in Abbildung 13).

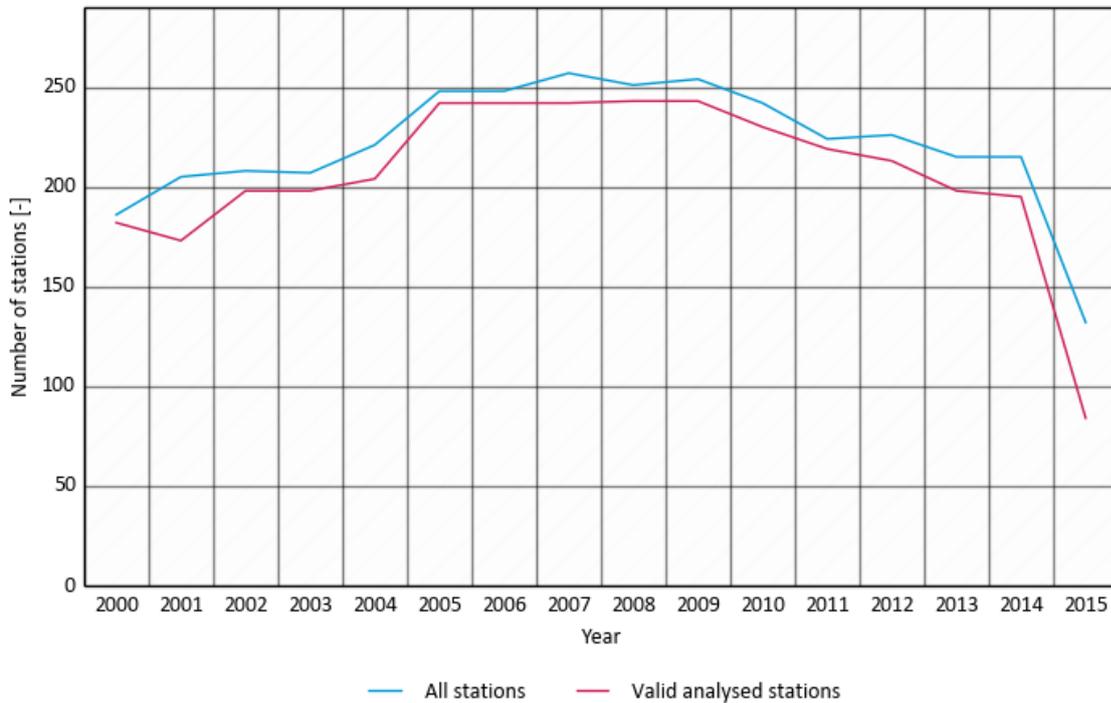
Abbildung 13: Teilmengen der Ammoniumkonzentrationswerte in den Daten aus den nationalen und regionalen Überwachungsnetzen, die aus gegebenem Grund zurückgewiesen wurden. Im unteren Diagramm sind jene Daten dargestellt, die für eine Nutzung im Kriging-Verfahren zugelassen werden können





Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 14: Gesamtzahl der Stationen und Gesamtzahl der gültigen Stationen (also der Stationen, die das Kriterium einer jährlichen Datenverfügbarkeit von 40 Prozent erfüllen) für den Betrachtungszeitraum 2000 bis 2015



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Das QAQC-Verfahren wurde für alle untersuchten Jahre (2000 bis 2015) durchlaufen; daraus resultierte für die Zeitreihe als Ganzes eine spezifische Zahl von gültigen analysierten Stationen. In Abbildung 14 wird die Gesamtzahl der Stationen und die Gesamtzahl der gültigen analysierten Stationen

(also der Stationen, die das Kriterium der jährlichen Datenverfügbarkeit von 40 Prozent erfüllen) für den gesamten Zeitraum von 2000 bis 2015 dargestellt. Wie aus Abbildung 14 hervorgeht, ist der Unterschied zwischen der Gesamtzahl der Stationen und der Zahl der gültigen analysierten Stationen im Betrachtungszeitraum recht stabil. Die meisten Stationen sind für die Jahre 2005 bis 2010 verfügbar. Die geringere Stationsverfügbarkeit zu Beginn des Zeitraums lässt sich zum größten Teil aus der Tatsache erklären, dass nicht alle Messnetze ihre Daten für die ersten Jahre nach der Jahrtausendwende vorgelegt haben. Die geringere Stationsverfügbarkeit zum Ende des Zeitraums ist entweder auf eine Reduzierung der Beobachtungsstationen bei vielen Netzen oder auf die Tatsache zurückzuführen, dass die neuesten Daten noch nicht von den Netzen analysiert wurden und nicht rechtzeitig genug vorgelegt werden konnten, um in dieses Projekt einfließen zu können.

2.3.3 Niederschlagsfelder

Bei den Projekten PINETI und PINETI-2 wurde eine hochauflösende Niederschlagsklimatologie ($1 \times 1 \text{ km}^2$) des Deutschen Wetterdienstes für die Ableitung der Depositionsflüsse verwendet. Die Verteilung der nassen Deposition (mit einer Auflösung von $1 \times 1 \text{ km}^2$) wird für alle Spezies ermittelt, indem man die Niederschlagsfelder mit den gekrigten Feldern der Niederschlagskonzentrationen multiplizierte. Der Deutsche Wetterdienst bietet zwei verschiedene Niederschlagsdatensätze an:

1. ein Klimamodell auf der Grundlage des Ansatzes von Müller-Westermeier (Müller-Westermeier, 1995), im Weiteren bezeichnet als RSMS-Datensatz
2. den REGNIE-Datensatz (Regionalisierung der Niederschlagshöhen), der in Rauthe et al. (2013) detailliert beschrieben wird

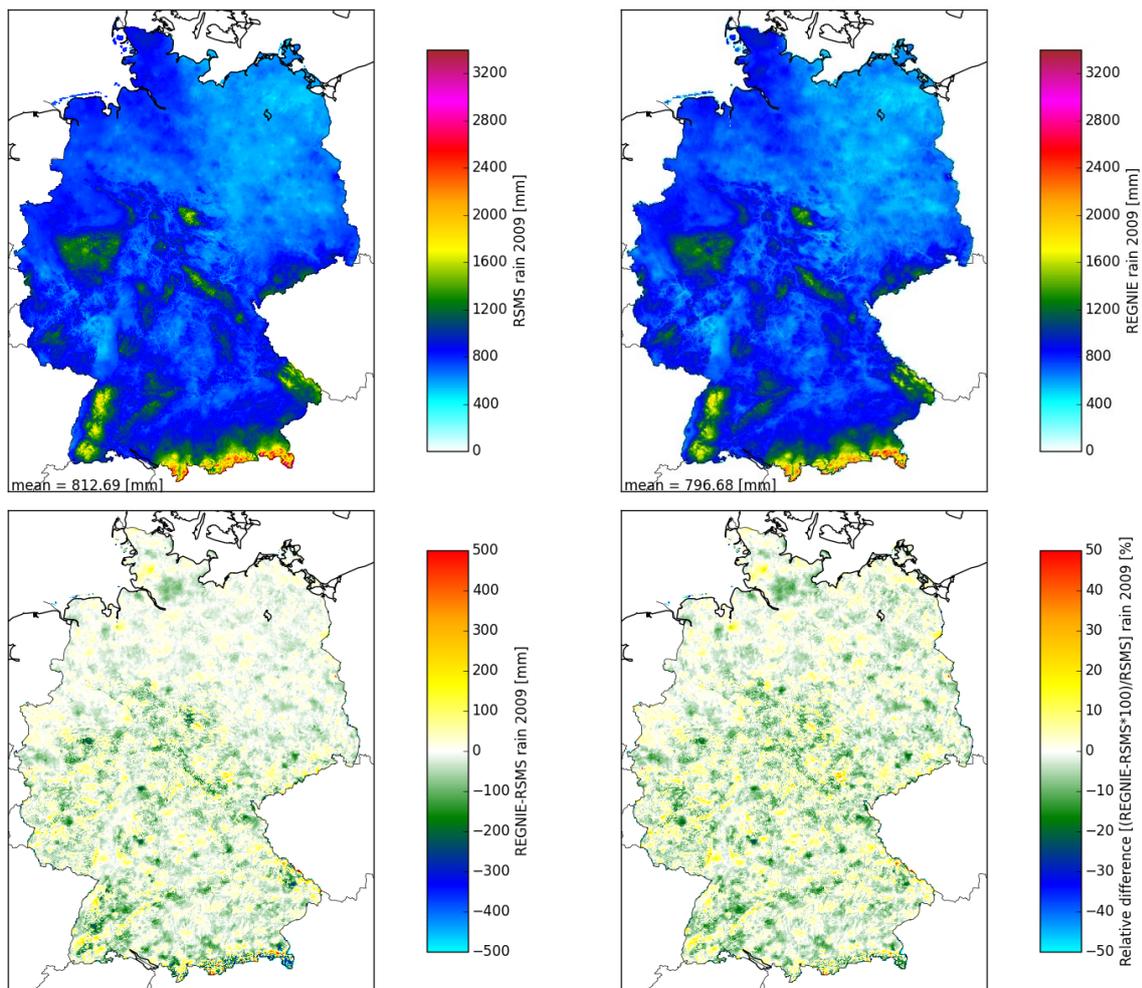
Für beide Datensätze ist eine Horizontalauflösung von $1 \times 1 \text{ km}^2$ verfügbar. Während der RSMS-Datensatz lediglich Monatsintervalle bietet, enthält der REGNIE-Datensatz Tagesdaten. Der RSMS-Datensatz reicht deshalb bis in das Jahr 1891 zurück, während der REGNIE-Datensatz erst 1951 beginnt. Darüber hinaus liegt dem REGNIE-Datensatz ein Koordinatennetz aus geografischer Länge und Breite zugrunde, während der RSMS-Datensatz auf dem Gauß-Krüger-Koordinatensystem basiert. In PINETI-III wurde zur Quantifizierung der nassen Deposition auf den REGNIE-Datensatz umgestellt.

Beide Datensätze wurden durch die Interpolation von Messdaten unter Berücksichtigung der orografischen Bedingungen erstellt. Der REGNIE-Datensatz basiert auf einer Kombination von multipler linearer Regression unter Berücksichtigung von Orografie und inverser Distanzgewichtung. Zu den orografischen Faktoren, die in die Berechnung eingeflossen sind, zählen unter anderem Geländehöhe, Lage und Neigung. Dem RSMS-Datensatz liegt ein geostatistischer Ansatz mit einer linearen Regression zwischen Niederschlag und der Höhe über dem Meeresspiegel zugrunde. Daher fand als orografischer Faktor nur die Geländehöhe Berücksichtigung. Nach Müller-Westermeier (1998) weist der RSMS-Datensatz in Bezug auf die durchschnittliche jährliche Niederschlagshöhe eine mittlere Abweichung von 8 Prozent auf. Rauthe et al. (2013) haben für die tägliche Gesamtniederschlagshöhe im Zeitraum 1951 bis 2005 auf deutschem Gebiet eine relative Durchschnittsabweichung von weniger als 6 Prozent ermittelt. Ein Hauptvorteil des REGNIE-Verfahrens ist, dass die gemessenen Niederschlagsmengen erhalten bleiben; im Gegensatz zu anderen Interpolationsverfahren, bei denen eine Glättung erfolgt, werden die beobachteten Starkniederschlagsereignisse deshalb ebenso wie Ereignisse, die nicht die Form von Niederschlägen haben, unverändert wiedergegeben (Rauthe et al., 2013).

Bisher wurde der RSMS-Datensatz in PINETI für die Berechnung der nassen Deposition verwendet. Da der REGNIE-Datensatz auf einem moderneren Interpolationsverfahren basiert, erfolgte der Vorschlag, für die Bemessung der nassen Deposition künftig die Verwendung von REGNIE-Daten in Erwägung zu ziehen. Aus diesem Grund werden im Folgenden die für das Jahr 2009 vorliegenden RSMS- und REGNIE-Datensätze miteinander verglichen, um ein Bild der eventuellen Unterschiede zu erhalten, die sich

auf die Berechnung der nassen Deposition auswirken. Für diesen Vergleich wurde der REGNIE-Datensatz auf dem Gauß-Krüger-Gitternetz abgebildet, das für den RSMS-Datensatz verwendet wird. In Abbildung 15 wird die jährliche Gesamtniederschlagshöhe aus den RSMS- und REGNIE-Datensätzen sowie deren absoluter und relativer Unterschied für das Jahr 2009 dargestellt. Im Großen und Ganzen sind die Unterschiede eher gering. Laut dem RSMS-Datensatz beträgt die durchschnittliche Gesamtniederschlagshöhe auf deutschem Gebiet 813 Millimeter, während gemäß REGNIE eine durchschnittliche Gesamtniederschlagshöhe von 797 Millimetern gegeben ist. Mit Ausnahme von Gebirgs- oder Küstenregionen wie dem Alpengebiet betragen die räumlichen absoluten und relativen Unterschiede weniger als 100 Millimeter pro Jahr beziehungsweise weniger als 10 Prozent. In Berggebieten wie zum Beispiel der Alpenregion können die relativen Unterschiede 20 Prozent betragen. Es wird jedoch mit Nachdruck darauf hingewiesen, dass die Unterschiede zwischen diesen beiden hochauflösenden Datensätzen ($1 \times 1 \text{ km}^2$) insbesondere bei komplexen Geländeformen zum Teil auf die Interpolation zurückzuführen sind, die bei der Umwandlung von dem im REGNIE-Datensatz verwendeten Länge-Breite-Koordinatensystem in das für den RSMS-Datensatz verwendete Gauß-Krüger-Koordinatensystem stattfindet.

Abbildung 15: Jährliche Gesamtniederschlagshöhe im RSMS-Datensatz (oben links) und dem REGNIE-Datensatz (oben rechts) sowie deren absoluter (unten links) und relativer (unten rechts) Unterschied (REGNIE-RSMS) für das Jahr 2009



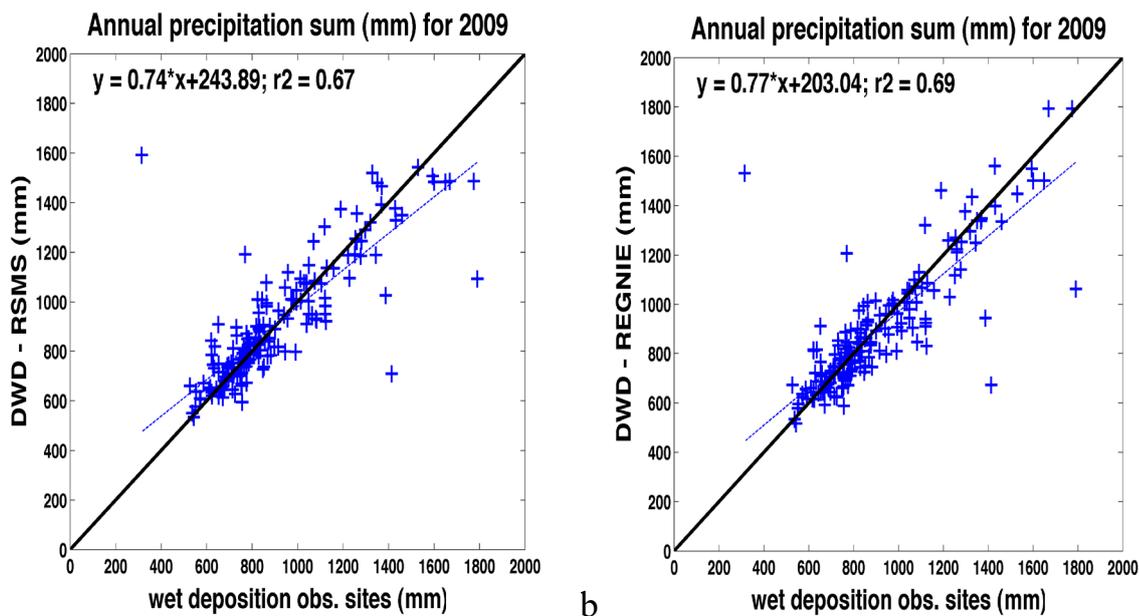
Quelle: eigene Darstellung, TNO

Ein Vergleich der beiden oberen Grafiken in Abbildung 15 zeigt, dass der REGNIE-Datensatz in den Bergregionen stärker strukturiert ist und im Bereich der Bergspitzen und umgebenden Gebiete mit geringfügig höheren Werten aufwartet. Zum Teil erklärt sich dies daraus, dass die Stationsmessungen im REGNIE-Datensatz in den jeweiligen Gitterzellen erhalten bleiben, was bedeutet, dass keine Glättung der beobachteten Starkniederschlagsereignisse erfolgt, sondern diese in dem Rasterfeld unverändert beibehalten werden.

Abbildung 16 enthält eine Gegenüberstellung einerseits der jährlichen Gesamtniederschlagshöhe in den RSMS- und REGNIE-Datensätzen und andererseits der Gesamtniederschlagshöhe, die an den Beobachtungsstellen für die nasse Deposition ermittelt wurde, die 2009 für die Depositionsmessung in Deutschland zum Einsatz kamen. Da die Werte der Messstationen für die nasse Deposition nicht in den Messdatensatz eingeflossen sind, der für die Erstellung der RSMS- und REGNIE-Niederschlagsfelder verwendet wurde, handelt es sich somit um eine unabhängige Beurteilung der Datensätze. Allerdings ist die Qualitätskontrolle der Niederschlagsmessungen bei den für die nasse Deposition eingesetzten Stationen weniger streng als bei den Beobachtungsstationen des Deutschen Wetterdienstes, deren Werte für die RSMS- und REGNIE-Datensätze verwendet wurden. Darüber hinaus wurden die Daten bei den für die nasse Deposition eingesetzten Stationen nicht täglich, sondern wöchentlich, zweiwöchentlich oder sogar nur monatlich gemessen. Wie in Abbildung 16 ersichtlich ist, sind das Bestimmtheitsmaß (r^2) und die Steilheit der Regressionsgeraden gegenüber den REGNIE-Daten etwas höher als gegenüber den RSMS-Daten. Beim REGNIE-Datensatz ist die räumliche Korrelation größer und die Unterbewertung der höchsten Werte weniger ausgeprägt als beim RSMS-Datensatz. Dies erklärt sich zum Teil aus der moderneren Interpolationsmethode, die für den REGNIE-Datensatz verwendet wird und sich durch eine detailliertere Wiedergabe der orografischen Merkmale (wobei nicht nur die Geländehöhe, sondern auch Lage und Neigung berücksichtigt werden) sowie den Erhalt der Stationsmesswerte in den jeweiligen Gitterzellen auszeichnet.

Im vorliegenden PINETI-III Projekt wurde mit dem REGNIE-Datensatz gerechnet.

Abbildung 16: Vergleich zwischen der jährlichen Gesamtniederschlagshöhe im RSMS- (links) und REGNIE-Datensatz (rechts) sowie der Gesamtniederschlagshöhe, die an den Beobachtungsstellen für die nasse Deposition gemessen wurde, die 2009 für die Bestimmung der Gesamtdeposition in Deutschland zum Einsatz kamen



Quelle: eigene Darstellung, TNO

2.4 Ermittlung der okkulten Deposition

Nährstoff- oder Schadstoffeinträge, die mit der Ablagerung von Nebel- oder Wolkentropfen einhergehen, werden als feuchte Deposition bezeichnet. Die feuchte Deposition, die in PINETI-III berechnet wird, bezieht sich auf den Wassereintrag durch sogenannte „hill clouds“. Bei „hill clouds“ handelt es sich entweder um Nebel bzw. Wolken, die durch Aufgleiten an der Orographie entstanden sind oder um advektierte Wolken, die aufgrund der erhöhten Orographie auf Grund treffen.

Allgemein gilt, dass der Fluss F_{occult} der feuchten Deposition errechnet wird, indem man den Depositionsfluss F_{Fog} von Nebelwasser mit der Schadstoffkonzentration C_{Fog} im Nebelwasser multipliziert:

$$F_{\text{occult}} = F_{\text{Fog}} \cdot C_{\text{Fog}} \quad (\text{Gleichung 1})$$

Die Berechnung der Nebelwasserdeposition (F_{Fog}) folgt dem Ansatz von Katata et al. (2008, 2011). In Katata et al. (2008) wurde aus numerischen Experimenten und mit Hilfe eines detaillierten, vielschichtigen Landoberflächenmodells, mit dem auch die Nebeldeposition auf Vegetation (SOLVEG) erfasst wird, eine einfache lineare Gleichung für die Geschwindigkeit v_d der Nebeldeposition abgeleitet, die nur auf der horizontalen Windgeschwindigkeit basiert:

$$v_d = A \cdot U \quad (\text{Gleichung 2})$$

wobei A die von den (dimensionslosen) Vegetationsmerkmalen abhängige Steilheit von v_d und U die horizontale Windgeschwindigkeit [m s^{-1}] über dem Blätterdach ist. A wird mit der folgenden Gleichung errechnet:

$$A = 0.0164 \cdot \left(\frac{\text{LAI}}{h}\right)^{-0.5} \quad (\text{Gleichung 3})$$

wobei LAI den Blattflächenindex (Leaf Area Index) und h die Kronenhöhe [m] ist. Die Berechnungen von A unter Verwendung von Gleichung 3 stimmten mit Beobachtungen in verschiedenen Nebelwäldern mit einem $\text{LAI}/h > 0,2$ (Katata et al., 2008) überein. Ferner wurde angegeben, dass sich Gleichung 3 vielfach für die Vorhersage der Wolkenwasserdeposition auf Wäldern mit einem $\text{LAI}/h > 0,2$ anwenden lässt. Anhand von v_d wird der Fluss F_{Fog} [$\text{kg m}^{-2} \text{s}^{-1}$] der Nebelwasserdeposition mit der folgenden Gleichung berechnet:

$$F_{\text{Fog}} = v_d \cdot \rho \cdot q_c = A \cdot u \cdot \rho \cdot q_c \quad (\text{Gleichung 4})$$

wobei ρ die Luftdichte [kg m^{-3}] ist und u sowie q_c die horizontale Windgeschwindigkeit [m s^{-1}] beziehungsweise der Flüssigwassergehalt [$\text{kg Wasser kg Luft}^{-1}$] in Bodennähe sind. Die Genauigkeit von Gleichung 4 in Bezug auf die Menge der Nebeldeposition wurde anhand von Daten zum turbulenten Nebelfluss über einem Nadelwald in Deutschland überprüft (Klemm und Wrzesinsky, 2007), wobei ein Prognosefehler von 13 Prozent festgestellt wurde (Katata et al., 2011).

Die meteorologischen Eingabedaten für die Berechnung des feuchten Depositionsflusses stammen aus dem COSMO-EU-Modell, bei dem es sich um das operationelle NWP-Modell des Deutschen Wetterdienstes (DWD) handelt. Die Wahl fiel auf COSMO-EU, weil die meteorologischen Felder über Deutschland in diesem Modell in einer recht hohen Gitterzellenaufösung von ungefähr $7 \times 7 \text{ km}^2$ wiedergegeben werden. Stundengenaue Daten der meteorologischen Felder dienen dazu, den jährlichen Depositionsfluss von Nebelwasser anhand von Gleichung 5 zu berechnen; die Gleichung lautet

$$F_{\text{Fog(annual)}} = \sum_t v_d(t) \cdot \rho(t) \cdot q_c(t) = A \cdot \sum_t u(t) \cdot \rho(t) \cdot q_c(t) \quad (\text{Gleichung 5})$$

wobei ρ die Luftdichte [kg m^{-3}], q_c der Flüssigwassergehalt [$\text{kg Wasser kg Luft}^{-1}$] in der unteren Schicht des Atmosphärenmodells und u die horizontale Windgeschwindigkeit [m s^{-1}] in 10 Metern Höhe ist.

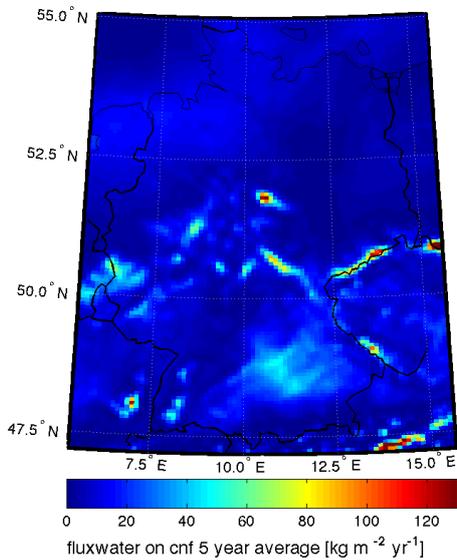
Die Höhe über dem Meeresspiegel kann in einigen Fällen von dem Wert U in Gleichung 4 abweichen; dies führt jedoch gemäß dem logarithmischen Windprofil in der bodennahen Grenzschicht nicht zu einem signifikanten Fehler in Bezug auf die repräsentative Windgeschwindigkeit (Katata et al., 2011)

Dem obenstehend beschriebenen Ansatz nach Katata (2008; 2011) liegen Versuchsmessdaten zugrunde, die in Waldgebieten gesammelt wurden, weshalb er sich nur für die Schätzung der Nebelwasserdeposition auf Wäldern eignet. Darüber hinaus haben die nebelbedingten Auswirkungen auf die Vegetation bei Waldgebieten eine weit größere Relevanz als in anderen Landnutzungsklassen wie etwa Grasland. Denn in Wäldern, wo die passierende Luftmasse, also auch Nebel oder Wolken, gefiltert wird, fällt die Wirkfläche am größten aus. Aus diesem Grund sind Studien über die feuchte Deposition auf der Vegetation nur für Waldgebiete verfügbar; die Nebelwasserdeposition für andere Landnutzungsklassen bleibt hier deshalb außer Betracht. Die Nebelwasserdeposition wurde für die folgenden Landnutzungsklassen über Deutschland berechnet:

- Nadelwald (LAI = 6; $h = 20$ m)
- Laubwald (LAI = 5; $h = 20$ m)
- Mischwald (LAI = 5,5; $h = 20$ m)

Das Modell COSMO-EU wird erst seit September 2005 genutzt. Daher liegen nicht für den gesamten Zeitraum von 2000 bis 2014 Modelldaten für die Berechnung des Nebelwasserdepositionsflusses vor. Aus diesem Grund, und wegen der hohen Unsicherheit der Modellkomponente "Flüssigwassergehalt", die erheblichen Einfluss auf die berechnete Menge und Verteilung des Nebelwasserdepositionsflusses hat, wurde beschlossen, für den Gesamtzeitraum der Jahre 2000 bis 2014 von einem über 5 Jahre gemittelten Nebelwasserdepositionsfluss auszugehen. Als meteorologische Jahre für die Ableitung eines durchschnittlichen Nebelwasserdepositionsflusses wurden 2007, 2008, 2009, 2010 und 2012 gewählt. Der für alle fünf Jahre zusammen berechnete Nebelwasserdepositionsfluss auf Nadelwald wird in Abbildung 17 dargestellt. Das Jahr 2011 wurde ausgelassen, weil es außerordentlich niederschlagsarm war und den Nebelwasserdepositionsfluss signifikant beeinflusst hätte. In der Abbildung 17 ist ersichtlich, dass die Nebelwasserdeposition für die Gesamtjahre vor allem über den Gebirgsregionen in Deutschland, etwa dem Erzgebirge, dem Harz oder dem Bayerischen Wald, höher ausfällt und Werte von bis zu $125 \text{ kg}_{\text{Wasser}} \text{ m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ erreicht werden. Darüber hinaus treten - in den meisten Jahren - Sekundärmaxima von bis zu $60 \text{ kg}_{\text{Wasser}} \text{ m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ über dem Schwarzwald entlang der Schwäbischen und der Fränkischen Alb sowie entlang der Eifel auf. Während die räumliche Verteilung des berechneten Nebelwasserdepositionsflusses für die einzelnen Jahre ähnlich ausfällt, schwankt die Menge des abgelagerten Wassers von Jahr zu Jahr. Dies ist zum Teil auf die meteorologische Variabilität zurückzuführen. Überdies erfuhren die Beschreibung und die Parametrierung des COSMO-EU-Modells zwischen 2007 und 2012 eine Reihe von Änderungen (http://www.dwd.de/DE/leistungen/nwv_cosmo_eu_aenderungen/). Besagte Änderungen hatten auch Auswirkungen auf die mikrophysikalischen Eigenschaften des Modells und beeinflussten somit unter anderem den Modellparameter "Flüssigwassergehalt". Gegenüber früheren Jahren haben diese Änderungen des Modellrechenverfahrens beispielsweise zu einer systematischen Abnahme des berechneten Nebelwasserdepositionsflusses ab Mitte 2009 geführt. Die Verwendung des Durchschnittswerts um das Jahr 2009 herum bedeutet im Grunde, dass der Mittelpunkt der Zeitreihe gewählt wird.

Abbildung 17: Berechneter 5-Jahres-Durchschnittswert für den Nebelwasserdepositionsfluss auf Nadelwald



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Die Schätzung der durchschnittlichen Schadstoffkonzentration in Nebelwasser (C_{Fog}) erfolgte auf Grundlage der jährlichen Durchschnittskonzentration in Niederschlagswasser anhand sogenannter Anreicherungs-faktoren (EF, enrichment factors):

$$C_{\text{Cloud}} = C_{\text{Rain}} \cdot EF \quad (\text{Gleichung 6})$$

Die hier enthaltenen jährlichen Durchschnittskonzentrationen der einzelnen Spezies in Niederschlagswasser stammen von den interpolierten Konzentrationsfeldern, die für die Berechnung des nassen Depositionsflusses abgeleitet wurden. Die Anreicherungs-faktoren für die einzelnen Spezies wurden aus einer Kompilation von Felddaten in Studien abgeleitet, in denen Nebel- und Niederschlagswasser gleichzeitig erfasst wurden. Die Anreicherungs-faktoren sind bei allen Spezies größer als 1, da die Konzentration in Nebelwasser in allen vorliegenden Studien und für alle Spezies größer war als in Niederschlagswasser. Dies lässt sich durch eine geringere Verdünnung in Nebel- oder Wolkentröpfchen erklären, da diese kleiner als Regentropfen sind und weniger Wasser enthalten. Die Variabilität zwischen den einzelnen Studien ist groß, was darauf hindeutet, dass die Anreicherungs-faktoren eine große Unsicherheitsquelle darstellen.

Schließlich wurde durch die Anwendung von Gleichung 1 mit der Jahresdurchschnittskonzentration in Wolkenwasser pro Spezies und dem jährlichen Nebelwasserdepositionsfluss der feuchte Depositionsfluss für die einzelnen Spezies abgeleitet.

Tabelle 6: Durchschnittliche Anreicherungs-faktoren pro Spezies

Komponente	Anreicherungs-faktor
SO ₄ ²⁻	6.97
NO ₃ ⁻	8.62
NH ₄ ⁺	9.20

Komponente	Anreicherungsfaktor
H ⁺	7.98
Na ⁺	4.66
Mg ²⁺	5.22
Ca ²⁺	5.09
K ⁺	5.11
Cl ⁻	4.73

2.5 Ermittlung der trockenen Deposition (BC)

Die trockene Deposition der basischen Kationen wird nach Draaiers et al. (1996) anhand eines empirischen Verfahrens unter Verwendung der Messdaten zur nassen Deposition ermittelt. Details finden sich in Wichink Kruit et al. (2014).

2.6 Gesamtdeposition

Durch die Addition von trockener, nasser und feuchter Deposition wurden Karten der Gesamtdeposition von SO_x, NO_y, NH_x und der basischen Kationen über Deutschland erstellt.

3 Atmosphärischen Deposition zwischen 2000 und 2015

3.1 Zeitserie

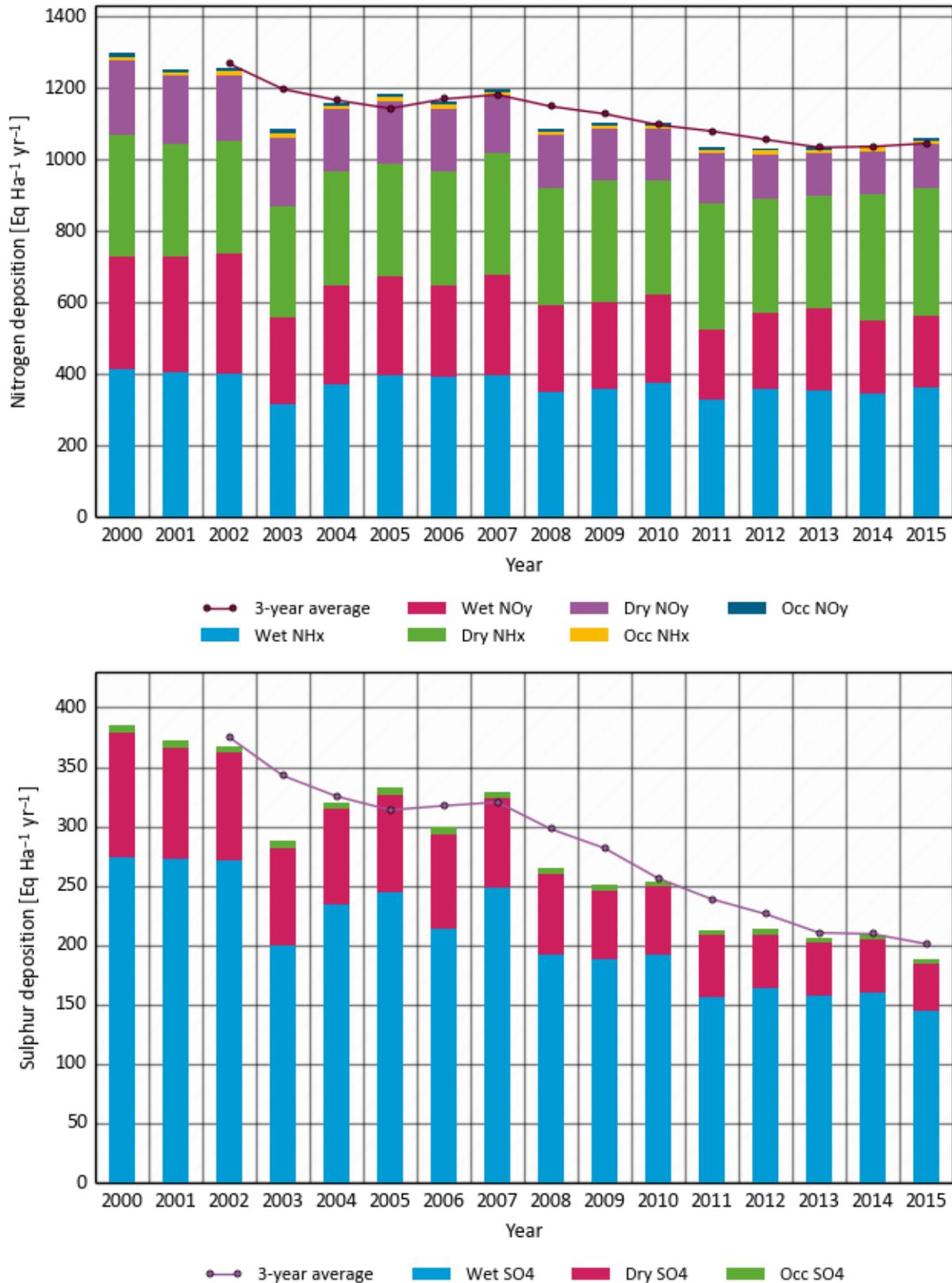
Die Stickstoff-Gesamtdeposition im Zeitraum 2000 bis 2015 über Deutschland ist, wie in Abbildung 18 dargestellt, von etwas mehr als $1300 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ im Jahr 2000 auf etwas über $1050 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ im Jahr 2015 zurückgegangen. Den größten Anteil an dieser Abnahme hat NO_y mit einem Rückgang von mehr als $200 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ über den Gesamtzeitraum, während sich die NH_x -Deposition um lediglich $25 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ verringerte. Die NO_y -Deposition setzt sich über den gesamten Erfassungszeitraum hinweg aus zwei Drittel Nass- und einem Drittel Trockendeposition zusammen, während die Trockendeposition bei NH_x zwischen 43 und 50 Prozent beträgt. Auffällig in der Zeitreihe ist das Jahr 2003 mit einem gegenüber den Vor- und Folgejahren niedrigeren Depositionswert, was vor allem auf eine geringere Nassdeposition zurückzuführen ist. Grund dafür ist die ungewöhnliche Trockenheit im Jahr 2003. Gleiches gilt für 2008. Die Stickstoff-Gesamtdeposition ist seit 2012 nicht gesunken, sondern vielmehr leicht gestiegen.

Die Drei-Jahres-Durchschnittswerte (in Abbildung 18 in Dunkelfuchsia wiedergegeben) folgen selbstverständlich dem gleichen nachlassenden Trend wie die Einjahreswerte, wobei jedoch eine graduelere jährliche Veränderlichkeit gegeben ist.

3.2 Jahresspezifische Karten

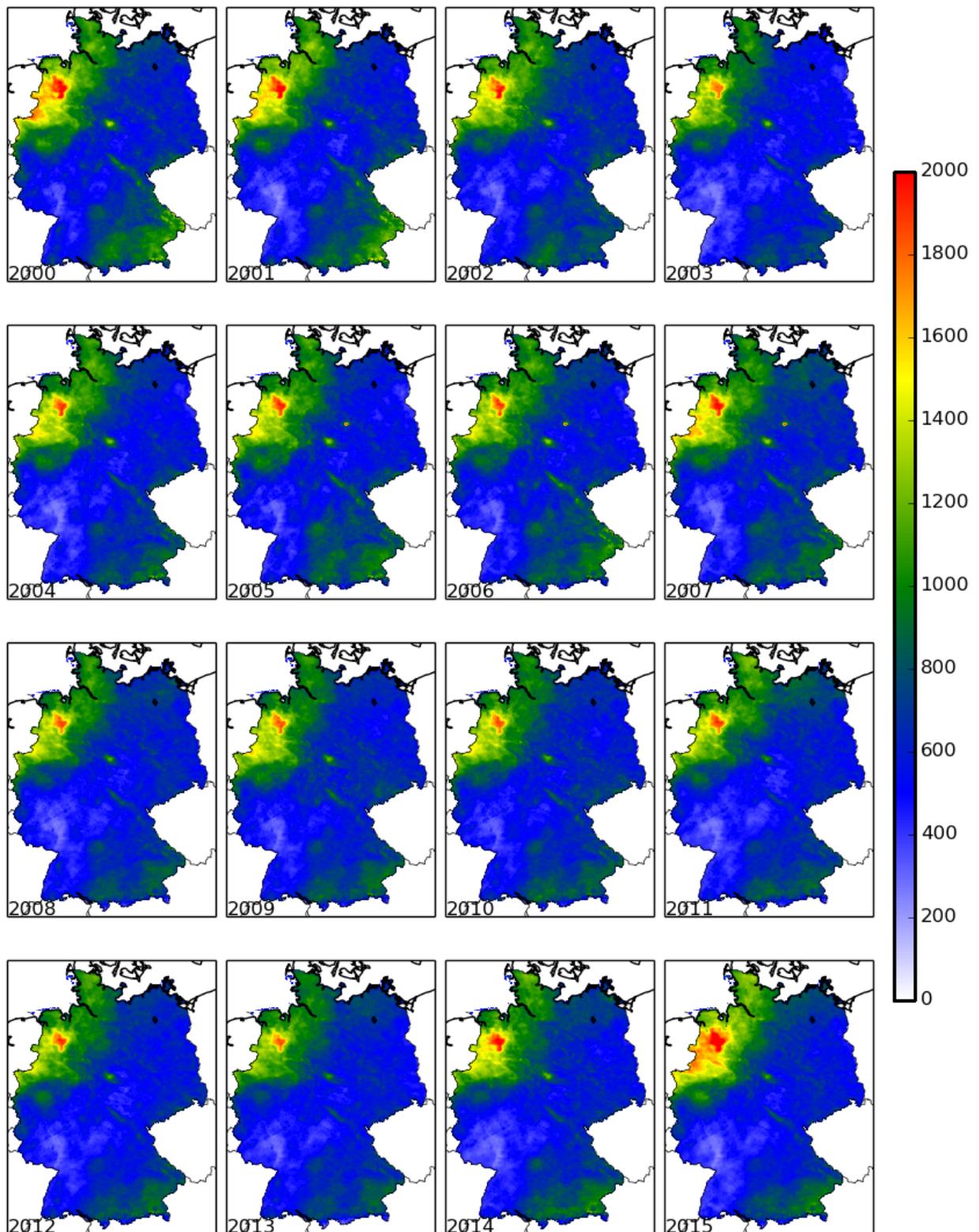
In den Abbildung 19 bis 6 sind die Gesamtdeposition und die geografische Schwankungsbreite von NO_y , NH_x , Stickstoff und Schwefel über den Zeitraum von 2000 bis 2015 ersichtlich. Die Werte für NO_y sowie die Stickstoff- und Schwefel-Gesamtdeposition lassen einen eindeutig rückläufigen Trend erkennen, während für NH_x kein eindeutiger Trend festgestellt werden kann. In Bezug auf den NH_x -Gesamteintrag (Abbildung 19) sind die jährlichen Schwankungen vor allem auf unterschiedliche Wetterbedingungen zurückzuführen. So war etwa 2003 ein außerordentlich trockenes Jahr, was zu einer geringeren Deposition führte. Insgesamt ist die NH_x -Deposition in der Südhälfte Deutschlands in den Jahren 2000 bis 2015 leicht zurückgegangen. Im nordwestlichen Teil gab es vom Zeitraum 2004 bis 2007 und von 2008 bis 2011 augenscheinlich einen Rückgang, auf den jedoch in den letzten Jahren ein neuerlicher Anstieg folgte. Bei NO_y spielt die Nassdeposition eine größere Rolle als bei NH_x , weshalb die jährlichen Unterschiede stark von den Niederschlägen während der einzelnen Jahre abhängen. Insgesamt ist ein deutlicher Rückgang der NO_y -Deposition (Abbildung 20) im ganzen Land zu beobachten, der in den dichtbesiedelten Industrieregionen (mit dem Ruhrgebiet als prominentestem Beispiel) am stärksten ausgeprägt ist. Grund dafür ist ein starker Rückgang der Emissionen. Die im Laufe der Jahre veränderte NH_x - und NO_y -Deposition hat zu einem rückläufigen Trend der Stickstoff-Gesamtdeposition während dieser Jahre geführt (Abbildung 21). Diese Entwicklung ist landesweit zu beobachten. Wenngleich der Hotspot in Niedersachsen nach wie vor mit Werten präsent ist, die 2015 auf einem ebenso hohen Niveau lagen wie im Jahr 2000, so ist die hoch belastete Fläche jetzt weniger groß. Aus dem breiten, von Südwest nach Nordost verlaufenden Streifen sind zwischen den Jahren 2000 und 2015 nahezu alle Schadstoff-Hotspots verschwunden. Im Jahr 2015 gab es bei der Deposition deutlich stärkere regionale Unterschiede als im Jahr 2000; damals waren hohe Schadstoffwerte weiter verbreitet. Dies liegt an der geringeren NO_y -Deposition, die weniger ortsgebunden ist als die NH_x -Deposition, die in der Stickstoff-Gesamtdeposition jetzt den dominierenden Platz einnimmt. Auch die Schwefeldeposition (Abbildung 22) ist im Laufe der Jahre stark gesunken. Die übrige Deposition konzentriert sich im nordwestlichen Landesteil, wo Industrietätigkeit und Schiffsverkehr für SO_x -Emissionen sorgen. Die Schwefeldeposition im Süden hat um 70 Prozent abgenommen

Abbildung 18: Zeitreihe mit der durchschnittlichen Deposition von Stickstoff und Schwefel über Deutschland



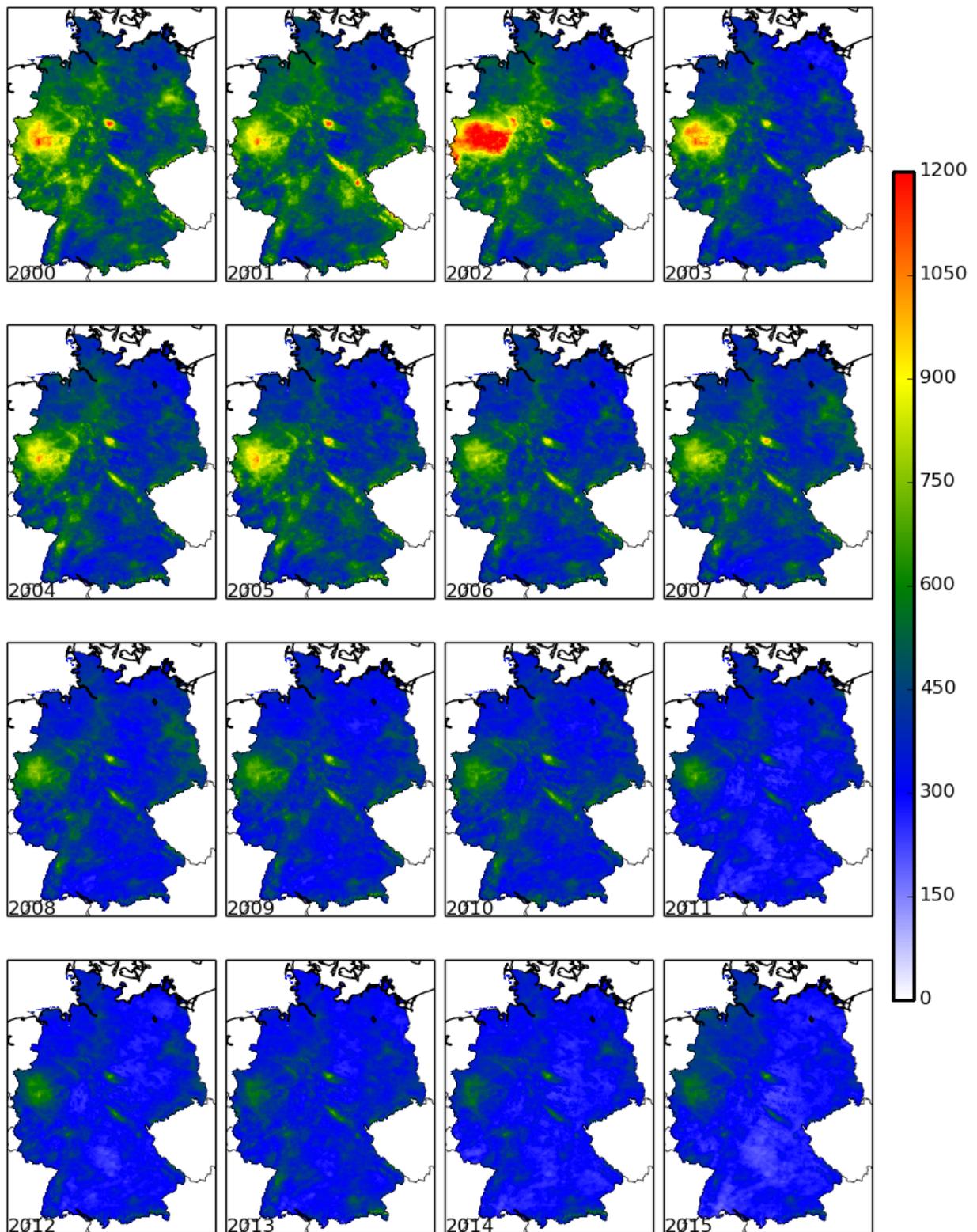
Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 19: NH_x -Gesamtdeposition (in $\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015



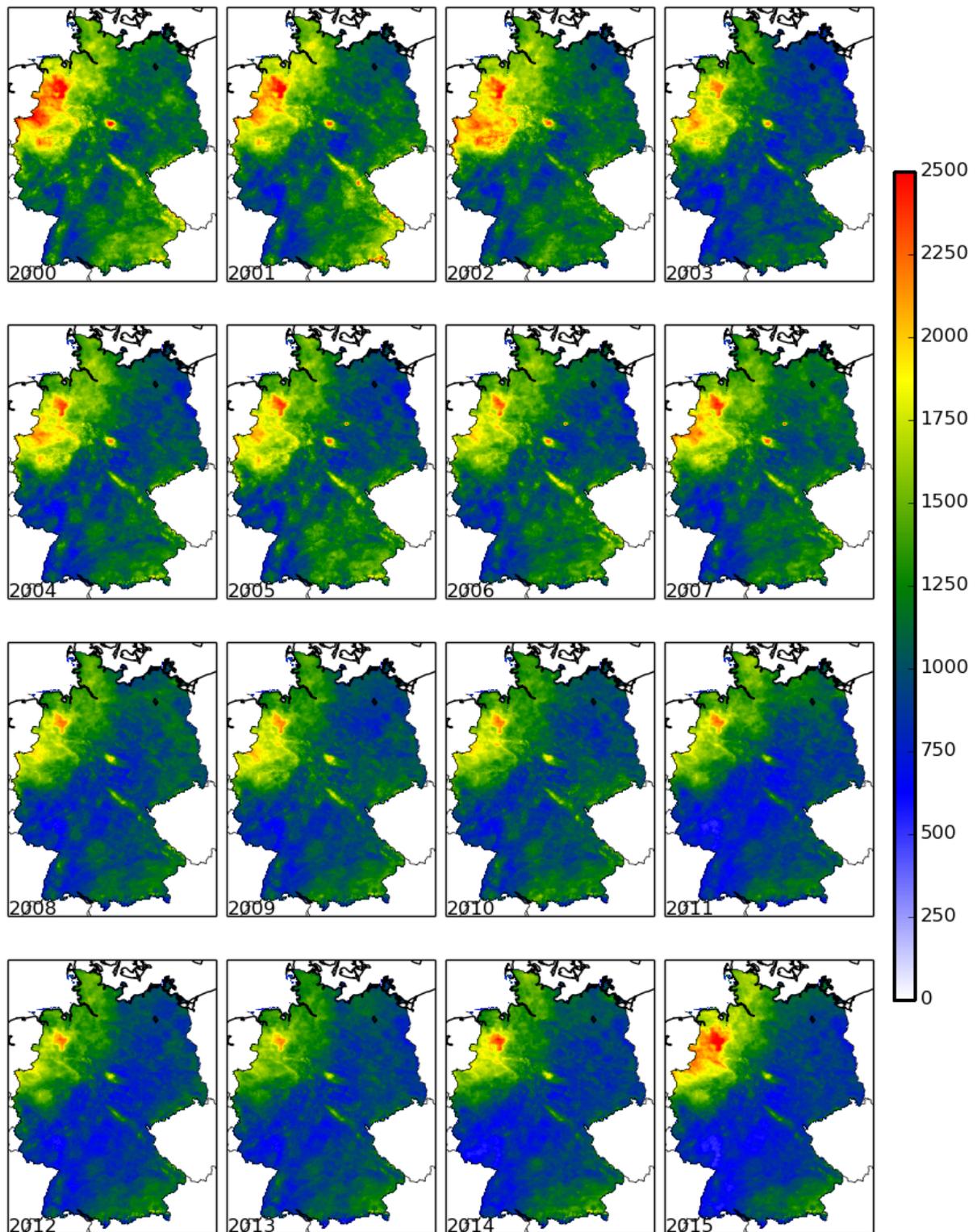
Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 20: NO_y -Gesamtdeposition (in $\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015



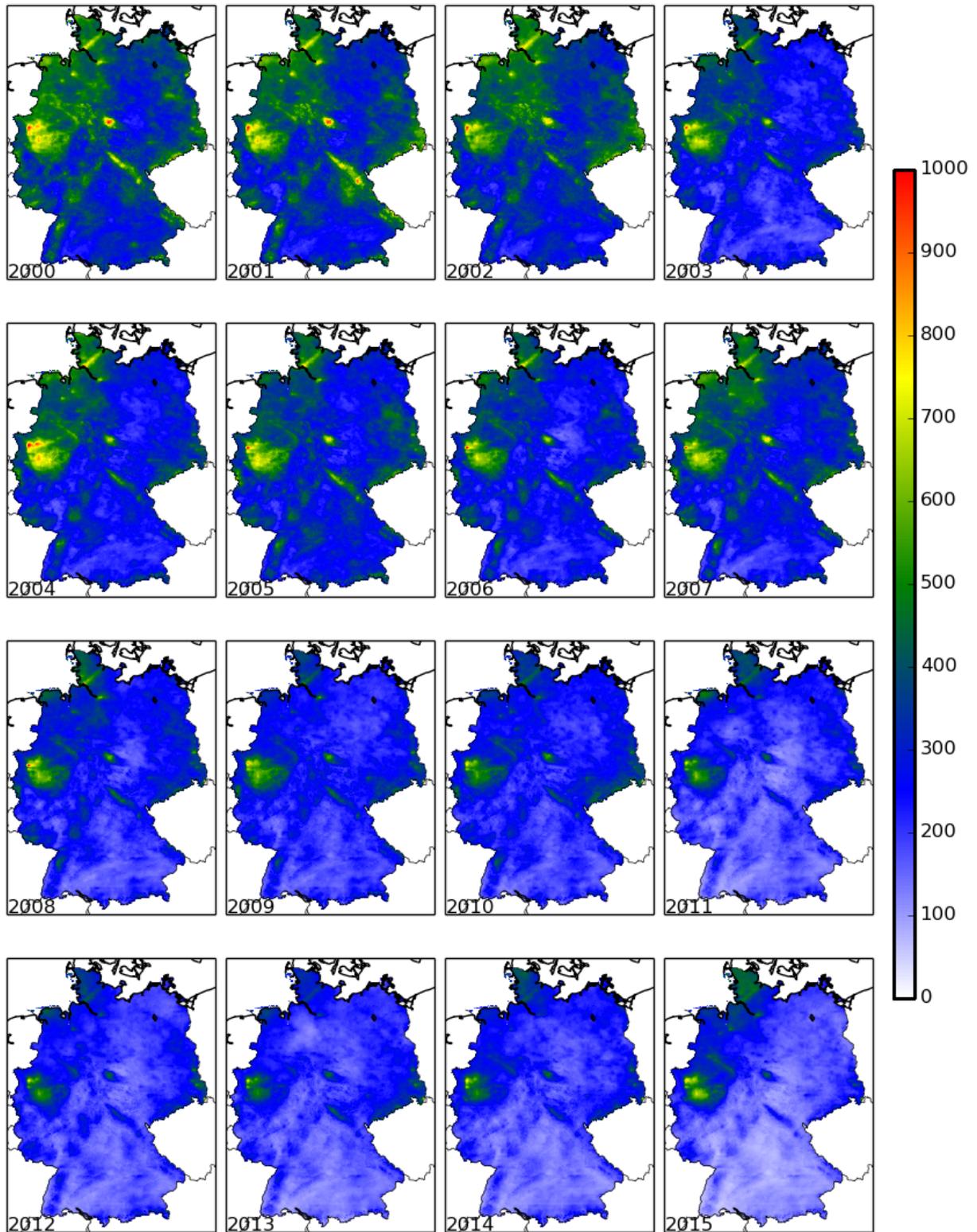
Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 21: Stickstoff-Gesamtdeposition (in $\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 22: Schwefel-Gesamtdeposition (in $\text{eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) über Deutschland in den Jahren 2000 bis 2015

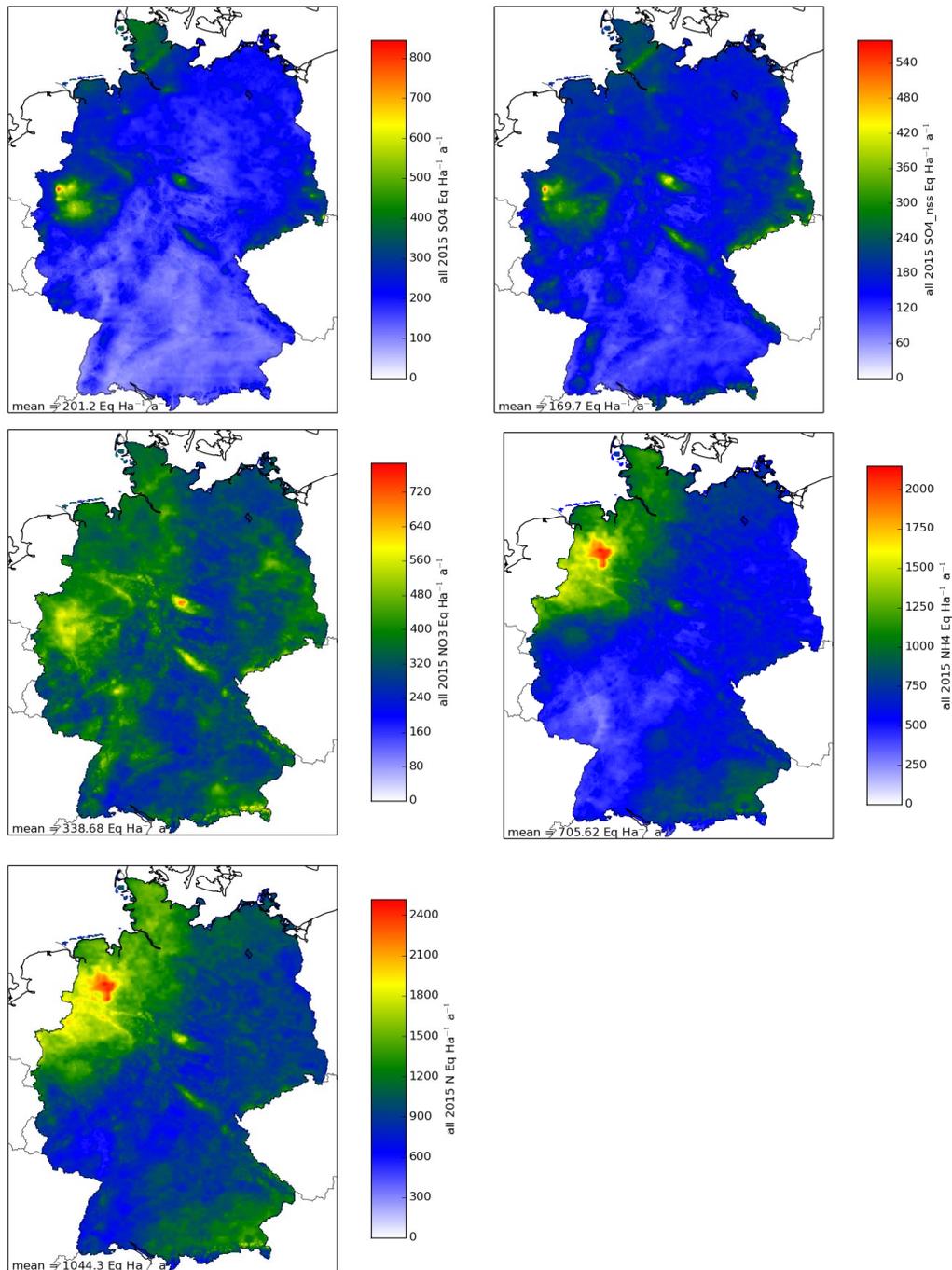


Quelle: eigene Darstellung, TNO

3.3 Neue Depositionswerte für die Jahre 2013 bis 2015

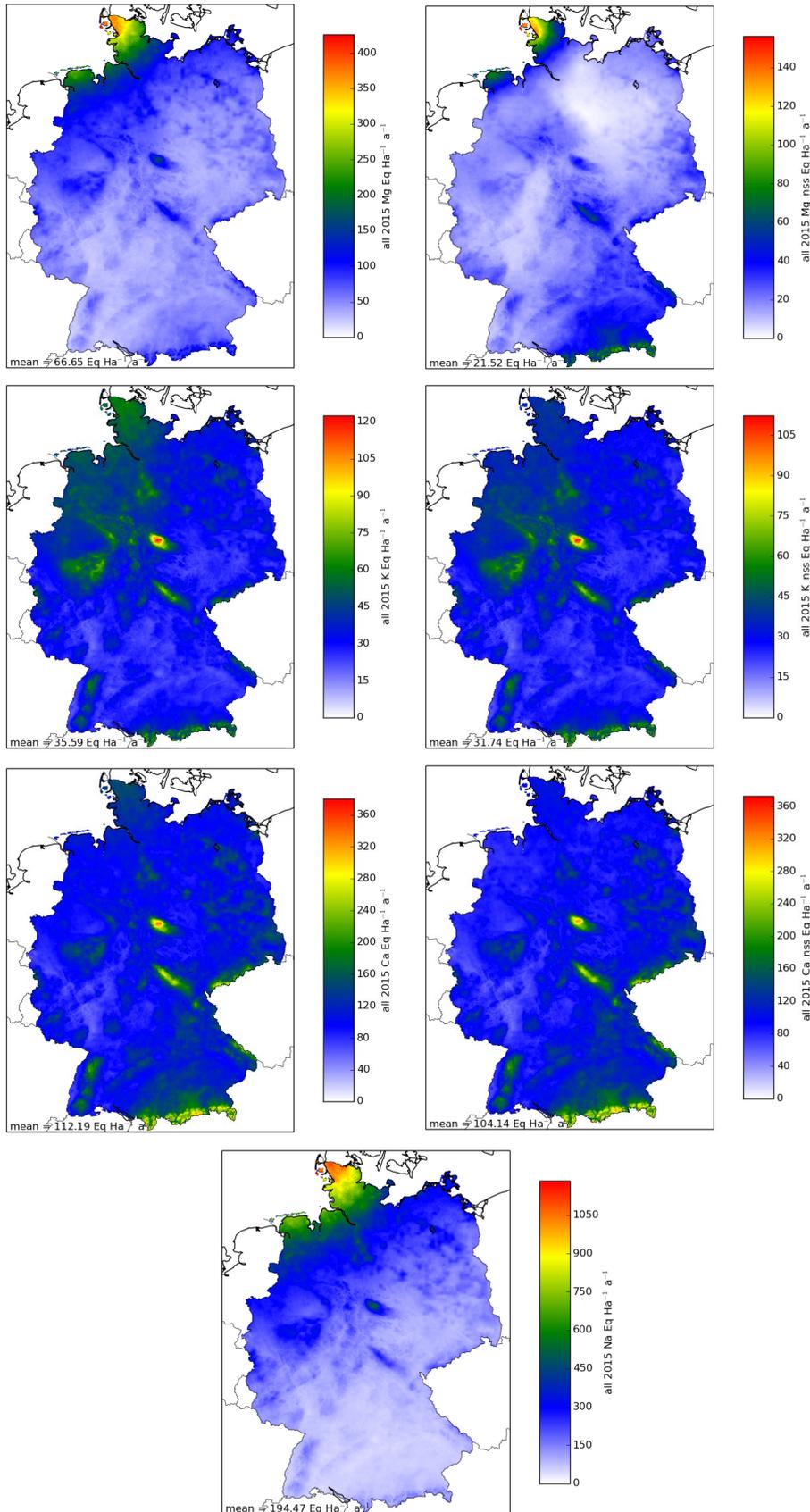
Auf Grundlage der langen methodisch konsistenten Zeitreihe können nun auch Jahresmittelwerte über bestimmte Zeiträume angegeben werden, und so der interannuelle Einfluss der meteorologischen Variabilität geglättet werden. Auf diese Weise über drei Jahre gemittelte Daten können auch eine robustere Grundlage für politische Entscheidungen und den Vollzug in der Genehmigungspraxis darstellen. Die so entstandenen Depositionskarten für den Zeitraum 2013 bis 2015 sind in Abbildung 23 und Abbildung 24 dargestellt.

Abbildung 23. Deposition von Schwefel, NO_y, NH_x und Gesamt N über Deutschland, 2013-2015



Quelle: eigene Darstellung, TNO

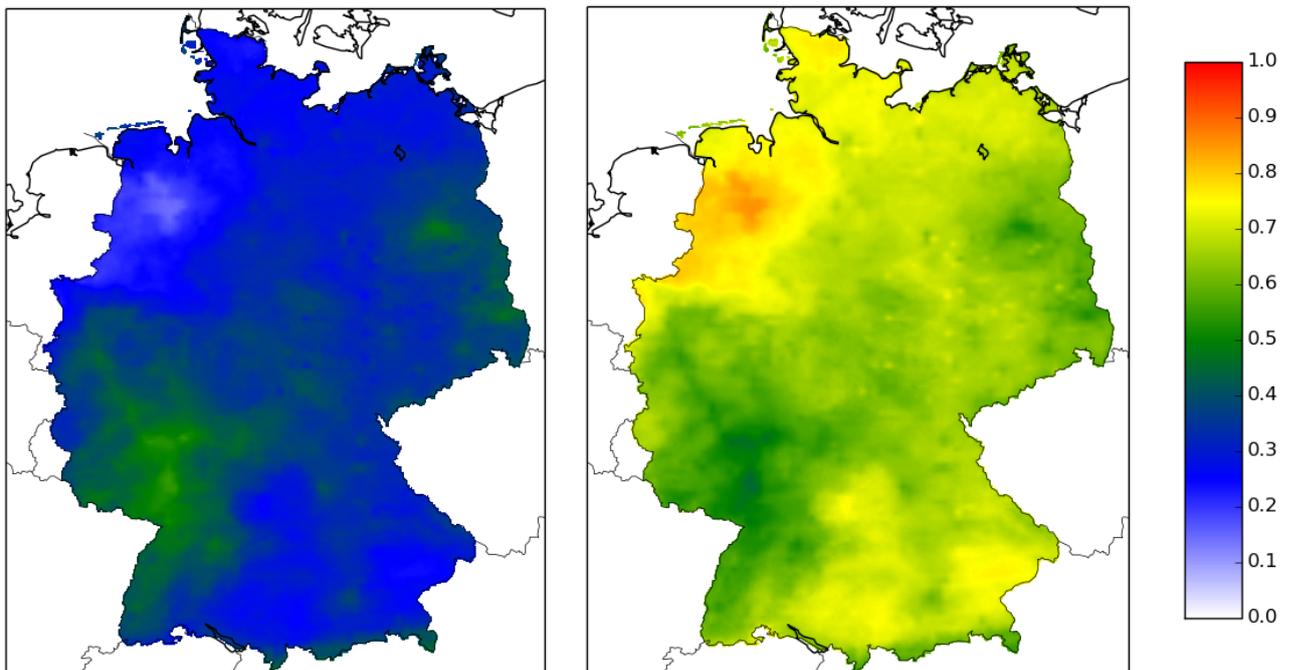
Abbildung 24. Gesamtdeposition (links) von basischen Kationen sowie der nicht aus Seesalz stammende Anteil (rechts) für die Jahre 2013 bis 2015. Für Natrium (unten) wurde der der nicht aus Seesalz stammende Anteil nicht berechnet



Quelle: eigene Darstellung, TNO

In Abbildung 25 ist ersichtlich, wie stark NO_y und NH_x im Dreijahresdurchschnitt für den Zeitraum 2013 bis 2015 zur Stickstoff-Gesamtdeposition beitragen. Mit Ausnahme der Region Stuttgart-Frankfurt spielt die NH_x -Deposition eine wichtigere Rolle als NO_y . In dieser südwestlich gelegenen Region liegen beide Schadstoffeinträge ungefähr gleichauf. Im Nordwesten Deutschlands erreicht die NH_x -Deposition einen Spitzenwert und trägt mehr als 80 Prozent zur Stickstoff-Gesamtdeposition bei. Im Landesdurchschnitt liegt der Anteil von NH_x bei 60 bis 70 Prozent.

Abbildung 25. Anteil der NO_y - (links) und NH_x -Deposition (rechts) an der Stickstoff-Gesamtdeposition, 2013 bis 2015



Quelle: eigene Darstellung, TNO

In Tabelle 7 lassen sich die Durchschnittswerte der rechnerischen, effektiven Depositionsgeschwindigkeiten in den Jahren 2013 bis 2015 für alle Gase ablesen, die Stickstoff- oder Schwefelatome enthalten. Die Depositionsgeschwindigkeit fällt bei Landnutzungsklassen mit einer größeren Rauigkeit (beispielsweise Bäume statt Gras) höher aus und ist nicht bei allen Spezies gleich. Die Depositionsgeschwindigkeit hängt von den chemischen Eigenschaften ab, also etwa davon, ob die Spezies wasserlöslich sind oder beim Auftreffen mit der Oberfläche reagieren. Diese je nach Landnutzungsklasse unterschiedlich hohen Depositionsgeschwindigkeiten spiegeln sich in den Gesamtwerten für die trockene Deposition in den Jahren 2013 bis 2015 wider (Tabelle 8). So ist zum Beispiel die trockene Deposition von SO_4 bei Nadelwäldern dreimal so hoch wie bei Ackerland; daran zeigt sich, dass die Depositionsgeschwindigkeit von Partikeln über Wäldern höher ist als über Ackerland. Da die nasse Deposition nicht von der Landnutzung abhängig ist, ergeben sich bei der Gesamtdeposition (

Tabelle 9) zwar Unterschiede zwischen den Landnutzungsklassen, doch diese sind im Verhältnis geringer als bei der trockenen Deposition.

Die effektiven Depositionsgeschwindigkeiten in Tabelle 7 sind niedriger als im VDI-Leitfaden. Dafür gibt es mehrere Gründe: 1) der Leitfaden enthält mittlere und keine effektiven Depositionsgeschwindigkeiten. Mittlere Depositionsgeschwindigkeiten sind normalerweise 50-100% höher als die Effektiven (siehe auch 2.2.4). 2) Die Literaturwerte, die in der VDI-Richtlinie ausgewertet wurden, sind in vielen Fällen repräsentativ für Situationen tagsüber im Sommerhalbjahr, während die Modellierung das ganze Jahr betrachtet. 3) Die Berechnungen der hier vorliegenden Daten basieren auf dem neuesten Stand des Wissens inklusive Kompensationspunkt für Ammoniak. Schaap et al. (2017) zeigt, dass die Bandbreite der modellierten Depositionsgeschwindigkeiten für Ammoniak die Spanne der berichteten Literaturwerte umfasst.

Tabelle 7: Effektive Depositionsgeschwindigkeit von Gasen und Partikeln in LOTOS-EUROS (cm/s), Durchschnittswerte 2013 bis 2015.

Spezies	ara	cnf	crp	dec	grs	mix	oth	sem	urb	wat
HNO3	0.97	1.49	1.33	1.49	1.00	1.49	0.67	1.12	2.93	0.65
N2O5	1.02	1.95	1.64	1.95	1.26	1.95	0.87	1.40	3.20	0.87
NH3	0.49	0.96	0.65	0.70	0.42	0.83	0.43	0.46	0.95	0.57
NO	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.06	0.02	0.10	0.06
NO2	0.10	0.15	0.13	0.13	0.08	0.14	0.07	0.08	0.08	0.04
SO2	0.27	0.77	0.69	0.76	0.55	0.77	0.17	0.59	0.39	0.64
Partikel	0.08	0.16	0.10	0.16	0.07	0.16	0.04	0.10	0.14	0.08

Tabelle 8: Trockene Deposition (in eq ha⁻¹ a⁻¹) für alle Spezies, Durchschnittswerte 2013 bis 2015. Nss = nicht von Seesalz stammender Anteil.

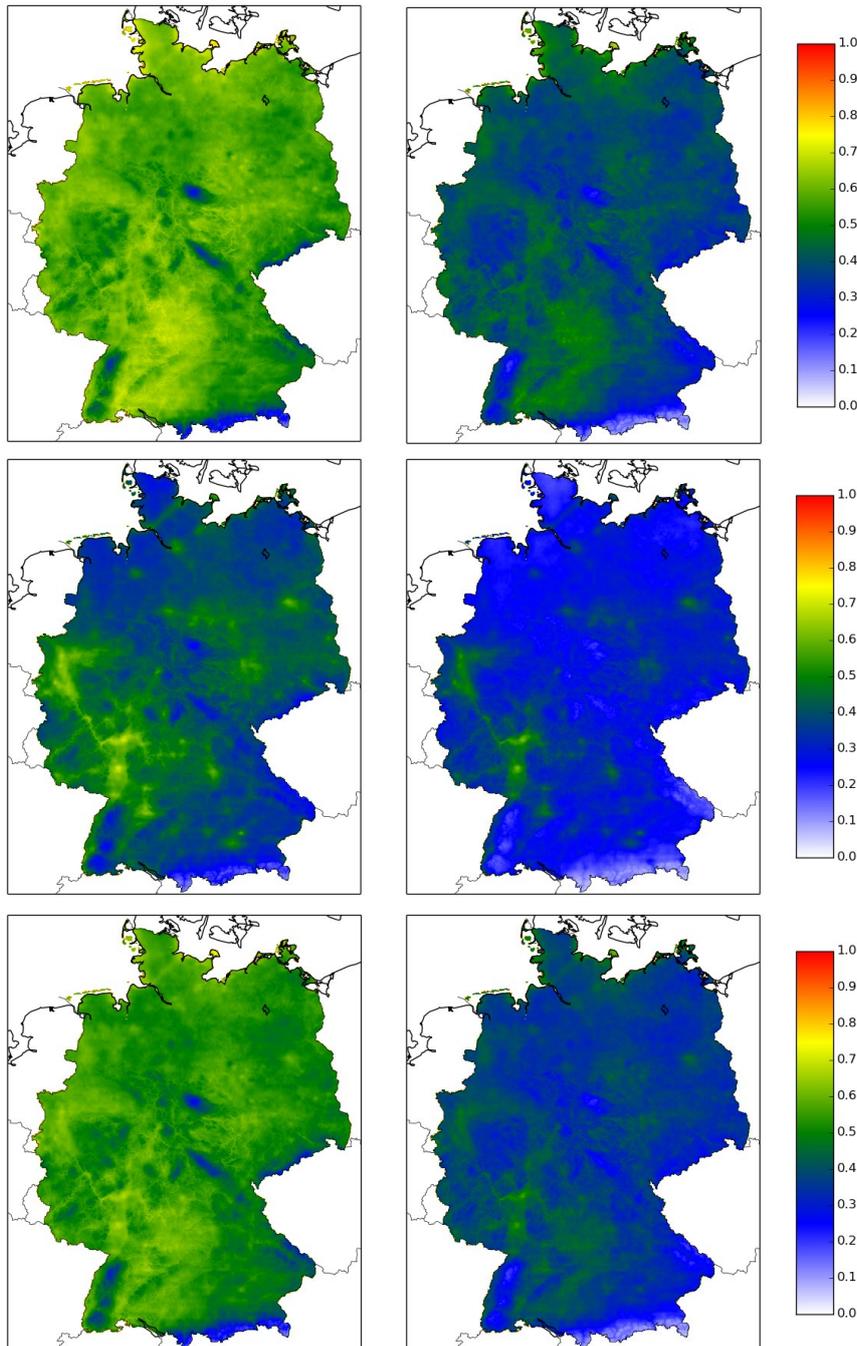
Spezies	ara	cnf	crp	dec	grs	mix	oth	sem	urb	wat
NHx	273	521	365	401	233	461	245	256	555	318
NOy	97	164	132	147	91	156	73	110	169	67
N	370	685	497	549	323	617	318	366	724	386
SO4	27	72	53	64	42	68	17	65	43	49
SO4_nss	24	60	49	60	39	60	14	43	39	46
Na	26	99	38	37	27	68	25	181	30	28
K	4	14	6	5	4	10	4	26	5	4
K_nss	4	13	5	5	4	9	3	24	4	4
Mg	10	36	14	14	10	25	9	66	11	10
Mg_nss	3	11	4	4	3	8	3	21	4	3
Ca	14	52	20	20	15	36	13	96	17	15
Ca_nss	13	48	19	19	14	34	12	89	16	14

Tabelle 9: Gesamtdeposition (in eq ha⁻¹ a⁻¹) für alle Spezies, Durchschnittswerte 2013 bis 2015. Nss = nicht von Seesalz stammender Anteil.

Spezies	ara	cnf	crp	dec	grs	mix	oth	sem	urb	wat
NHx	627	908	718	792	586	850	598	610	909	672
NOy	308	396	343	381	302	388	284	321	380	279
N	935	1304	1062	1173	888	1238	883	931	1289	951
SO4	181	238	207	231	196	235	171	219	196	203
SO4_nss	152	199	177	199	167	199	142	171	167	174
Na	175	256	187	194	176	225	174	330	179	177
K	32	44	34	36	32	40	32	55	33	32
K_nss	29	40	30	32	29	36	28	49	29	29
Mg	59	89	63	67	59	78	59	115	61	60
Mg_nss	19	28	20	21	19	25	19	37	20	19
Ca	100	143	106	111	100	127	99	181	102	100
Ca_nss	92	132	98	103	93	118	91	168	95	93

In Abbildung 26 ist ersichtlich, wie stark die trockene Deposition bei den Landnutzungsarten Nadelwald und Grasland zur Gesamtdeposition von NH_x, NO_y und Stickstoff beiträgt. Bei NH_x hat die trockene Deposition einen Anteil von mehr als 60 Prozent an der Gesamtdeposition über Nadelwäldern; eine Ausnahme bilden nur niederschlagsreiche Bergregionen. Bei Grasland macht die trockene Deposition dagegen weniger als die Hälfte der landesweiten Gesamtdeposition aus. In Bezug auf NO_y, eine Spezies, bei der die nasse Deposition im Verhältnis eine größere Bedeutung hat, liegt die trockene Deposition über Nadelwäldern nur in NO_x-Quellregionen über der nassen Deposition. Für Grasland ergibt sich das gleiche Bild, wobei die nasse Deposition noch größere Bedeutung besitzt. In Bezug auf die Stickstoff-Gesamtdeposition kann festgestellt werden, dass die NH_x-Deposition dabei eine dominierende Rolle spielt, was auch für das Verhältnis von trockener Deposition zu Gesamtdeposition insbesondere bei Nadelwäldern gilt.

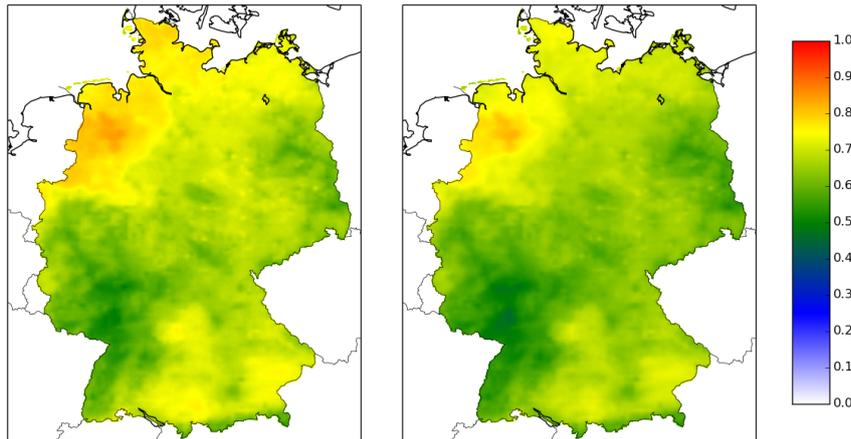
Abbildung 26. Verhältnis von trockener Deposition zu Gesamtdeposition für NHx (oben), NOy (Mitte) und Stickstoff (unten) bei Nadelwald (links) und Gras (rechts)



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Das Verhältnis der NH_x -Deposition zur Gesamtdeposition bei Nadelwäldern und Grasland ist in Abbildung 27 ersichtlich. Wenngleich diese Karten ein ähnliches Bild bieten, sind auch Unterschiede sichtbar. Allgemein gilt, dass die NH_x -Deposition in Nadelwäldern stärker zur Gesamtdeposition beiträgt als bei Grasland. Das liegt daran, dass NH_x in erster Linie durch trockene Deposition abgelagert wird (während bei NO_y die nasse Deposition wichtiger ist) und dass, wie in Abbildung 26 ersichtlich, die trockene Deposition bei Nadelwäldern eine größere Rolle spielt als bei Grasland.

Abbildung 27. Verhältnis von NH_x zur Gesamtdeposition bei Nadelwald (links) und Gras (rechts)



Quelle: eigene Darstellung, TNO

In Tabelle 10 werden die mittleren landnutzungsabhängigen Depositionsflüsse auf zwei verschiedenen Arten angegeben und miteinander verglichen: Zum einen so, als ob es in jeder Gitterzelle Deutschlands mindestens einen Quadratmeter der 10 Landnutzungsklassen gäbe (theoretischer Fall) und zum anderen auf Basis des realen Vorkommen der Landnutzungsklassen. Für die Berechnung der realen Mittelwerte werden die Depositionsflüsse nur an den Stellen berücksichtigt, wo sich nach CLC die jeweilige Landnutzung auch tatsächlich befindet. Vor allem für reduzierten Stickstoff kommt es dadurch zu Unterschieden zwischen den Betrachtungsweisen, weil kleinräumige Effekte eine Rolle spielen. Zum Beispiel liegt Wald normalerweise weiter von Ammoniakquellen entfernt, so dass der Mittelwert der NH_x -Deposition im realen Fall niedriger ist, als wenn der nationale Mittelwert aus der theoretischen Annahme, dass es Überall Wald gäbe, gebildet wird. Bei Ackerland oder Grasland ist es in Bezug auf NH_x -Deposition umgekehrt. Für oxidierten Stickstoff ergeben sich nur geringe Unterschiede, weil sich oxidierte Stickstoffverbindungen, durch den dominierenden Beitrag von sekundären oxidierten Stickstoffverbindungen gleichförmiger ausbreiten und deponieren.

Tabelle 10 Vergleich der mittleren Landnutzungsspezifische Flüsse und der mittleren Flüsse berechnet anhand der realen Landnutzungsverteilung für 2013-2105 [eq ha⁻¹ a⁻¹]

Spezies	NH _x		NO _y		N		SO ₄		SO _{4_nss}	
	Real	lu-spez.	Real	lu-spez.	Real	lu-spez.	Real	lu-spez.	Real	lu-spez.
ara	664	627	304	308	968	935	180	181	149	152
cnf	823	908	395	396	1219	1304	228	238	202	199
crp	644	718	344	343	988	1062	192	207	167	177
dec	684	792	383	381	1067	1173	222	231	195	199
grs	655	586	309	302	964	888	209	196	172	167
mix	708	850	387	388	1095	1238	211	235	189	199
oth	580	598	293	284	873	883	210	171	170	142
sem	540	610	321	321	860	931	207	219	178	171
urb	881	909	405	380	1285	1289	218	196	176	167
wat	691	672	282	279	973	951	216	203	181	174

4 Erklärung der Unterschiede in den Ergebnissen im Vergleich zum Vorgängerprojekt PINETI-2

Gegenüber dem PINETI-2-Projekt fanden im PINETI-3-Projekt einige Änderungen in der Chemietransportmodellierung statt, die sich auf die damit erstellten Depositionsschätzungen auswirken. Die Änderungen lassen sich in zwei Schritte teilen: 1) Änderungen in der Modellversion von LOTOS-EUROS und 2) Umstellung der Emissionsdaten auf den neuesten Kenntnisstand. Änderungen im Modellsystem wirken sich innerhalb des PINETI-Verfahrens nur indirekt auf die Ergebnisse der nassen Deposition aus, da diese auch durch die Interpolation empirischer Daten bestimmt wird. Dagegen wirken sie sich direkt auf die modellierten Flüsse der trockenen Deposition aus. Beides zusammen beeinflusst die Gesamtdposition. Es ist wichtig die Änderungen in LOTOS-EUROS zu verstehen, da dies das Gesamtbudget der Modellierung beeinflusst. Dieses Kapitel bietet einen Überblick über die Änderungen sowie die Folgen für die modellierten Flüsse beziehungsweise das kartierte Endergebnis.

Tabelle 11 Rauigkeitslänge (z_0) und Parameter zur Bestimmung des Blattflächenindex (LAI) für unterschiedliche Landnutzungsklassen

Landnutzungs-kategorie	Kürzel (UK)	z_0	LAI-max	LAI-Anfang (Tag)	LAI-Ende (Tag)
Grassland	Grs	0.03	3.5	0	366
Ackerland (*)	Ara	0.10	4.2	130	250
Permanent Crops	Crp	0.25	4.2	130	250
Nadelwald	Cnf	2.0	5.0	0	366
Laubwald	Dec	2.0	4.0	100	307
Urbanes Gebiet	Urb	2.0	-	-	-
Wasserfläche (**)	Wat	0.002	-	-	-
Semi-natürliche Vegetation	Sem	0.05	3.5	0	366
Sonstige	Oth	0.013	-	-	-

* z_0 für Acker wird ausserhalb der Anbausaison (bestimmt durch LAI-Anfang und LAI-Ende) auf 0.013 gesetzt, ** z_0 für das offene Meer wird berechnet anhand von Windgeschwindigkeit und Wellenhöhe.

4.1 LOTOS-EUROS v2.1

4.1.1 Änderungen des Modells

Zwischen dem für dieses Projekt verwendeten Modell LOTOS-EUROS v2.1 und dem für das PINETI-2-Projekt genutzten Modell LOTOS-EUROS v1.10 gibt es die folgenden Unterschiede:

- Winterpause für Ackerland. In LOTOS-EUROS v1.10 blieb in der Stabilitätsberechnung die Bewuchshöhe und damit die Rauigkeitslänge für Ackerland das ganze Jahr über konstant. In der Berechnung des Blattoberflächenindex innerhalb der Modellierung der trockenen Depositionsgeschwindigkeit wurde allerdings die Winterpause, in der die Felder ohne Bestand sind, berücksichtigt (siehe Tabelle 11). In der aktuellen Modellversion wird die Winterpause konsistent berücksichtigt. Außerhalb der Anbausaison ist die Rauigkeitslänge (z_0) jetzt gleich 0,013 für unbebautes Land. Zu Beginn der Wach-

tumsphase (Mai) wird dieser Wert sofort auf 0,10 erhöht (dies entspricht dem bisherigen Standardwert). Im Herbst wird die Rauigkeitslänge wieder auf 0,013 zurückgesetzt. Dadurch wird die trockene Deposition auf Ackerland reduziert, während sie für andere Landnutzungsklassen etwas höher ausfällt.

- Andere Methode für die Bestimmung des durchschnittlichen z_0 -Werts der einzelnen Gitterzellen. Für die Berechnung von landnutzungspezifischen Stabilitätsparametern anhand der EZMWF Meteorologie ist es notwendig einen *effektiven z_0 -Wert* für einzelne Gitterzellen zu berechnen. Die Anpassung für Ackerland hatte ungewünschte Folgen auf die berechneten effektiven z_0 -Werte. Die alte Methode

$$z_0^{eff} = e^{\ln(z_0^{grs}) + \ln(z_0^{ara}) + \dots + \ln(z_0^{oth})}$$

hatte den *effektiven z_0 -Wert* im Winter nach unten gezogen, weil die Rauigkeitslänge für unbebautes Land viel niedriger ist als die für die anderen Vegetationsklassen. Daher wurde eine alternative Methode für die Bestimmung des *effektiven z_0 -Werts* der einzelnen Gitterzellen gewählt:

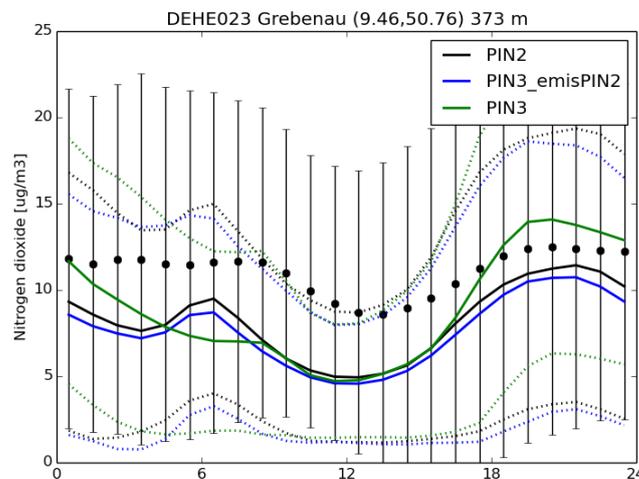
$$cd_{lu} = \frac{\kappa}{\ln\left(\frac{z_r}{z_0}\right)^2}$$

$$z_0^{eff} = z_r * e^{-\kappa/\sqrt{cd_{ave}}}$$

mit $\kappa=0.4$ und $z_r=60$ meter. Dies ist in erster Linie für Gitterzellen relevant, in denen mehrere Landnutzungsarten mit stark unterschiedlichen z_0 -Werten anzutreffen sind. Bei diesen Zellen führt die neue Berechnungsweise zu einem höheren z_0 -Wert, da die Landnutzungsklassen mit höheren z_0 -Werten jetzt ein größeres Gewicht in der Berechnung haben als bisher. Insgesamt ergibt sich daraus für die trockene Deposition in Deutschland ein geringfügig höherer rechnerischer Wert.

- Andere Berechnungsmethode für die atmosphärische Stabilität. Dies hat hauptsächlich zur Folge, dass sich die Mischungsschicht morgens schneller aufbaut und abends schneller verschwindet. Das führt dazu, dass bodennahe Konzentrationen morgens schneller mit höher gelegenen Schichten vermischt werden, während dieser Prozess nachts langsamer verläuft. Das Verfahren zur Berechnung der atmosphärischen Stabilität wurde geändert, nachdem man festgestellt hatte, dass der tägliche Verlauf der modellierten Konzentrationen nicht im Einklang mit den Messungen stand. Der Effekt, den das neue Modell auf die tägliche Schwankung der Luftkonzentrationen hat, wird in Abbildung 28 für NO_2 in dem Ort Grebenau in Hessen illustriert. Hier ist ersichtlich, dass die Mischung in der neuen Version des Modells früher anfängt und die Messungen etwas getreuer wiedergibt. Die Unterschiede sind allerdings gering.

Abbildung 28: Vergleich der gemessenen (schwarze Punkte) und modellierten (alt-blau; neu-grün) Tagesgänge von NO_2 für das Standort Grebenau in Hessen. Für alle Variablen sind auch die Standardabweichungen um den Mittelwert angegeben.



Quelle: eigene Darstellung, TNO

- Die meteorologischen Daten wurden an den aktuellen Stand der Wissenschaft angepasst. Im LOTOS-EUROS-Modell werden Wetterdaten des ECMWF verarbeitet. Die Werte für die PINETI-Projekte stammen immer aus dem operationellen Datenfluss (kurzfristige Wetterprognose über 0 bis 12 Stunden). Bis zum Projekt PINETI-2 lag die Auflösung der abgerufenen Daten bei $0,50 \times 0,25$ Grad (geografische Länge und Breite), was in europäischen Breiten ungefähr 25×25 Kilometern entspricht. Für das aktuelle Projekt wurde die Auflösung hingegen auf $0,14$ Grad verbessert, was ungefähr 7×14 Kilometern über Europa entspricht. Außerdem wurde die vertikale Auflösung der abgerufenen Daten verbessert. Als Ergebnis der höheren Auflösung sind die mit dem Modell erzeugten Simulationen detailreicher; dies gilt insbesondere über Gebieten mit sehr unterschiedlichen Wetterbedingungen wie zum Beispiel Küsten- und Bergregionen.

Der Effekt dieser Änderungen auf die Modellrechnungen wird im folgenden Abschnitt beschrieben.

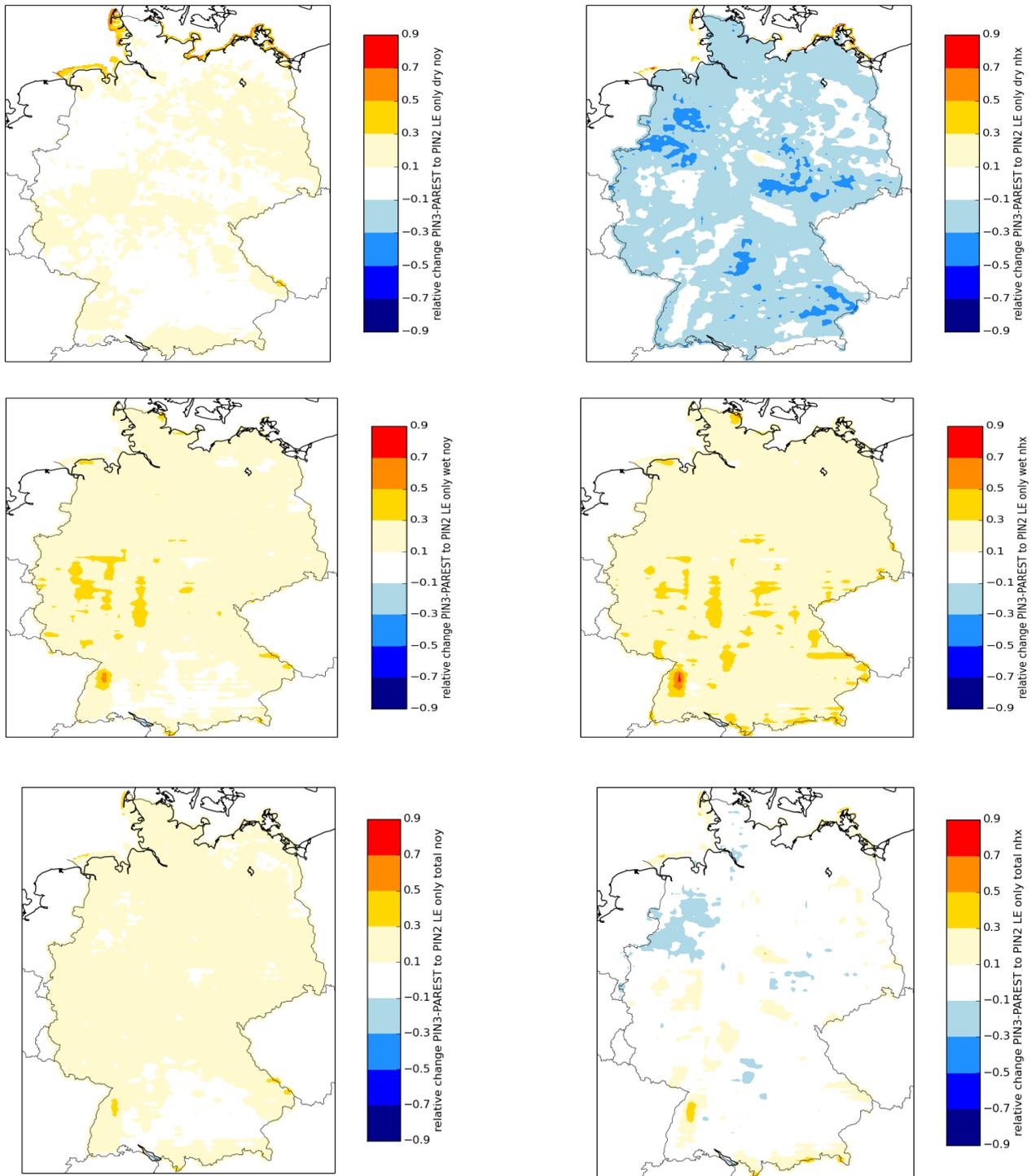
4.1.2 Effekt auf die Modellergebnisse

Die Änderungen des LOTOS-EUROS-Modells ergaben eine 5-prozentige Zunahme der modellierten Stickstoff-Gesamtdeposition für die Gesamtfläche Deutschlands im Jahr 2009. Die nasse und trockene Deposition von NO_y erhöht sich um 18 Prozent beziehungsweise 10 Prozent, während die nasse Deposition von NH_x um 22 Prozent höher ausfällt und die trockene Deposition um 18 Prozent sinkt. Insgesamt liegt die modellierte NO_y -Deposition um 15 Prozent höher als bisher. Die durchschnittliche NH_x -Gesamtdeposition für Deutschland bleibt gleich. Abbildung 29 enthält Karten mit der durchschnittlichen Deposition über Deutschland. In Bezug auf NO_y ist der Anstieg der trockenen Deposition relativ gleichmäßig über das Land verteilt, mit Ausnahme von Gebieten im Westen und Süden, in denen keine große Veränderung der Deposition feststellbar ist. Die Deposition von NH_x nimmt in großen Teilen des Landes ab; davon ausgenommen sind die großen Wälder. Die größte Abnahme erfolgt in NH_3 -Quellregionen; auch Gebiete mit einem großen Anteil an Ackerland weisen ausnahmslos rückläufige Werte auf für fast alle Landnutzungsklassen durch die niedrigere effektive Rauigkeitslänge im Winter. Die nasse Deposition von NO_y und NH_x nimmt landesweit gleichmäßig verteilt zu. Ein stärkerer Anstieg ist in Gebieten zu beobachten, in denen der neue, höher aufgelöste Wetterdatensatz höhere Niederschläge ergibt als der alte Datensatz. Die NO_y -Gesamtdeposition nimmt mit Ausnahme einiger Gebiete

in Niedersachsen sowie großer Gebiete von Bayern und Baden-Württemberg im ganzen Land gleichmäßig zu. Die Gesamtdeposition von NH_x erfährt für das Land als Ganzes kaum Änderungen, wobei jedoch die Deposition in Niedersachsen abnimmt und die Deposition in waldigem Hügelland ansteigt.

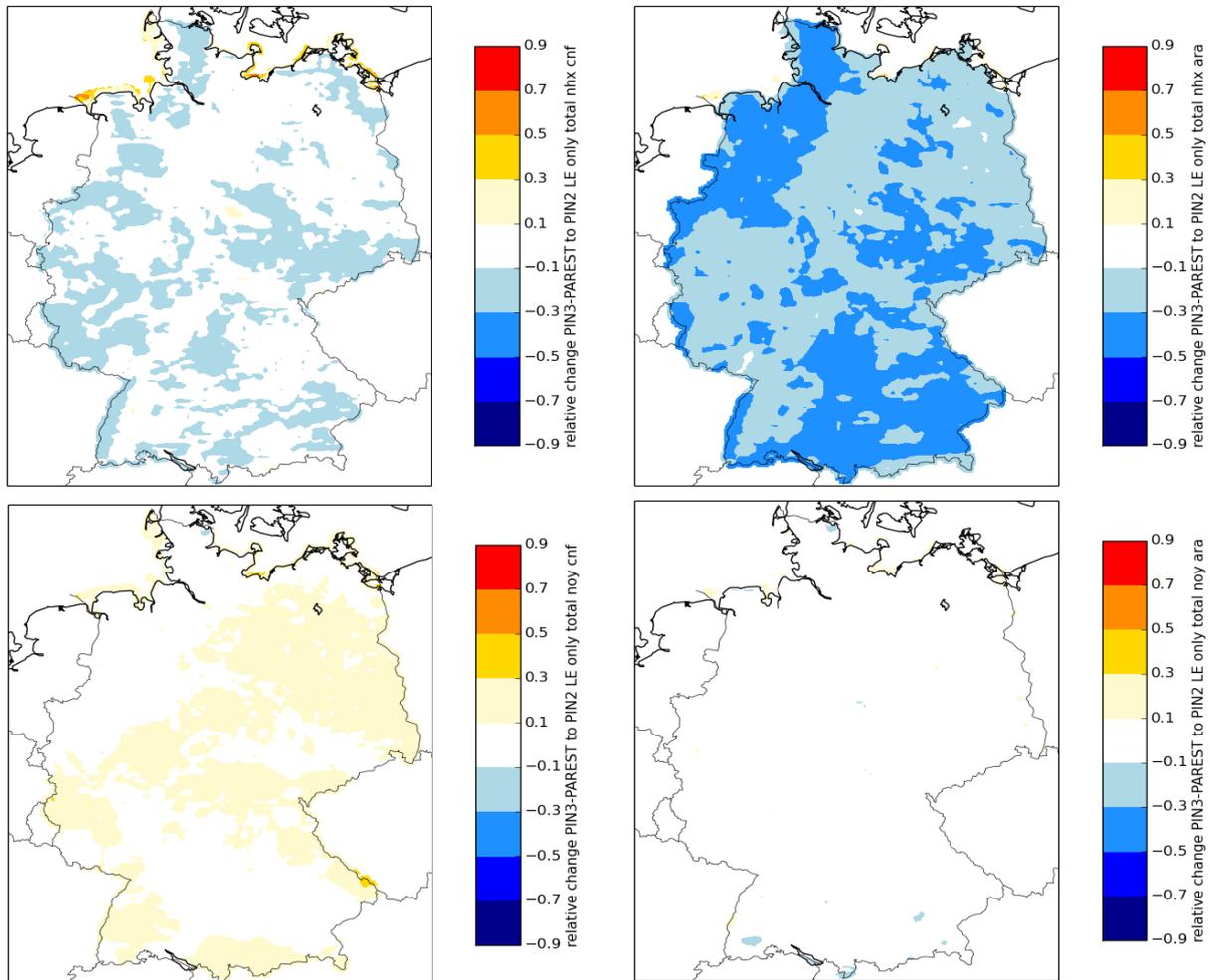
Während die nasse Deposition in jeder Landnutzungs-kategorie gleich hoch ausfällt, ist die trockene Deposition von der Art der Landnutzung abhängig. Die Änderungen der Modellversion haben nicht in jeder Landnutzungs-kategorie denselben Effekt. Die rechnerische trockene NH_x -Deposition für Ackerland verringert sich um 30 Prozent, während die Abnahme bei permanent crops und Nadelwald nur 13 Prozent beziehungsweise 8 Prozent beträgt. Die trockene Deposition von NO_y über Ackerland hat sich um 1 Prozent erhöht; für permanent crops beträgt dieser Wert 13 Prozent und für Nadelwälder 9 Prozent. Die Karten für Nadelwald und Ackerland sind in Abbildung 30 dargestellt. Dieser Unterschied zwischen den Landnutzungsarten ist darauf zurückzuführen, dass die Rauigkeit für Ackerland jetzt einem saisonalen Faktor unterliegt, der für die Wintermonate geringer ausfällt. Eine geringere Vegetationslänge beziehungsweise Rauigkeit führt zu einer niedrigeren Deposition. Die niedrigere Deposition auf Ackerland sorgt für eine längere atmosphärische Verweilzeit und größere Transportabstände im Winter. Daneben sind die Niederschläge im neuen meteorologischen Datensatz ein wenig höher und die Stabilitätsroutine hat vor allem morgens eine erhöhte, vertikale Durchmischung zur Folge. Letzteres hat in Quellgebieten auch zur Folge, dass sich die trockene Deposition (von Ammoniak) etwas verringert hat. Die nasse Deposition im Modellsystem hat damit relativ gesehen an Bedeutung zugenommen.

Abbildung 29. Relative Veränderung der trockenen (oben), nassen (Mitte) und Gesamtdeposition (unten) für NO_y (links) und NH_x (rechts) im LOTOS-EUROS-Modell v2.1 von PINETI-3 und LOTOS-EUROS v1.1.10 in PINETI-2 am Beispiel des Jahres 2009



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 30. Relative Veränderung der Gesamtdeposition für NH_x (oben) und NO_y (unten) im LOTOS-EUROS-Modell v2.1 von PINETI-3 und LOTOS-EUROS v1.10 in PINETI-2 für Nadelwald (links) und Ackerland (rechts) am Beispiel des Jahres 2009



Quelle: eigene Darstellung, TNO

4.2 Emissionsinventar

4.2.1 Änderungen im Emissionskataster und Zeitliche Variabilität

Im PINETI-2-Projekt wurde der deutsche PAREST-Emissionsdatensatz (Thiruchittampalam et al., 2010) als Basis für die räumliche Verteilung und die Emissionsdatenbasis der berichteten Emissionen des Jahres 2014 (UBA, 2014) für das LOTOS-EUROS-Modell verwendet. Für andere Länder wurde der TNO-MACC-II-Datensatz benutzt. Bei PINETI-3 wurde TNO-MACC-Emissionsdatensatz aktualisiert und auf den neueren Stand des TNO-MACC-III-Datensatzes gebracht. Für Deutschland wurde für die räumliche Verteilung anstelle des PAREST-Datensatzes der GRETA-Datensatz und für die Emissionsmengen die Daten der Berichterstattung 2017 (UBA, 2017) an Stelle der Berichterstattung 2014 verwendet (Abbildung 31). Es gibt daher Unterschiede sowohl in Bezug auf die Gesamtemissionswerte als auch auf die geografische Schwankungsbreite. Tabelle 12 enthält eine Gegenüberstellung der Gesamtemissionswerte sämtlicher anthropogenen Emissionen für PINETI-2 und PINETI-3; außerdem werden die mit dem GRETA-Ansatz geografisch verteilten Emissionen für NO_x und NH_3 ausgewiesen. Wie in Tabelle 12 ersichtlich ist, sind die Gesamtemissionen von NH_3 am Beispiel des Jahres 2009 in PINETI-3

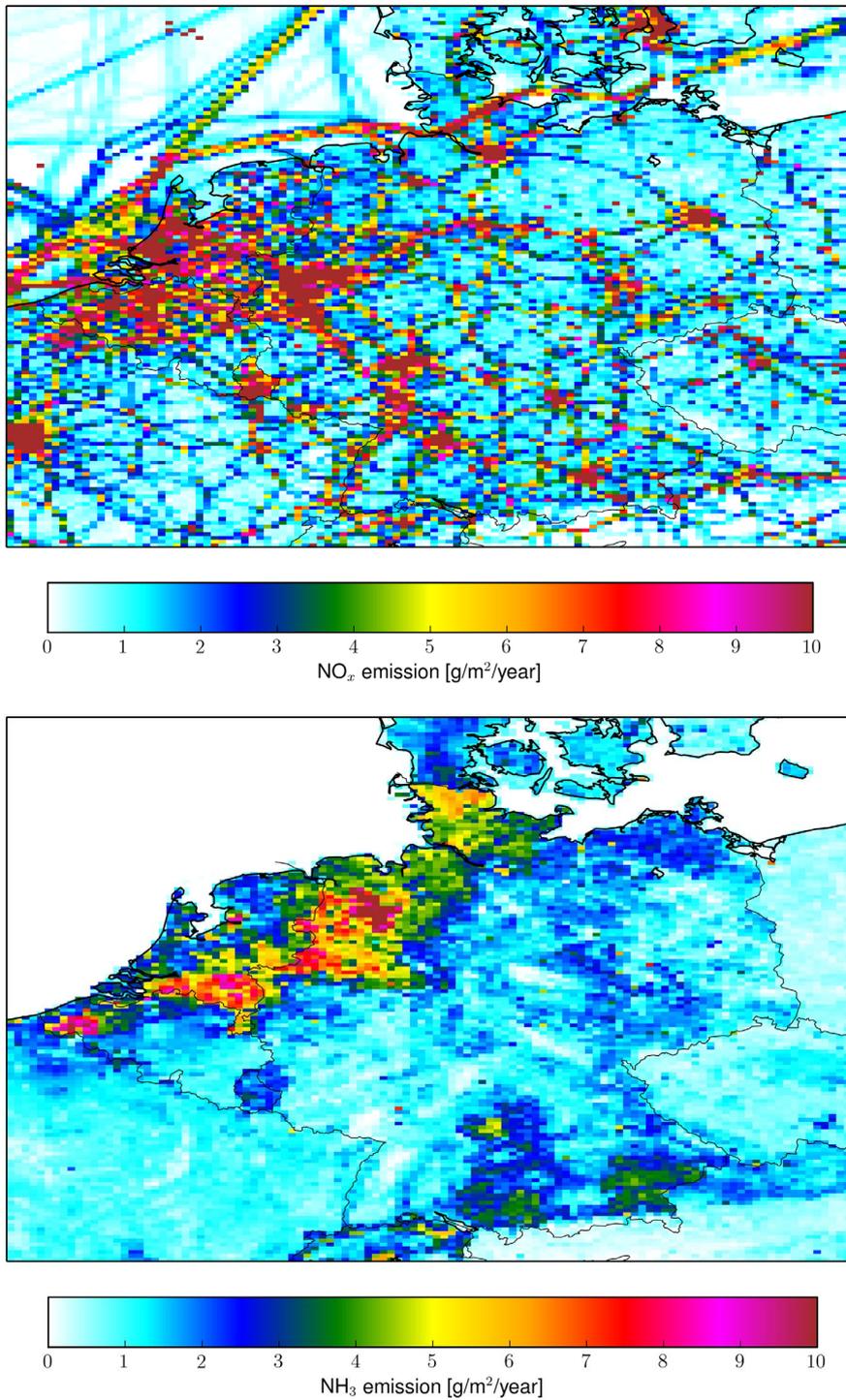
um 24 Prozent höher als im PINETI-2-Projekt. Bei den NO_x-Emissionen unterscheiden sich die beiden Berichterstattungsperioden kaum voneinander. Die Unterschiede zwischen den Gesamtemissionswerten und -mustern kommen im Ergebnis der Modellrechnung zum Ausdruck.

Tabelle 12: Emissionen (in Kilotonnen) für Deutschland im Jahr 2009 gemäß den verwendeten Emissionen der Berichterstattung 2014 bzw. 2017

	Berichterstattung 2014 (PINETI-2)	Berichterstattung 2017 (PI- NETI-3)
NO _x	1305	1310
NH ₃	574	710
CO	3016	2951
CH ₄	2454	2317
SO ₂	407	396
PM _{2.5}	105	110
PM _{coarse}	64	108
NM _{VOC}	911	1100

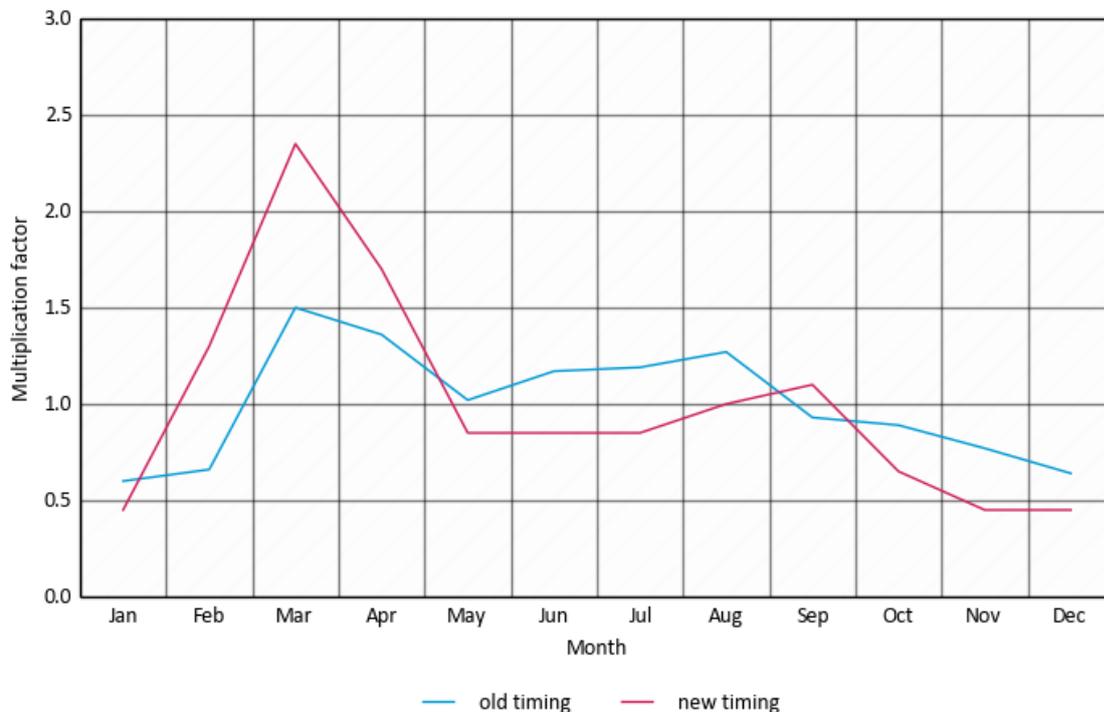
Neben den Gesamtemissionswerten und der geografischen Schwankungsbreite wurde auch die zeitliche Variabilität der NH₃-Emissionen angepasst, um eine getreue Wiedergabe der tatsächlichen zeitlichen Variabilität der Emissionen zu erreichen (Abbildung 32). Auch diese Verschiebung in Richtung Frühling kann Einfluss auf die Depositionsmuster und dabei insbesondere auf das Verhältnis zwischen nasser und trockener Deposition haben. Ein niederschlagsreicher Frühling wirkt sich in PINETI-3 stärker aus als früher, weil die Emissionen heute höhere Spitzenwerte als in den bisherigen Modellrechnungen erreichen.

Abbildung 31. Emissionskarten für Deutschland (GRETA) mit NO_x- (oben) und NH₃-Werten (unten)



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 32: Zeitliche Variabilität von Ammoniakemissionen im LOTOS-EUROS-Modell

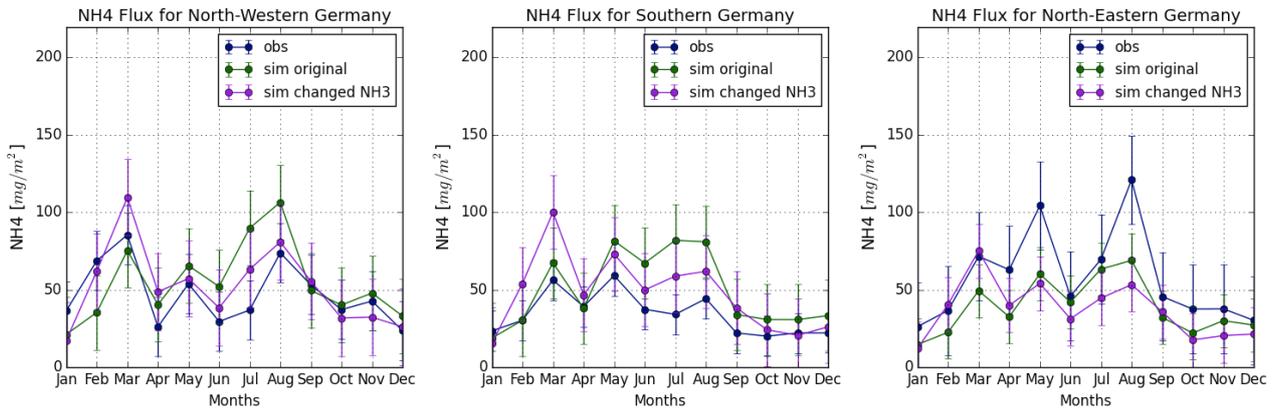


Quelle: eigene Darstellung, TNO

4.2.2 Sensitivität der Modellierung

Der Effekt der Veränderungen in der Emissionsdatenbank auf die modellierte Deposition von NO_y (links) und NH_x (rechts) ist in Abbildung 34 für trockenen (oben), nassen (Mitte) und gesamten Deposition ersichtlich. Über dem Nord-Ostsee-Kanal ist eine erhöhte trockene NO_y -Deposition gegeben, weil in dem verwendeten Emissionsdatensatz ein größerer Teil der NO_x -Emissionen auf den Schiffsverkehr entfällt. Ansonsten ergeben sich aus der Umstellung auf einen anderen Emissionsdatensatz keine wesentlichen Änderungen bei der NO_y -Deposition. Da weder bei den Gesamtemissionen noch bei der geografischen und zeitlichen Variabilität große Änderungen stattgefunden haben, war dies vorhersehbar. Bei den Werten für NH_x sind die Unterschiede viel größer, was zu erwarten war, da die NH_3 -Gesamtemission im GRETA-Datensatz größer ist als im PAREST-Datensatz. In jenen Regionen in der Nordhälfte Deutschlands, in denen viel Landwirtschaft betrieben wird, erhöht sich die trockene NH_x -Deposition um 30 bis 100 Prozent, während die trockene Deposition an einigen anderen Orten um 40 Prozent geringer ausfällt. Dies ist eine Folge der Veränderungen in den geografischen Emissionsmustern. Daneben gab es im PAREST-Datensatz einige industrielle Punktquellen mit relativ niedriger Emissionshöhe, die jetzt mit einer grösseren Höhe enthalten sind. Die modellierte nasse Deposition von NH_x nimmt in der Nordhälfte des Landes ebenfalls um 10 bis 40 Prozent zu, wobei die regionalen Unterschiede geringer ausfallen als bei der trockenen Deposition. In Deutschland insgesamt fällt die NO_y -Deposition um 4 Prozent niedriger und die NH_x -Deposition um 16 Prozent höher aus.

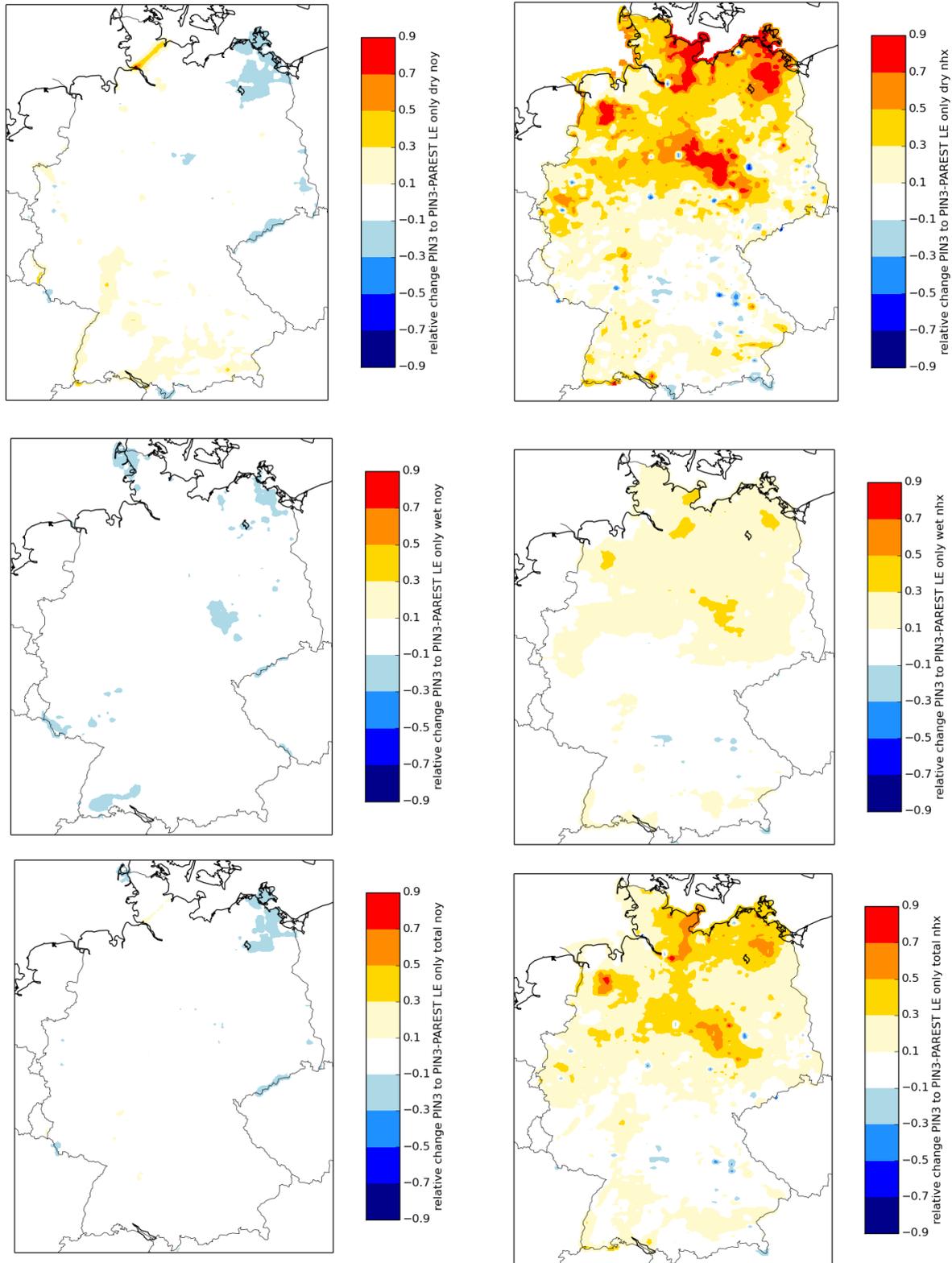
Abbildung 33: Gemessener und modellierter NH_4 -Fluss mit dem Effekt veränderter NH_3 -Emissionsvariabilität in LOTOS-EUROS für die Ergebnisse der Modellrechnungen



Quelle: eigene Darstellung, TNO

In Abbildung 33 wird der Effekt der geänderten Zeitpunkte für die Ammoniakemissionen auf die zeitliche Verteilung der NH_x -Deposition dargestellt. Allgemein liegen die Schätzwerte für die Sommerzeit zu hoch; dieses Manko wird durch die Aktualisierung der Emissionszeitpunkte zum großen Teil behoben. In Nordwest- und Süddeutschland verbessert sich die Genauigkeit der Modellrechnung für die Sommermonate deutlich. Allerdings ist die Genauigkeit der Frühjahrsrechnung für diese Regionen schlechter als bei Verwendung der bisherigen Zeitpunkte. Die höheren Emissionen im Frühjahr, die sich bei der neuen zeitlichen Variabilität ergeben, führen dazu, dass die Schätzwerte für die Konzentrationen im Regenwasser zu hoch liegen. In der nordöstlichen Region ist es umgekehrt: Die Konzentrationen im Frühjahr wurden zu niedrig eingeschätzt und werden jetzt deutlich genauer angegeben. Im Gegensatz zu den übrigen Regionen weisen die Messwerte für Nordostdeutschland im Spätfrühling und im Sommer zwei deutliche Ausschläge nach oben auf; beide werden in der Modellrechnung nicht in dieser Stärke wiedergegeben. Dies lässt vermuten, dass die Ammoniakemissionen je nach Region unterschiedlich hoch ausfallen, was an unterschiedlichen Bewirtschaftungsmethoden, unterschiedlichen Fruchtkulturen und/oder einem anderen Verhältnis zwischen Viehzucht und Ackerbau liegen dürfte.

Abbildung 34: Relative Veränderung der trockenen (oben), nassen (Mitte) und Gesamtd deposition (unten) von NO_y (links) und NH_x (rechts) im LOTOS-EUROS-Modell bei Verwendung der GRETA- beziehungsweise der PAREST-Emissionen



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Tabelle 13: Mit LOTOS-EUROS modellierte Deposition (in eq ha⁻¹ a⁻¹) in Deutschland für das PINETI-2-Projekt und das PINETI-3-Modellrechenverfahren mit den PINETI-2- bzw. PINETI-3-Emissionen (ohne Einbeziehung der Messwerte der nassen Deposition).

	PINETI-2	PINETI-3-Verfahren, PINETI-2-Emissionen	PINETI-3
Noy wet	166	196	184
Noy dry	128	141	140
NHx wet	278	338	368
NHx dry	334	272	337
Noy total	293	336	324
NHx total	612	610	705
N total	905	946	1029

4.3 Gesamteffekt für die LOTOS-EUROS-Modellierung

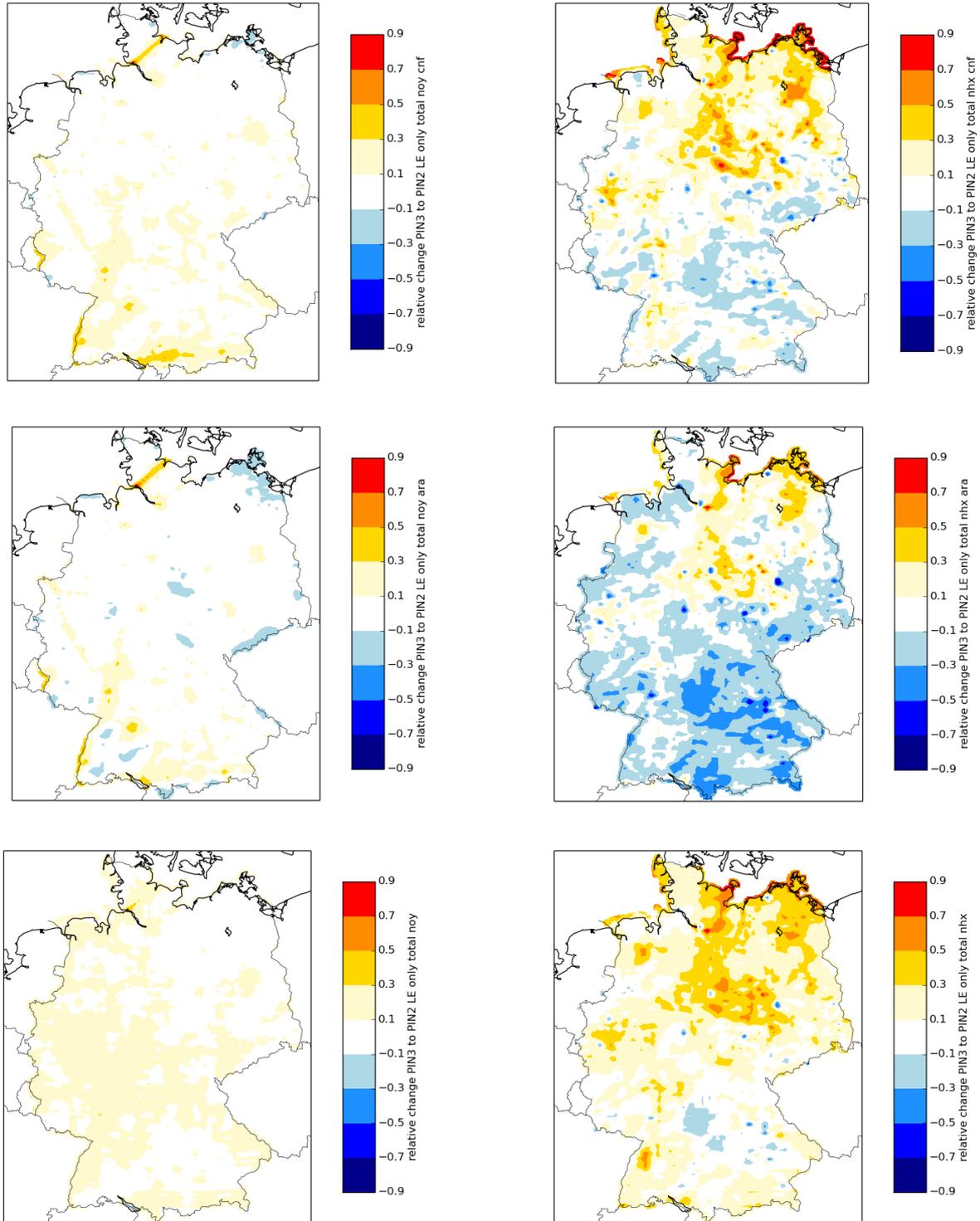
Der Gesamteffekt der Veränderungen im LOTOS-EUROS-Modell und in den Eingangsdaten auf die Deposition von NO_y (links) und NH_x (rechts) ist in Abbildung 35 für Nadelwälder (oben), Ackerland (Mitte) und Deutschland insgesamt (unten) ersichtlich. Aus dieser Abbildung geht hervor, dass die Deposition bei Ackerland in großen Teilen des Landes zurückgegangen ist; davon ausgenommen sind nur jene Gebiete, in denen die Emissionsdichte stark angestiegen ist. Bei Nadelwäldern ist in den meisten Landesteilen ein Anstieg der NH_x-Gesamtdeposition zu verzeichnen, wobei die Zunahme in Gegenden in der Nähe jener Regionen, die in der GRETA-Emissionsdatenbank als deutlich stärkere Quellgebiete ausgewiesen sind als in der PAREST-Datenbank, mehr als 50 Prozent beträgt.

An dieser Stelle soll darauf hingewiesen werden, dass die modellierte Gesamtdeposition auf Basis der realen Landnutzungsverteilung (Abbildung 35 unten) insgesamt ansteigt. Es sollte bewusst werden, dass die Abnahmen in der Landnutzungsklasse Ackerland, sich nur in beschränkter Maße auf die Gesamtdeposition im Landnutzungsmosaik auswirken bzw. von einer Zunahme der nassen und trockenen Deposition auf natürliche Landnutzungsflächen ausgeglichen wird.

Die unterschiedlichen Depositionsflüsse, die mit dem PINETI-2-Rechenverfahren sowie dem PINETI-3-Rechenverfahren mit PAREST- bzw. GRETA-Emissionen ermittelt wurden, sind in Quelle: eigene Darstellung, TNO

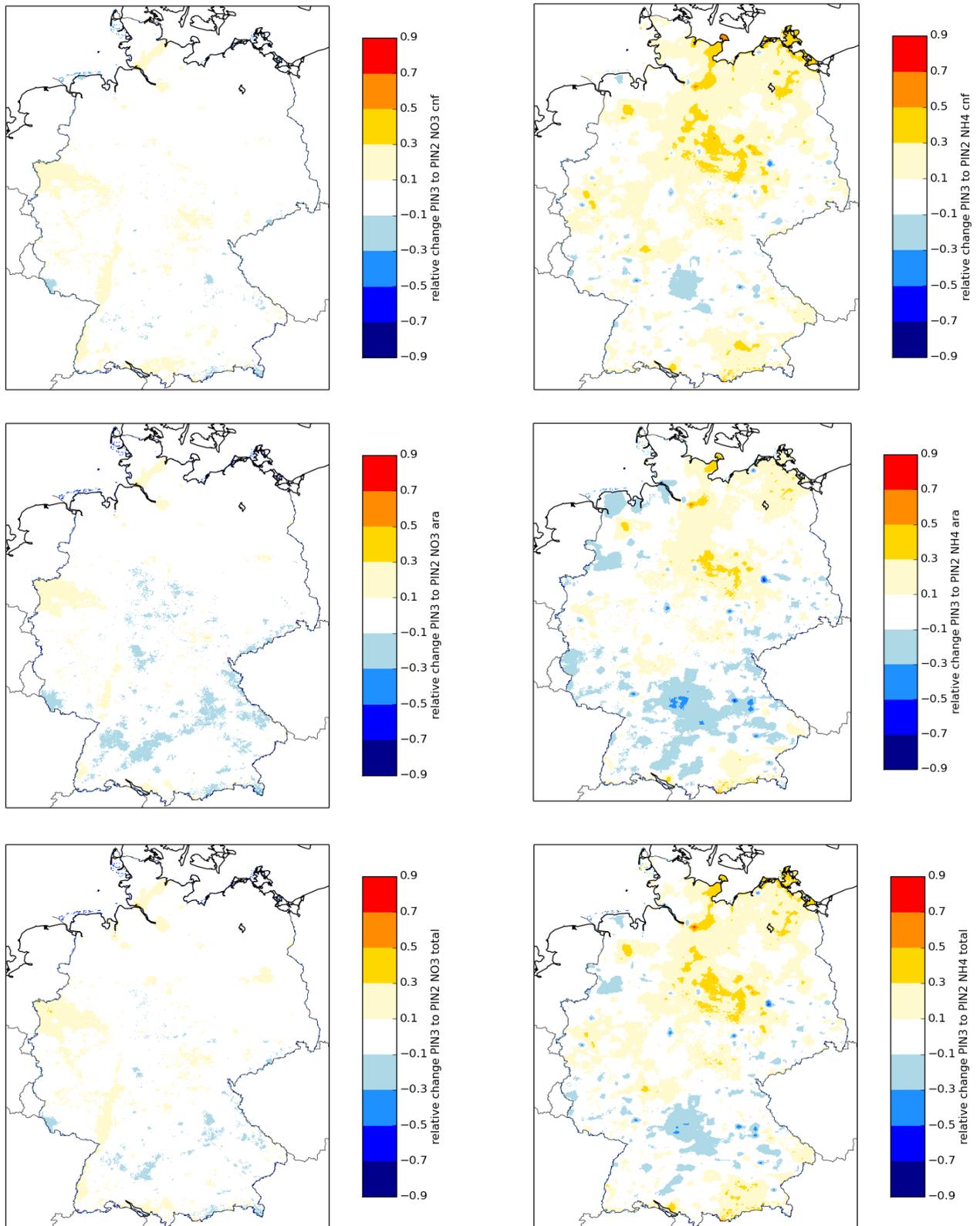
Tabelle 13 aufgeführt. Die Tabelle macht deutlich, dass die neue Rechenmethodik zu erhöhten trockenen und nassen NO_y Einträgen führt. Für NH_x haben die Änderungen der Modellversion im Durchschnitt eine Verschiebung von trockener Deposition zu nasser Deposition zur Folge. Die erhöhten Emissionen haben eine Erhöhung der modellierten Deposition von 16 % zur Folge. Im Vergleich zum Modellergebnis in PINETI-2 ist vor allem die modellierte nasse Deposition erhöht worden. Für die trockene Deposition erkennt man vor allem eine Änderung im räumlichen Muster und eine Verschiebung zwischen Landnutzungsklassen.

Abbildung 35. Unterschied zwischen den Ergebnissen der PINETI-3- und der PINETI-2-Modellrechnung (ohne Einbeziehung der Messwerte der nassen Deposition) für NOy (links) und NHx (rechts) bei Nadelwald (oben), Ackerland (Mitte) und der tatsächlichen Landnutzung in Deutschland



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 36. Unterschied zwischen den endgültigen Ergebnissen nach PINETI-3 und PINETI-2 für NO_y (links) und NH_x (rechts) bei Nadelwald (oben), Ackerland (Mitte) und der tatsächlichen Landnutzung in Deutschland (unter Einbeziehung der Messwerte der nassen Deposition)



Quelle: eigene Darstellung, TNO

4.4 Gesamteffekt für die PINETI-Kartierung

Wegen der Berechnung der nassen Deposition unter Berücksichtigung der Information aus Messdaten und der Addierung der feuchten Deposition werden in der endgültigen Kartierung am Ende nur die Felder der trockenen Deposition direkt aus der LOTOS-EUROS Modellierung entnommen. Für NO_y sind diese leicht höher im Vergleich zu PINETI-2, während sich für NH_x vor allem das räumliche Muster sich geändert hat. Auch die Kartierung der nassen Deposition hatte im Wesentlichen nur ein geändertes räumliches Muster zur Folge.

Im Großen und Ganzen hat sich die mittlere Gesamtdeposition über Deutschland in PINETI-3 daher leicht erhöht im Vergleich zu PINETI-2. Das räumliche Muster hat sich dagegen deutlich geändert (siehe Abbildung 36). In Bezug auf NO_y sind die Unterschiede klein; in den Gebieten mit hoher NO_x -Emission kommt es jedoch zu einer stärkeren Deposition. Wegen der nunmehr in dem Modell enthaltenen Winterpause für Ackerland unterscheiden sich PINETI-3 und PINETI-2 in dieser Beziehung weniger voneinander als bei den Werten für Nadelwälder. Insgesamt ergibt sich durch die Umstellung der Emissionsdaten ein Anstieg der NH_x -Deposition in der Nordosthälfte des Landes sowie im Süden, während die NH_x -Gesamtdeposition im Rest des Landes leicht abnimmt. Nur in örtlich begrenzten Flächen und der Grenzregion Hessen/Baden-Württemberg/Bayern ist die kartierte NH_x Deposition nun mehr als 10% niedriger als im PINETI-2. Diese Zahlen zeigen auch, dass sich der Kontrast zwischen den Landnutzungsklassen Nadelwald und Ackerland verstärkt hat, was zu einer im Verhältnis stärkeren Deposition bei Nadelwäldern und zu einer geringeren Deposition bei Ackerland führt.

Die Gesamtdeposition stellt logischerweise eine Kombination der Ergebnisse in den einzelnen Landnutzungsklassen dar.

5 Qualitätssicherung der Depositionskartierung

Um die Qualität der Depositionskarten bestimmen zu können, ist ein Vergleich zwischen den Ergebnissen der Chemietransportmodellierung sowie den Endergebnissen der PINETI-Kartierung und den Messwerten erforderlich. Im ersten Abschnitt werden die Werte des LOTOS-EUROS-Modells mit den Luftkonzentrationen und den Messwerten für die nasse Deposition verglichen. In den darauffolgenden Abschnitten folgt ein Vergleich der Kronenraumbilanzstationen sowie der Depositionsschätzungen benachbarter Länder mit den Ergebnissen von PINETI-3. Frühere Studien zur Deposition in Deutschland werden ebenfalls mit den Ergebnissen der laufenden Forschungsarbeit verglichen.

5.1 Chemietransportmodellierung

5.1.1 Luftkonzentrationen

Die Luftkonzentrationswerte von NO_2 , SO_2 und NH_3 der drei LOTOS-EUROS-Modellrechnungen (PINETI-2, PINETI-3-Modellrechenverfahren mit PINETI-2-Emissionen und PINETI-3) für 2009 wurden mit Messungen in Deutschland verglichen (siehe Abbildung 37).

In Bezug auf NO_2 ist deutlich, dass sich mit PINETI-3 ein genaueres Bild ergibt als bei den beiden anderen Modellrechnungen: Der räumlichen Korrelationskoeffizient ist größer, und die Steilheit liegt näher bei 1, womit die Modellergebnisse näher an den gemessenen Werten liegen als die Ergebnisse der beiden anderen Modellläufe. Insbesondere die geografische Schwankungsbreite wird jetzt besser wiedergegeben, was vor allem auf die Erneuerung der Emissionsdaten zurück zu führen ist. Zwar ist die Modellqualität besser als in PINETI-2, es gibt aber immer noch eine systematische Unterschätzung der gemessenen Luftkonzentrationen.

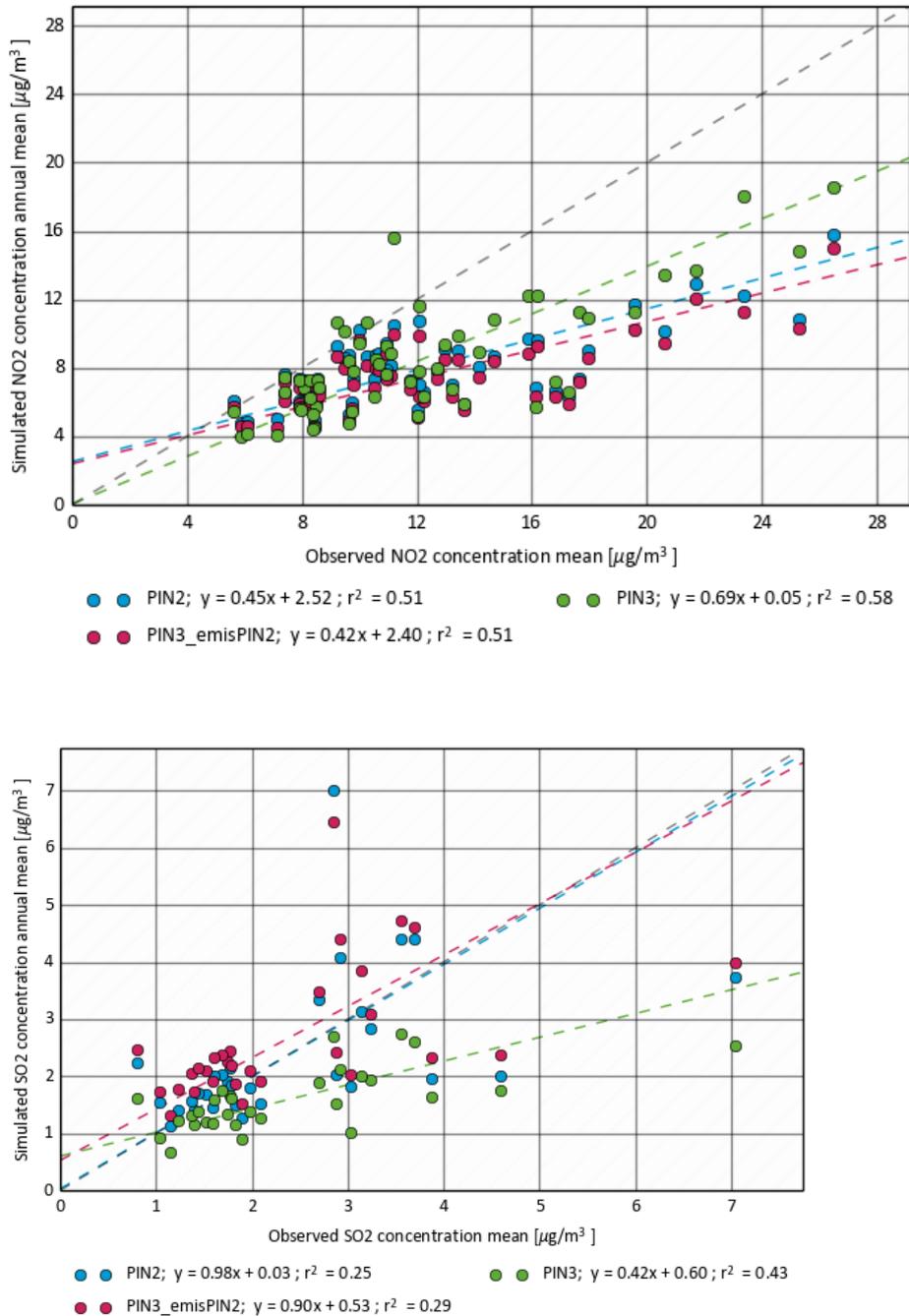
In Bezug auf SO_2 ergibt sich ein anderes Bild. Während die räumliche Korrelation zwischen Mess- und Modellwerten im PINETI-3-Modellrechenverfahren besser ist, liegen die errechneten Werte jetzt unter den gemessenen Werten. Dass dies beim Durchlauf mit dem PINETI-3-Rechenverfahren und PINETI-2-Emissionen weniger stark ausgeprägt ist, lässt den Schluss zu, dass die Umstellung auf eine andere Emissionsdatenbank auch hier einen großen Unterschied macht. Während sich die SO_2 -Gesamtemissionen im GRETA-Datensatz nicht wesentlich von denen des PAREST-Datensatzes unterscheiden, wurde auch die Höhenverteilung der Emissionen erneuert. In der neuen Höhenverteilung wird ein größerer Teil der Emissionen in größeren Höhen ausgestoßen, was zu einer Verringerung der bodennahen SO_2 -Konzentrationen führt. Im Gegensatz zu NO_x und NH_3 wird SO_2 vor allem aus Punktquellen emittiert. Dementsprechend ist es zu empfehlen zu untersuchen, ob es Bedarf gibt, die Höhenverteilung der Emissionen innerhalb von GRETA zu spezifizieren.

Beim Durchlauf des PINETI-3-Verfahrens mit PAREST-Emissionswerten zur Validierung von NH_3 (Abbildung 38) ergeben sich im Vergleich zu PINETI-2 durchgängig niedrigere Konzentrationen. Auf der Grundlage der neuen Emissionsdatenbank nehmen die NH_3 -Konzentrationen selbst im Vergleich zum PINETI-2-Durchlauf an den meisten Orten zu. Dies ist eine Folge der gestiegenen NH_3 -Emissionen. Da die Ammoniak-Konzentrationen von Jahr zu Jahr stark schwanken können (abhängig davon, wie warm der Frühling war) wird in Abbildung 39 der Vergleich für alle verfügbaren monatlichen Konzentrationsdaten innerhalb Deutschland gezeigt. Insbesondere bei Standorten mit hohen NH_3 -Werten liegen die nach PINETI-3 berechneten Konzentrationen besser rund um die eins-zu-eins Linie. Daran zeigt sich, dass im grossen Ganzen das Emissionsmuster jetzt besser die tatsächliche Emissionsverteilung wiedergibt. Die nach wie vor erhebliche Streuung um die eins-zu-eins Linie zeigt allerdings auch, dass sich die zeitliche und räumliche Variabilität der Emissionen noch weiter verfeinern lassen.

Partikelförmiges Ammonium, Sulfat und Nitrat spielen eine wichtige Rolle beim Ferntransport von Stickstoff- und Schwefelverbindungen. In Abbildung 40 werden die modellierten und die gemessenen

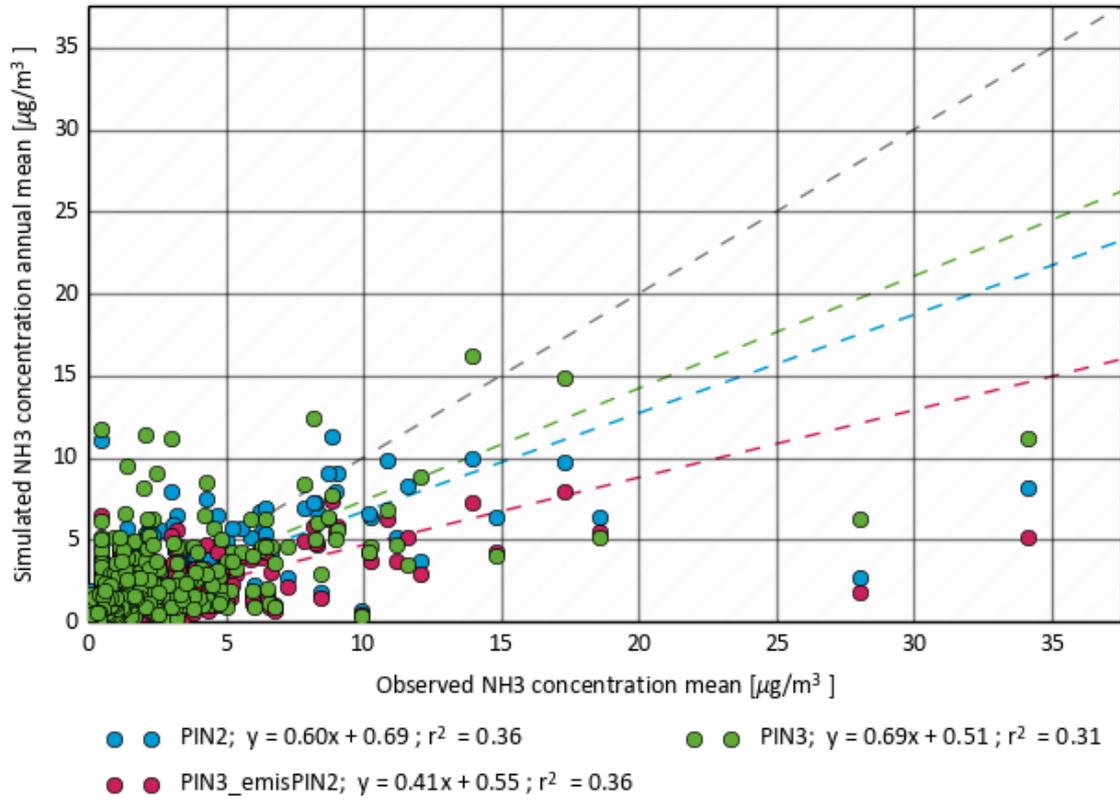
sekundären anorganischen Partikel (SIA-Verbindungen) am Beobachtungsstandort Neukölln in Berlin für das Jahr 2014 im Vergleich dargestellt. Die modellierte Luftkonzentration von Nitrat entspricht den Messwerten am besten, während die Werte für NH_4 und insbesondere SO_4 zu niedrig angesetzt werden. Letzteres stimmt überein mit der Unterschätzung von Schwefeldioxid. Die Unterschätzung von Ammonium lässt sich erklären durch die Unterschätzung von Sulfat, da Sulfat als Ammoniumsalz im Feinstaub anwesend ist.

Abbildung 37: Vergleich der LOTOS-EUROS-Ergebnisse im PINETI-3-Verfahren mit den Luftkonzentrationsmesswerten für NO_2 und SO_2 .



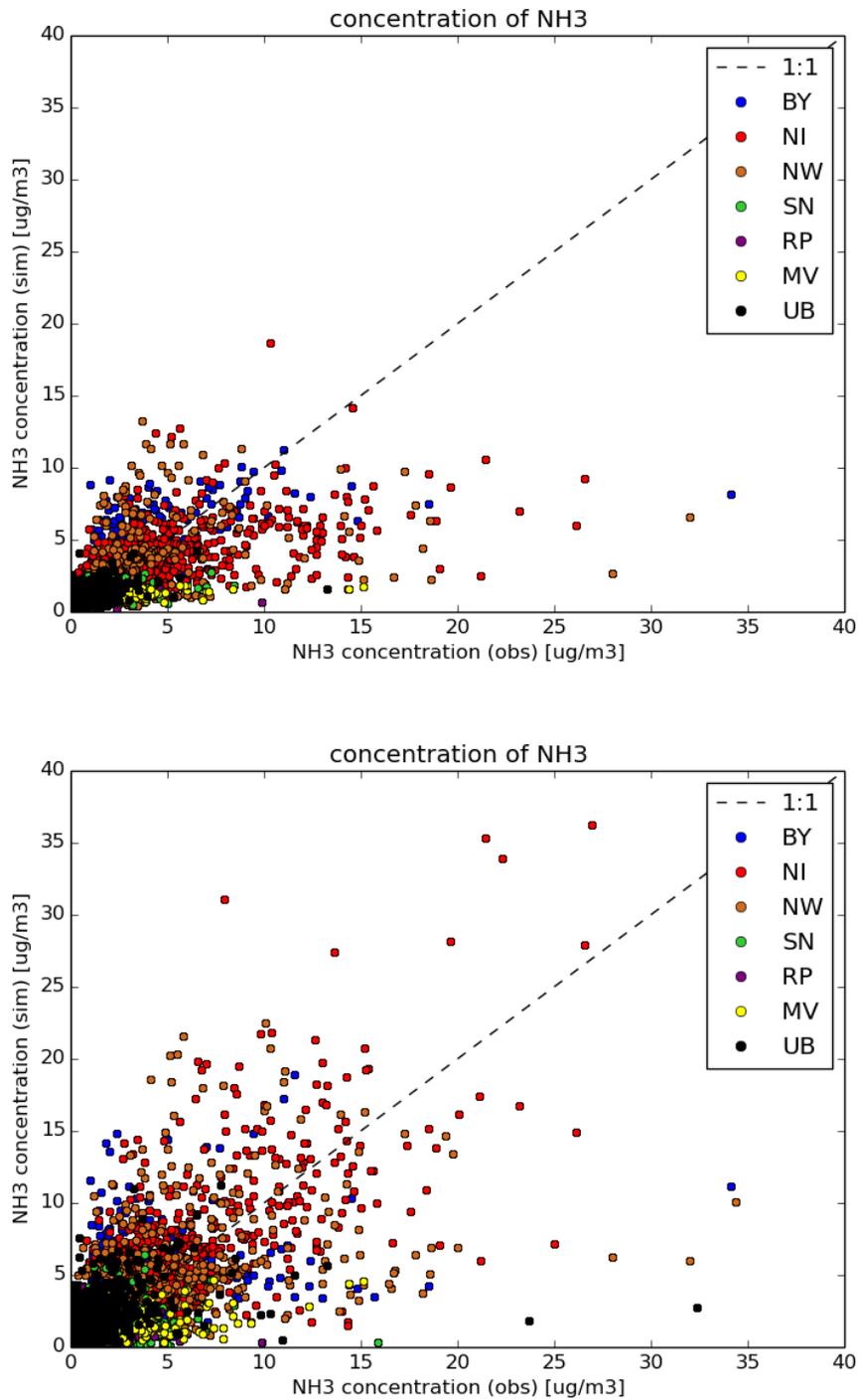
Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 38: Vergleich der LOTOS-EUROS-Ergebnisse im PINETI-3-Verfahren mit den Luftkonzentrationsmesswerten für NH₃.



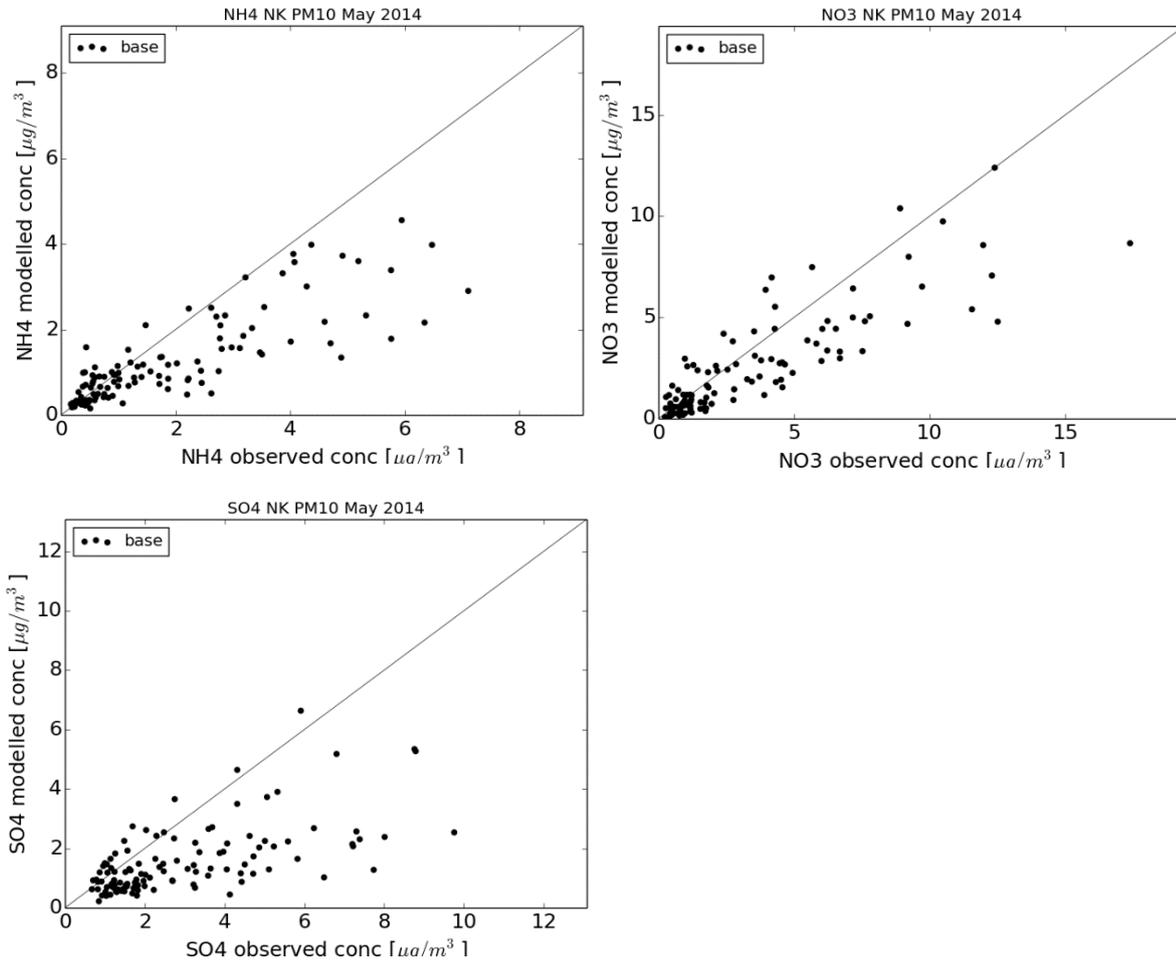
Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 39: Vergleich der modellierten und gemessenen Ammoniakkonzentrationen (Monatswerte) für alle verfügbaren Standorte innerhalb Deutschland zwischen 2002 und 2015. Oben: Vergleich für PINETI-2 Methodik, Unten: Vergleich für PINETI-3 Modellierung



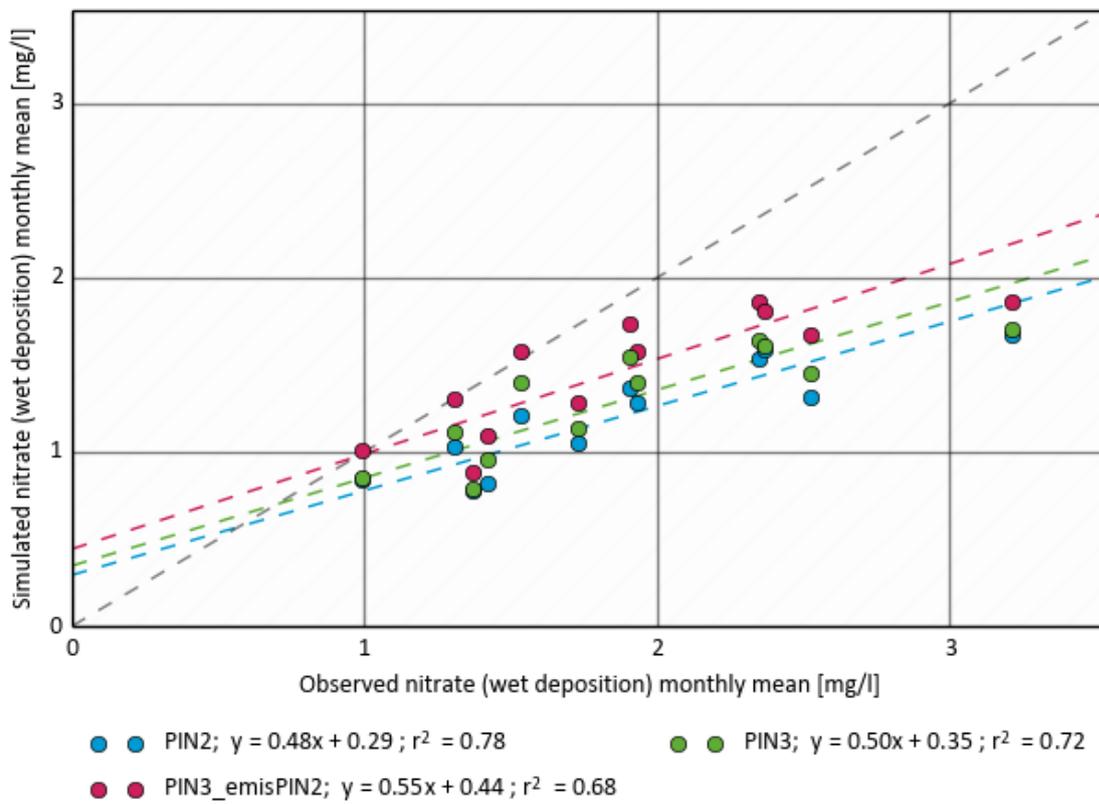
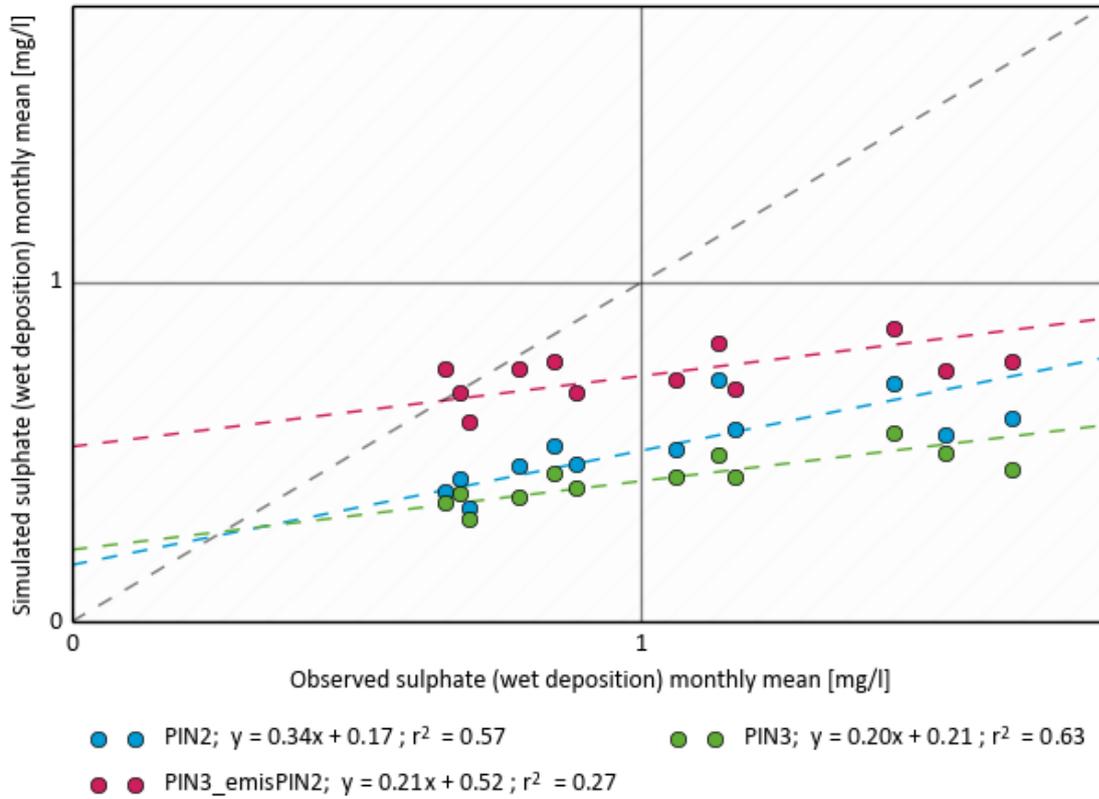
Quelle: eigene Darstellung, TNO

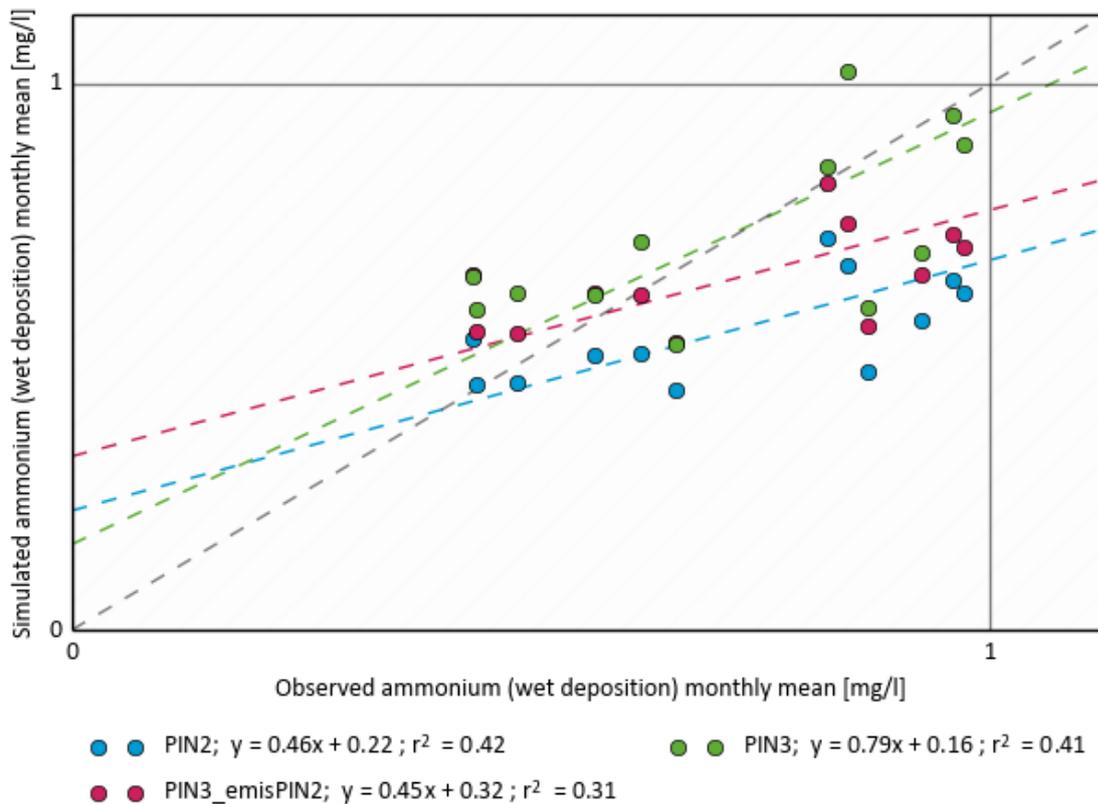
Abbildung 40. Vergleich der gemessenen NH₄-, NO₃- und SO₄-Konzentrationen mit modellierten Konzentrationen aus dem LOTOS-EUROS-Modellrechenverfahren nach PINETI-3



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Abbildung 41: Vergleich der EMEP-Messungen für die nasse Deposition von Sulfat, Nitrat und Ammonium mit den Ergebnissen der LOTOS-EUROS-Modellrechnung





Quelle: eigene Darstellung, TNO

5.1.2 Nasse Deposition

Ein Vergleich zwischen der gemessenen und der modellierten nassen Deposition (Konzentration im Niederschlagswasser) an EMEP Messstandorten in Deutschland ist in Abbildung 41 dargestellt. In Bezug auf Sulfat nimmt die Regenwasserkonzentration beim Wechsel vom PINETI-2- zum PINETI-3-Rechenverfahren zu (man vergleiche rote und blaue Punkte), während die modellierte Konzentration im Niederschlagswasser bei der Umstellung auf die neue Emissionsdatenbank (man vergleiche rote und grüne Punkte) wiederum stark abnimmt. Dies ähnelt der Beobachtung, die bei der SO_2 -Luftkonzentration gemacht wurde. Bei Nitrat haben sowohl der Wechsel der Modellversion als auch die Umstellung auf eine andere Emissionsdatenbank einen viel geringeren Effekt auf die Qualität der Modellrechnung. In Bezug auf Ammonium zeichnen die PINETI-3-Modellrechnungen ein genaueres Bild als die beiden anderen Verfahren. Die Regenwasserkonzentrationen liegen über den Werten, die beim Durchlauf mit den anderen Modellen errechnet wurden, was insbesondere für jene Gebiete gilt, in denen die LOTOS-EUROS-Werte bisher weit unter den Messwerten lagen. Dies ist auf den kombinierten Effekt von Modellversion, erhöhten Emissionen und einer besseren geografischen Emissionsvariabilität zurückzuführen.

Die Verfügbarkeit der interpolierten Messdaten erlaubt es die Unterschiede zwischen den modellierten und den empirisch bestimmten nassen Depositionsfeldern zu charakterisieren. In Abbildung 42 werden die relative Unterschiede zwischen den gekrigten Feldern (also inklusive Messdaten) und dem dazugehörigen Modelllauf (ohne Messdaten) gezeigt für die Modellierung mit LOTOS-EUROS innerhalb von PINETI-2 und PINETI-3. Das Verhältnis kann man als einen Faktor interpretieren, mit dem man die rein mit LOTOS-EUROS modellierten Felder erhöhen oder verringern muss, um auf den empirischen Wert zu kommen. Für oxidierten Stickstoff berechnet das LOTOS-EUROS Modell zu niedrige

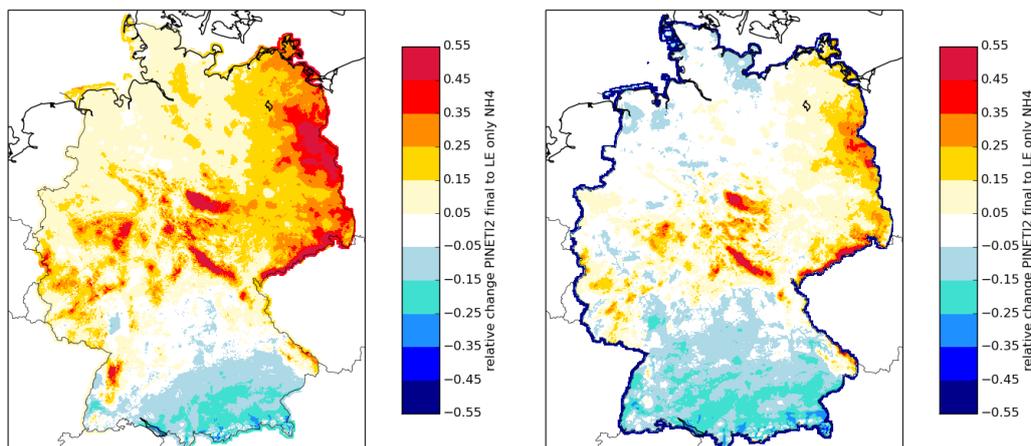
nasse Depositionswerte. In PINETI-3 ist die modellierte nasse Deposition etwas höher, so dass sich der systematische Unterschied ein wenig verringert. Vor allem in der Südhälfte ist der Unterschied relativ gering, während im Norden das reine Modellergebnis mit Faktoren zwischen 1,2 bis 1,6 multipliziert werden muss, um auf die Höhe der Messwerte zu kommen.

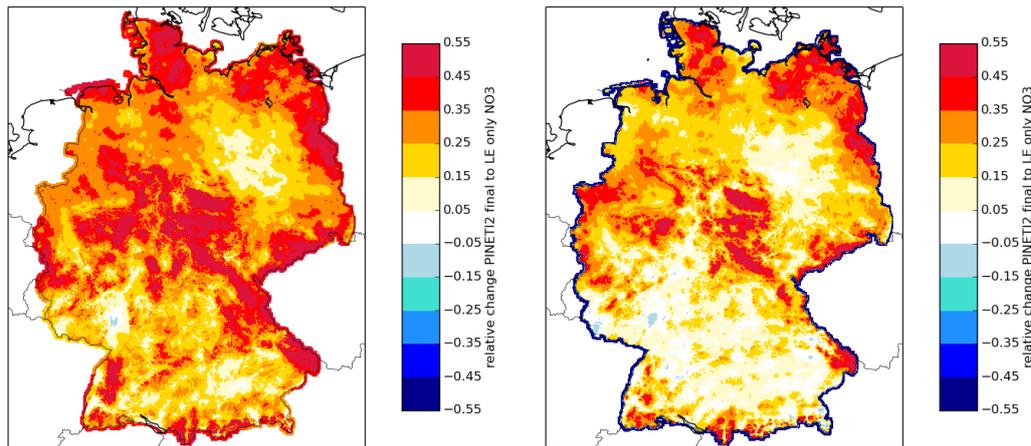
Der Einfluss der gemessenen Niederschlagsdeposition lässt sich v.a. in den Mittelgebirgslagen von Bayern, Sachsen, Thüringen und Baden-Württemberg erkennen.

Für reduzierten Stickstoff ist das Muster der Unterschiede deutlich anders. Die Unterschiede zwischen den gemessenen und modellierten nassen Jahresflüssen sind im (Nord-)Westen Deutschlands niedrig, während im Osten eine Unterschätzung der Modellierung von gemessenen Daten von bis zu 30% zu sehen ist. Im Gegensatz dazu, werden die modellierten Daten in Süddeutschland im Interpolationsverfahren nach unten korrigiert, weil die Modellierung dort die gemessene nasse Deposition überschätzt. Im Vergleich zu PINETI-2 haben sich die Unterschiede mit den Messungen verringert, außer in Bayern und Baden-Württemberg. Erste Vergleiche zu Satellitendaten von Ammoniak (nicht gezeigt) bestätigen dieses Muster, was darauf hinweisen könnte das die Emissionslage im Süden Deutschland vielleicht niedriger ist als im Inventar dargestellt. Andersum könnte es im Nordosten Deutschlands sein.

Zusammengefasst ergibt sich für NO_y ein systematischer Minderbefund in der Depositionsmodellierung mit LOTOS-EUROS. Für NH_x wird der Mittelwert ziemlich gut getroffen jedoch ist die räumliche Verteilung die grösste Herausforderung. In der Kartierung der nassen Deposition mit Residual Kriging werden die systematischen Unter- und Überschätzungen der nassen Deposition von LOTOS-EUROS durch Berücksichtigung von Messwerten abgemildert.

Abbildung 42: Relativer Unterschied zwischen den gekrigten Feldern (also inklusive Messdaten) und dem dazugehörigen Modelllauf (ohne Messdaten) der nassen deposition für NH_x (oben) und NO_y (unten) innerhalb PINETI-2 (links) und PINETI-3 (rechts)





Quelle: eigene Darstellung, TNO

5.1.3 Mögliche Schritte zur Verbesserung der Modellierung

Innerhalb von PINETI-III wurden wichtige Schritte vollzogen, um die Berechnung der Einträge von Stickstoff zu verbessern. Gleichzeitig stellen sich auch im Rahmen der bisherigen Modellkombinationen noch bedeutende Forschungsfragen. Die wichtigsten Fragen sind:

Wie lässt sich die räumliche Verteilung der Deposition von reduziertem Stickstoff verbessern?

Die räumliche Verteilung der Stickstoffdeposition wird stark von der Emissionsverteilung beeinflusst. Dies gilt vor allem für Ammoniak, deren Emissionsverteilung jedoch in den nationalen Emissionsdaten nicht ausreichend detailliert vorliegt. Es wird empfohlen neue Ansätze zur Detaillierung der räumlichen Verteilung zu untersuchen.

Auch die Variabilität der Ammoniakemissionen in der Zeit lässt sich weiter detaillieren. Die Emissionen von Ammoniak werden bestimmt durch die Freisetzung von Ammoniak aus Fäkalien und Düngemitteln. Die Emissionsraten sind temperatur- und windabhängig. Im Emissionskataster werden Mittelwerte von Emissionsfaktoren genutzt um eine Jahressumme abzubilden. Diese Jahressummen entsprechen mittleren Bedingungen. Die tatsächlichen Emissionen in einem Jahr können, entsprechend den meteorologischen Bedingungen, signifikant abweichen. Deshalb kann eine von der Meteorologie abhängige Korrektur der mittleren Emissionen zu einer weiteren Verbesserung des Modellsystems beitragen. In der Literatur gibt es bereits erste Ansätze, aber in der heutigen Praxis wird diese Korrektur noch nicht angewendet.

Die Ausbreitungsmodellierung verwendet für jedes Jahr konstante Emissionsprofile. Diese Emissionsprofile bilden zwar die Variabilität innerhalb eines Jahres ab, jedoch wird hiermit nicht die Variabilität der Emissionen in unterschiedlichen Jahrgängen verschiedener Jahre erfasst. Zudem ist der zeitliche Verlauf der Emissionen durchaus auch räumlich variabel, was derzeit modellseitig nicht berücksichtigt ist. So kann sich der zeitliche Verlauf der Emissionen in Gebieten intensiver Schweinehaltung von dem in Gebieten mit intensiver Milchviehwirtschaft unterscheiden, wodurch die relative Verteilung der NH₃-Emissionen aus Stall, Lager und Düngung/Anwendung variieren. Bei Milchkühen stammt mehr als die Hälfte der Ammoniak Emissionen aus der Anwendung von Gülle. Für Mastschweine sind Emissionen aus dem Stallbereich dominant. In der Literatur werden temperaturabhängige Emissionsfunktionen für die geschlossene und offene Tierhaltung beschrieben. Daneben gibt es Ansätze zur Bestimmung des Zeitpunkts der Düngung anhand von Temperatursummen (z.B. Skjoth et al., 2011). In wie weit diese Detaillierung der Emissionsvariabilität über das Jahr systematische Effekte auf die modellierten Depositionsverteilungen hat, ist nicht bekannt. Das Potenzial für eine Verbesserung in der

Übereinstimmung zwischen Modell und Messung für Ammoniak ist allerdings hoch (Hendriks et al., 2015; Skjoth et al., 2011).

Um eine weitere räumliche Detaillierung der Ammoniakkonzentrationsverteilung und der Depositionskartierung zu erreichen, wäre es nötig die Auflösung der Modellierung zu erhöhen. Dies ist nur möglich, wenn auch die Eingangsdaten höher aufgelöst vorliegen. Das Potential für eine Verbesserung der Auflösung der Deposition ist somit stark abhängig von der Qualität der Emissionskarten.

Für die Validierung der Modellergebnisse ist die Verfügbarkeit von in-situ Daten in vielen Regionen von Deutschland (und Europa) sehr begrenzt. In-Situ Messungen mit höherer zeitlicher Auflösung sind sehr aufwendig und teuer. Auch einfachere Verfahren wie Passivsammler können nicht flächendeckend durchgeführt werden. Um räumliche Informationen über NH₃ zu erheben, werden u.a. flugzeuggetragene Systeme eingesetzt. Diese sind jedoch auch sehr kostenintensiv und zeitlich sowie flächig nur begrenzt einsetzbar. Aus genannten Gründen wurde in den letzten Jahren zunehmend an satellitenbasierten Verfahren und Auswertemethoden geforscht. Ziel ist eine zeitlich hochaufgelöste und globale Erfassung und Quantifizierung von NH₃ in der Atmosphäre. Seit einigen Jahren finden sich in Literatur vermehrt Studien, die anhand von satellitenbasierten Messdaten versuchen eine bessere Quantifizierung von NH₃ zu erreichen. Clarisse et al. (2009) zeigen in ihrer Studie erstmalig eine satellitenbasierte Karte zur globalen NH₃ Verteilung für das Jahr 2008. Derzeit gibt es mehrere SFE-Produkte für Ammoniak von z.B. CrIS (Cross-track Infrared Sounder, Shephard and Cady-Pereira, 2015), IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, Clarisse et al., 2009; Van Damme et al., 2014a). Diese Produkte haben alle das Potenzial Ammoniak global zu monitoren. Daher wird zur Validierung der NH₃ Konzentrationsverteilung in Deutschland die Anwendung von Satellitenfernerkundungsdaten und bodengebundenen Messungen empfohlen.

Wie lässt sich der systematische Minderbefund der modellierten Konzentrationen und Depositionen von oxidiertem Stickstoff erklären und lösen?

Den Grund dafür, dass das Modell für oxidierten Stickstoff sowohl gemessene Luftkonzentrationen als auch gemessene nasse Depositionen systematisch unterschätzt führen wir darauf zurück, dass bereits die Emissionen unterschätzt werden. Trendstudien haben gezeigt, dass die Unterschätzung der Konzentrationen von Stickstoffoxiden und Nitrat in Zentraleuropa mit der Zeit zunimmt. Die größten Änderungen der Emissionen sind im Transportsektor zu verzeichnen. Da die Emissionsfaktoren für neue Autos stetig angepasst werden und die Faktoren teilweise weit auseinander liegen, kann es sein, dass hier ein Grund für die Unterschiede zu finden ist. Ebenso sind die Emissionen von NO_x aus Böden unsicher und neue Studien zeigen das die Bodenemissionen höher sein können als bisher angenommen (Hudman et al., 2012).

Eine windrichtungsabhängige Validierung der Modellierung für Standorte an der Grenze mit Nachbarländern wird empfohlen, um zu quantifizieren, ob der Ferntransport richtig abgebildet wird. Daneben werden ab Mitte 2018 hochaufgelösten Satellitendaten für NO₂ von TROPOMI zur Verfügung stehen. Diese Daten bieten das Potential neue Erkenntnisse des NO_y-Budgets über Deutschland ab zu leiten.

Wie lässt sich die Modellierung der trockenen Deposition validieren?

Die Parametrik der trockenen Deposition ist kompliziert und basiert sich auf einer beschränkten Anzahl von (niederländischen) Prozessstudien. Neue experimentelle Studien zur Quantifizierung der trockenen Deposition in moderat belasteten Ökosystemen würde die Möglichkeit bieten, die Parametrik detailliert zu evaluieren.

Wie lässt sich die Unterschätzung der Stickstoffdeposition in Höhenlagen beheben?

Die orographisch bedingten Effekte sind in PINETI-2 und -3 nicht ausreichend ausgeprägt, dies ist vor allem in Baden-Württemberg der Fall. Als Lösungsstrategie wird die Nutzung nicht-hydrostatischer meteorologischer Treiber in Kombination mit der Implementierung von orographischen Effekten in die Parametrisierungen von trockener, feuchter und nasser Deposition vorgeschlagen. Hoch auflösende nicht-hydrostatische meteorologische Modelle eignen sich zur Beschreibung mesoskaliger meteorologischer Phänomene/Strukturen besser als hydrostatische Modelle. In vorausgegangenen Modellstudien haben sich die Vorteile der Verwendung dieser Modelle in Regionen komplexer Orographie bereits gezeigt. Die nicht-hydrostatische Meteorologie sollte mit der Beschreibung der feuchten Deposition, welche in Höhenlagen entscheidende Beiträge zur Gesamtdosition bedingen kann, verknüpft werden. Die Parametrisierungen von trockener und nasser Deposition sollten des Weiteren von Neigungs- und Ausrichtungsklassen der Hangflächen und deren Anteil in den einzelnen Gitterzellen abhängig gemacht werden.

5.2 Vergleich mit der Kronenraumbilanz

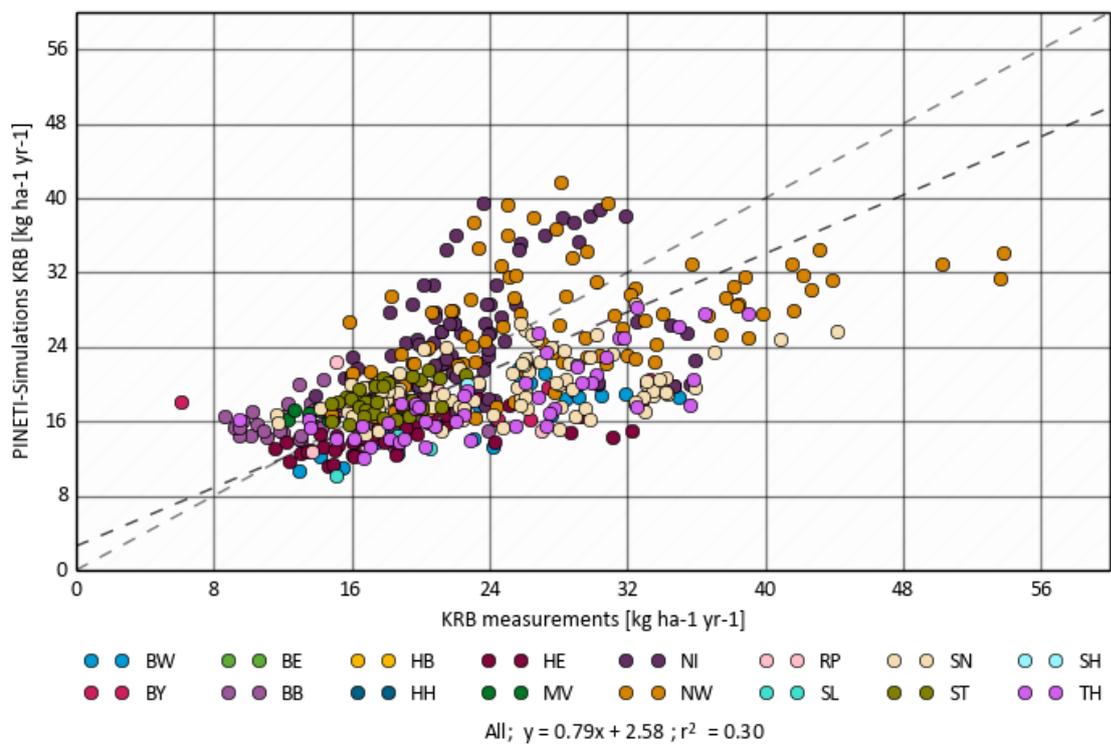
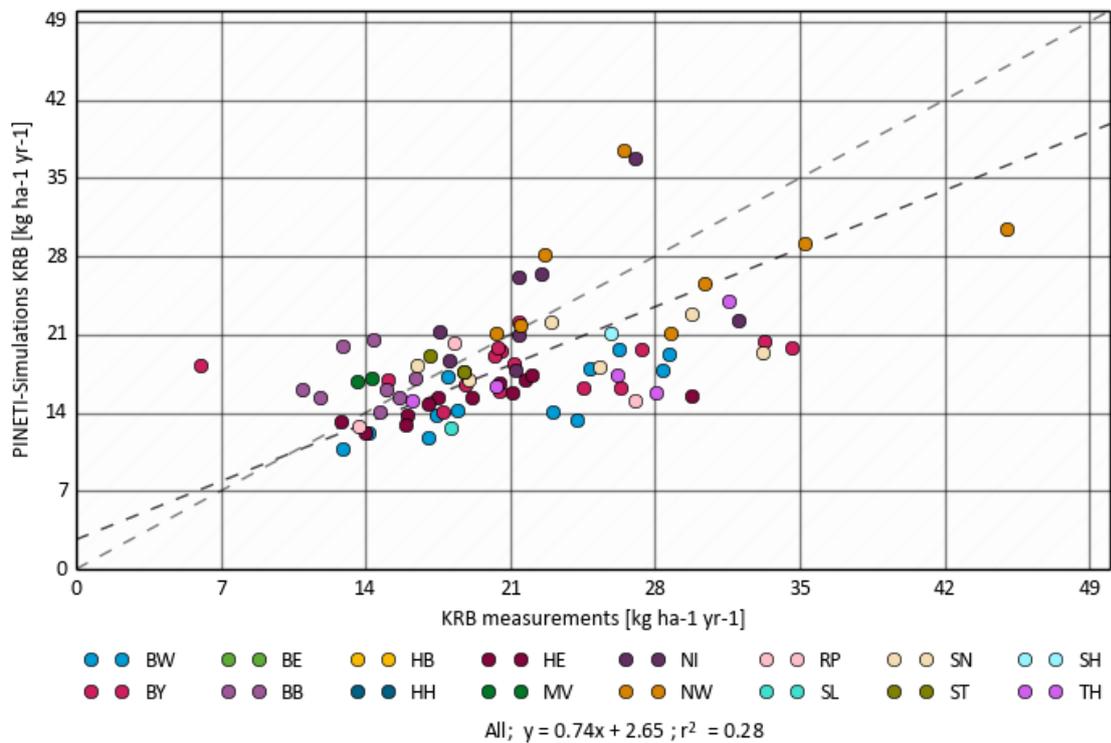
Eine andere Ressource für messungsbasierte Daten, die sich für einen Vergleich mit den PINETI-3-Ergebnissen anbieten, bilden die Kronenraumbilanz-Rechnungen (KRB). Auf der Grundlage der für Stickstoff durchgeführten Kronentraufmessungen stehen mehrere Rechenverfahren zur Verfügung, mit denen eine Schätzung der Gesamtdosition vorgenommen werden kann. Diese Beobachtungen und Berechnungen fanden in Waldgebieten statt; außerdem erfolgte in der Nähe eine Freilandmessung, um die Zusatzdosition im Wald einschätzen zu können. Für den hier dargestellten Vergleich wurden KRB-Daten des Thünen-Instituts verwendet, die 700 Datenpunkte für die jährliche Durchschnittsdosition an 94 Standorten in den Jahren 2000 bis 2015 umfassen. Für jeden Datenpunkt sind die Ergebnisse aus drei KRB-Rechenmethoden verfügbar. In Abbildung 43 sind die KRB-Ergebnisse auf Basis des Rechenverfahrens von de Vries et al. (2001) und die PINETI-3-Ergebnisse im Vergleich dargestellt. Aus den Diagrammen geht hervor, dass die PINETI-3-Daten im Großen und Ganzen die KRB-Daten leicht unterschätzen. An einigen Stationen in Niedersachsen liegen die PINETI-3-Ergebnisse unter den KRB-Werten, während die Messwerte bei anderen Stationen in diesem Bundesland über oder sehr nahe bei dem KRB-Ergebnis liegen. Bei den meisten Bundesländern liegt das PINETI-3-Ergebnis entweder sehr nahe am KRB-Ergebnis oder aber bis zu 40 Prozent darunter. Vor allem für oxidierten Stickstoff ist ein systematischer Unterschied erkennbar. Für reduzierten Stickstoff gibt es keinen systematischen Unterschied, aber eine breitere Streuung um die eins zu eins Linie. Diese Beobachtungen sind konsistent mit den Vergleichen der Modellierung von Ammoniak, Stickstoffdioxid und der nassen Deposition aus LOTOS-EUROS.

Dazu kommt das bei einigen dieser Standorte sich Differenzen zwischen den Werten von PINETI-3 und KRB aus der Lage des Standorts für die Depositionsmessung erklären lassen. Erfolgt die Messung zum Beispiel sehr nahe am Waldrand, so machen sich Randeffekte bemerkbar, die mit PINETI-3 nicht in Bezug auf die Ist-Auflösung bewältigt werden können. Durch diese Randeffekte fallen die Messwerte für die Deposition höher aus als im übrigen Wald und sind diese Standorte somit nicht repräsentativ für das Gesamtgebiet. In gleicher Weise gilt für Hügelland, dass die örtliche Orographie und die herrschenden Bedingungen an einem exponierten Hang zu kleinteilig sein können, als dass sie sich mit der PINETI-Auflösung erfassen ließen. Aufgrund dieser Effekte sollten Vergleiche zwischen einzelnen Stationen mit der gebotenen Vorsicht erfolgen.

Eine detailliertere Analyse mit den Daten aus ganz Deutschland (Schaap et al., 2017) hat ergeben, dass der Vergleich für relativ flache Regionen deutlich besser ausfällt als für höher gelegene Stationen, zum Beispiel in Gebirgsregionen wie dem Schwarzwald. Die Werte der KRB Daten zeigen mit steigender Höhe des KRB Standortes eine steigende Tendenz der geschätzten N-Gesamtdosition. Die PINETI Modellierung hingegen, zeigt eine geringe Variabilität über die verschiedenen Höhenbereiche. Eine

Analyse am Standort Schauinsland hat ergeben, dass unter Verwendung der gemessenen Schadstoffkonzentrationen in der Luft, die anhand der KRB Methode bestimmten Flüsse nur durch den Einsatz außergewöhnlich hoher Depositionsgeschwindigkeiten reproduziert werden konnten. Außerdem werden die Ergebnisse des Vergleichs der PINETI Daten mit den KRB Daten nicht durch die zuvor gezeigte Validierung gestützt. Folglich ist es möglich, dass die PINETI-2 und PINETI-3 Ergebnisse den (lokalen) Einfluss der feuchten Deposition unterschätzen. Während Feuchtemessungen aus dem Jahr 2009 im Schwarzwald auf eine große Anzahl von Stunden mit Sättigung (ohne Niederschlagsereignis) hinweisen, wies die innerhalb des PINETI Projektes ermittelte feuchte Deposition über Nadelwald für den Schwarzwald niedrige Werte auf. Dies bedeutet, dass der Ansatz der feuchten Deposition und andere orographisch bedingte Effekte innerhalb der Berechnung der Deposition verfeinert bzw. berücksichtigt werden könnten.

Abbildung 43: Vergleich der KRB-Ergebnisse (Methode de Vries, 2001) mit den PINETI-3-Ergebnissen. Oben: Durchschnittswert über den Zeitraum 2000 bis 2015 für die einzelnen Stationen; Unten: Ein Datenpunkt pro Station und Jahr



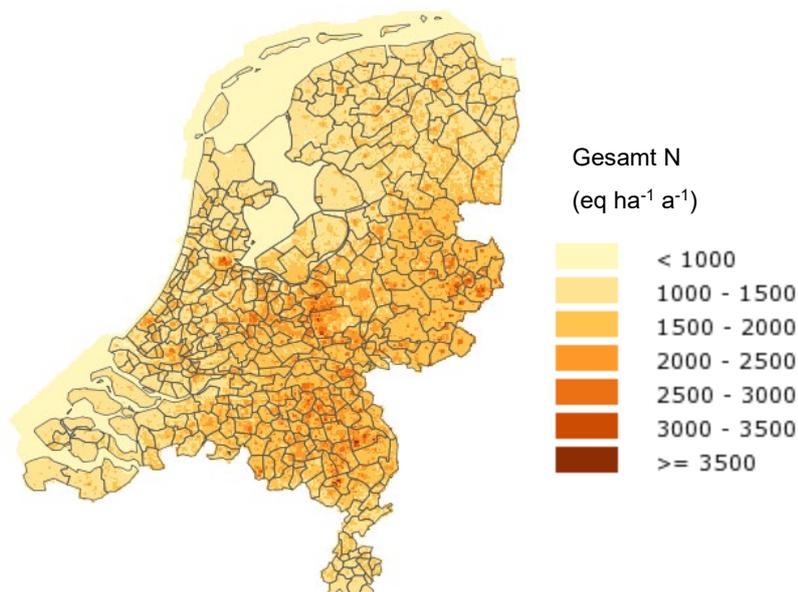
Quelle: eigene Darstellung, TNO

5.3 Vergleich mit Dänemark und den Niederlanden

In Abbildung 44 ist die von dem RIVM berechnete Stickstoff-Gesamtdeposition über den Niederlanden für das Jahr 2015 dargestellt (<http://geodata.rivm.nl/gcn/>). Die Deposition in den Niederlanden beträgt mit Ausnahme besonders abgelegener Regionen überall mehr als 1000 eq ha⁻¹ a⁻¹. Im Bereich der Hotspots übersteigt die Stickstoff-Gesamtdeposition 3000 eq ha⁻¹ a⁻¹. Entlang der deutsch-niederländischen Grenze liegt die berechnete N-Deposition zwischen 1200 und 2500 eq ha⁻¹ a⁻¹, wobei die örtlichen Unterschiede sehr hoch ausfallen. Diese Zahlen bewegen sich im gleichen Bereich wie die in diesem Bericht erwähnten Werte: Die PINETI-3-Werte für die Grenzregion liegen je nach Ort bei 1500 bis 2200 eq ha⁻¹ a⁻¹. In beiden Studien fallen die höchsten Werte in denselben Grenzregionen an.

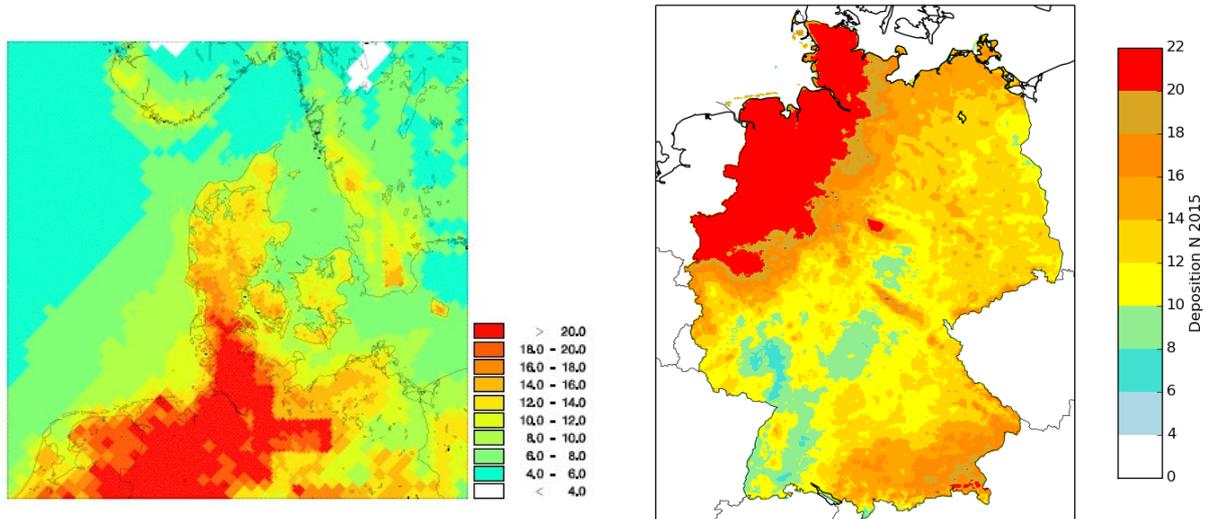
In Abbildung 45 wird die von der Aarhus University berechnete Schätzung der Stickstoff-Gesamtdeposition wiedergegeben (Ellerman et al., 2016); zu Vergleichszwecken wurden für die Angabe der Stickstoff-Gesamtdeposition über Deutschland aus diesem Bericht dieselben Einheiten und derselbe Maßstab verwendet. Ein Vergleich der beiden Zahlen zeigt, dass die Depositionsschätzungen für Dänemark und den vorliegenden Bericht ähnlich sind; die Werte in der Grenzregion liegen bei mehr als 20 kg N/ha/a und fallen für die Nordostgrenze Deutschlands etwas niedriger aus. Für Dänemark insgesamt wird der Anteil der trockenen Deposition an der Gesamtdeposition auf 45 Prozent geschätzt; die nasse Deposition hat einen Anteil von 55 Prozent. Dies stützt die in dieser Studie für Deutschland gemachten Schätzwerte, die bei 46 Prozent für die trockene Deposition sowie 54 Prozent für die nasse und feuchte Deposition liegen.

Abbildung 44: Stickstoffgesamtdeposition über den Niederlanden gemäß der niederländischen GDN-Berechnung



Quelle: (<http://geodata.rivm.nl/gcn/>)

Abbildung 45: Geschätzte Stickstoff-Gesamtdeposition (in kg N/ha) über Dänemark für das Jahr 2015 auf der Grundlage von Berechnungen mit dem DEHM-Modell sowie von Messungen (links, Ellermann et al., 2016). Rechts: Stickstoff-Gesamtdeposition nach PINETI-3 für das Jahr 2015.



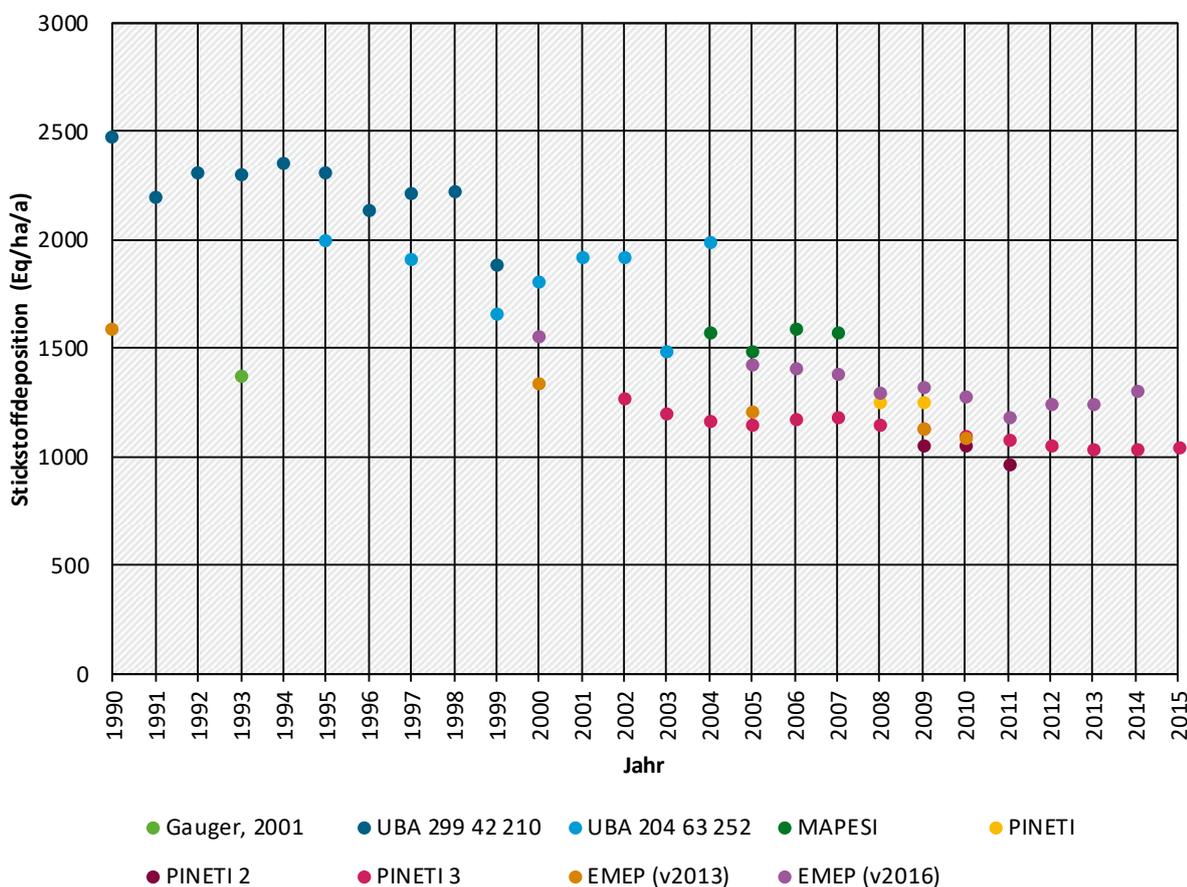
Quelle: eigene Darstellung, TNO

5.4 Vergleich mit der Literatur und vorangegangenen Studien

Schon vor dem PINETI-3-Projekt hat es eine Vielzahl anderer Forschungsvorhaben zur Bestimmung der Stickstoffdeposition über Deutschland gegeben. In Abbildung 46 wird die berechnete mittlere Stickstoff-Gesamtdeposition der betreffenden Jahre aus diesen Projekten dargestellt. Auch die im EMEP-Programm berechnete Stickstoff-Gesamtdeposition für Deutschland ist für eine Anzahl von Jahren angegeben. Aus dieser Grafik geht hervor, dass die PINETI-3-Ergebnisse über denen von PINETI-2 liegen (dies wird in Kapitel 4 erklärt), jedoch niedriger sind als die PINETI- und MAPESI-Ergebnisse (die Unterschiede zwischen diesen Projekten und PINETI-2 werden in dem PINETI-2-Projektbericht erläutert). Die PINETI-3-Zeitreihe fügt sich sehr gut in die EMEP-Berechnungen aus dem Jahr 2013, unterschreitet jedoch die EMEP-Berechnung von 2016 (Fagerli et al., 2017, http://emep.int/publ/reports/2017/EMEP_Status_Report_1_2017.pdf). Die EMEP-Depositionsberechnung für 2015 wird in

Abbildung 47 dargestellt (zum Vergleich wird das PINETI-3-Ergebnis im gleichen Maßstab dargestellt). Allgemein entsprechen die bei EMEP (rv4.15) ermittelten geografischen Muster für die NO_y - und NH_x -Deposition recht gut den bei dieser Studie festgestellten Werten, was besonders beachtenswert ist, wenn man die viel höhere Auflösung berücksichtigt, die für diese Forschungsarbeit verfügbar war. In Bezug auf NO_y wird in der EMEP-Berechnung eine Deposition von 500 bis 700 $\text{mg N/m}^2/\text{a}$ für den östlichen Teil des Landes festgestellt, während dieser Wert im Westen bei 500 bis 1000 $\text{mg N/m}^2/\text{a}$ liegt. In einem kleinen Teil des Ruhrgebiets liegt die berechnete NO_y -Deposition bei mehr als 1000 $\text{mg N/m}^2/\text{a}$. Die PINETI-3-Ergebnisse fallen ungefähr 30 Prozent niedriger aus. In Bezug auf NH_x liegen die Werte des EMEP-Modells bei über 1000 $\text{mg N/m}^2/\text{a}$ für die Nord- und Südhälfte des Landes, was der mit PINETI-3 berechneten Deposition recht genau entspricht. In dem von Südwest nach Nordost verlaufenden Gebietsstreifen gelangen sowohl die EMEP- als auch die PINETI-3-Berechnungen zu niedrigeren Werten.

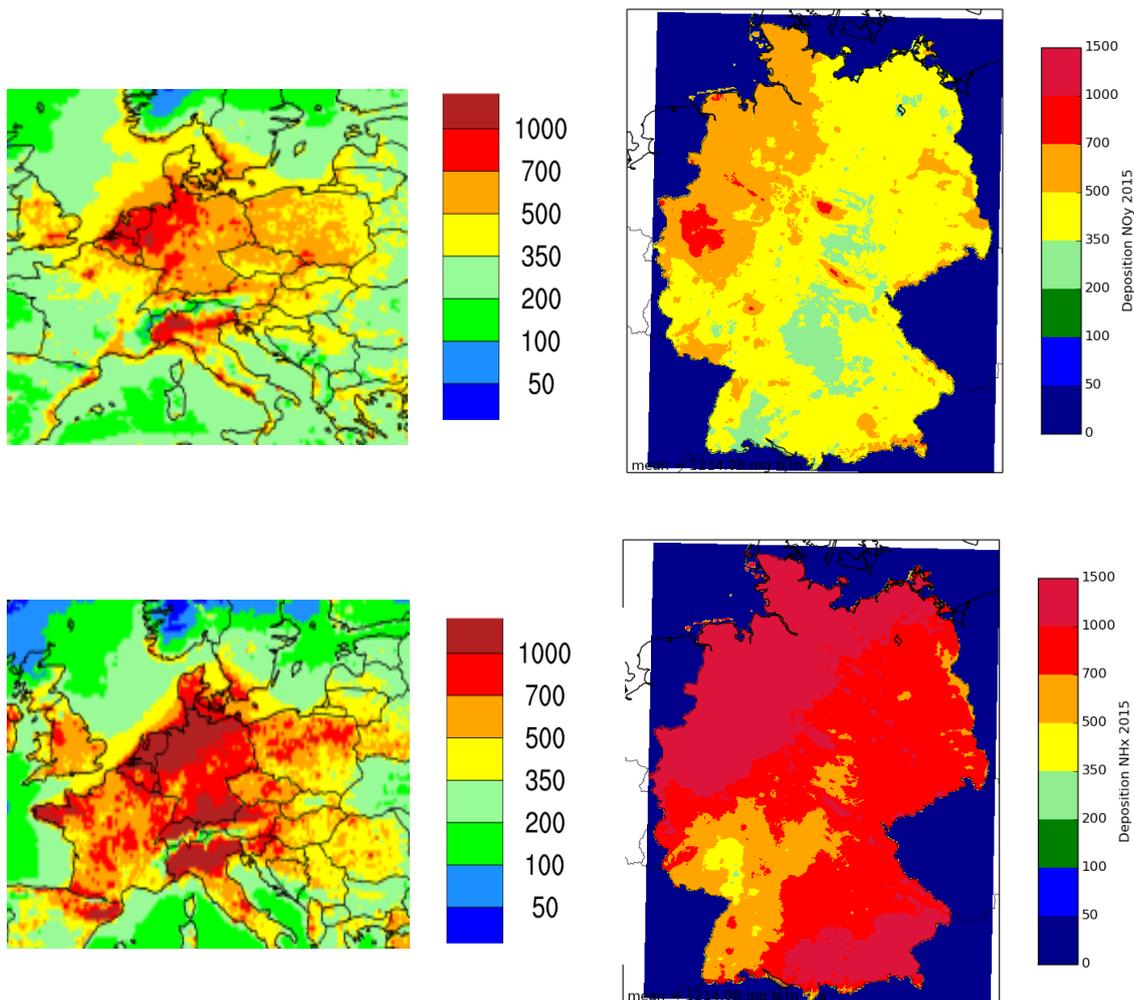
Abbildung 46: Schätzung der Stickstoff-Gesamtdeposition über Deutschland in früheren Forschungsarbeiten sowie in dieser Studie.



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Ein Vergleich der beiden vorangegangenen Projekte (MAPESI und PINETI-2) mit PINETI-3-Werten sowie Messdaten der Stationen Forellenbach, Neuglobsow und Bourtanger Moor (Tabelle 14) zeigt, dass der derzeitige Schätzwert für die Stickstoff-Gesamtdeposition nahe bei der PINETI-2-Schätzung liegt. In Bezug auf die Messwerte für die beiden in Nadelwäldern gelegenen Stationen fallen die Schätzungen zu hoch aus, während die PINETI-Schätzungen der Stickstoff-Gesamtdeposition für die Station Bourtanger Moor mit halbnatürlicher Vegetation innerhalb der Bandbreite der gemessenen Werte liegen.

Abbildung 47: Links: EMEP-Deposition von NO_y (oben) und NH_x (unten) in $\text{mg N/m}^2/\text{a}$ (Fagerli et al., 2017). Rechts: PINETI-3-Deposition in derselben Einheit und Farbskala.



Quelle: eigene Darstellung, TNO

Tabelle 14: Vergleich der Depositionsschätzungen von MAPESI, PINETI-2 und PINETI-3 N mit Messwerten

Kg N/ ha / yr	N gesamt gemessen 2009	N gesamt MAPESI 2007	N gesamt PINETI-2 2009	N gesamt PINETI-3 2009
Forellenbach (Nadelwald)	13-15	37	19	20
Neuglobsow (Nadelwald)	9.5	18	12	14
Bourtanger Moor (semi-natural)	25 (16-35)	38	20	20

6 Bewertung der Einträge von versauernden und eutrophierenden Luftschadstoffen in terrestrische Ökosysteme

6.1 Das Critical Load Konzept

Mit Inkrafttreten der Genfer Luftreinhaltekonvention im Jahr 1983 (Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, CLRTAP)⁴ und umgesetzt in den 8 zugehörigen Protokollen⁵ wurde ein enger Bezug zwischen den Luftschadstoffen und ihren Wirkungen auf Mensch und Umwelt formuliert. So sollen sich die Maßnahmen zur Luftreinhaltung neben der Ausschöpfung aller technischer Möglichkeiten (best available technology) vor allem auch an der Vermeidung negativer Wirkungen (effect-based activities) orientieren. Für Umwelteffekte wurde postuliert, dass die Einträge von Luftschadstoffen kritische ökologische Belastungsgrenzen, die Critical Load, nicht übersteigen sollten. Die Einhaltung oder Unterschreitung solcher Critical Loads gibt nach heutigem Wissen Gewähr dafür, dass ein ausgewähltes Schutzgut, der ökologische Rezeptor, weder akut noch langfristig geschädigt wird. Die Definition von Critical Load lautet:

“A quantitative estimate of an exposure to one or more pollutants below which significant harmful effects on specified sensitive elements of the environment do not occur according to present knowledge” (Nilsson and Grennfelt 1988).

Im Rahmen der Protokolle zur CLRTAP wurden bisher Critical Load für versauernde Luftschadstoffe (Schwefel- und Stickstoffverbindungen), für eutrophierenden Stickstoff (Stickoxide und Ammoniak) und für eine Reihe von Schwermetallen ermittelt (de Vries et al. 2015, CCE 2017).

Die Europäische Gemeinschaft (EU) hat Ende 2013 ebenfalls ein neues Maßnahmenpaket für saubere Luft in Europa vorgelegt, mit dem die bestehenden Rechtsvorschriften aktualisiert werden. Auch hier ist es ein Ziel, den Ausstoß von Luftschadstoffen so weit zu verringern, dass Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit und die Umwelt reduziert oder gänzlich vermieden werden.

Verabschiedet wurde ebenfalls eine überarbeitete Richtlinie zu nationalen Emissionshöchstmengen bzw. zu nationalen Emissionsreduktionsverpflichtungen. Diese neue Richtlinie (EU) 2016/2284⁶ des Europäischen Parlaments und des Rates vom 14. Dezember 2016, nun oft als NERC-Richtlinie bezeichnet (NERC = National Emission Reduction Commitments) beinhaltet Zielstellungen für die sechs wichtigsten Luftschadstoffe, darunter auch jene mit Bezug zu den Critical Load.

Mit den genannten Regelwerken sollen neben anderen Umweltbelastungen insbesondere die schädigende Wirkung von Eutrophierung und Versauerung der Ökosysteme in Europa minimiert werden. Daher werden die den einzelnen Ländern zugebilligten Emissionshöchstmengen bzw. die jeweiligen prozentualen Minderungsverpflichtungen sich daran zu orientieren haben, ob die kritischen Schadstoffeintragsraten in Ökosysteme (Critical Load) eingehalten oder überschritten werden.

Neben den wichtigen internationalen Verpflichtungen, die sich aus der Ratifizierung der CLRTAP und aller 8 Protokolle durch Deutschland ergeben, gewinnt das Critical Load-Konzept auch im nationalen Rahmen ständig an Bedeutung. So formuliert die Deutsche Nachhaltigkeitsstrategie 2016 als Zielstellung bis zum Jahr 2030: "Die ökologischen Belastungsgrenzen sind ein Maß für die Empfindlichkeit eines Ökosystems gegenüber dem Eintrag eines Schadstoffs. Liegen die Einträge von Luftschadstoffen über den Critical Loads, kann es langfristig zur Schädigung der Struktur und Funktion von Ökosyste-

⁴ <http://www.unece.org/env/lrtap/welcome.html>

⁵ http://www.unece.org/env/lrtap/status/lrtap_s.html

⁶ <http://eur-lex.europa.eu/legal-content/DE/TXT/PDF/?uri=CELEX:32016L2284&from=EN>

men kommen. Fast die Hälfte der Farn- und Blütenpflanzen, die in Deutschland in der Roten Liste aufgeführt sind, sind durch Nährstoffeinträge gefährdet. Bis zum Jahr 2030 soll der Flächenanteil mit erhöhtem Stickstoffeintrag um 35 Prozent gegenüber 2005 reduziert werden. Dies entspricht einer Senkung auf 37 Prozent der Fläche aller Ökosysteme" (Bundesregierung 2016). Dieser Indikator steht damit auch als nächster zu erreichender Zielwert bei der Analyse von zeitlichen Trends der Critical Load-Überschreitung durch Stickstoffeinträge im Zeitraum der Jahre 2000 bis 2015 (vgl. Kapitel 3).

Als dringendes Erfordernis bezeichnet es der Sachverständigenrat für Umweltfragen (SRU) in seinem Sondergutachten, eine nationale Stickstoffstrategie zu erarbeiten (SRU 2015, S.24). Da in der nationalen Strategie zum Schutz der Biodiversität vorgesehen war, bereits bis zum Jahr 2020 die empfindlichen Ökosysteme nachhaltig vor Eutrophierung zu schützen (BMU 2007, BMUB 2015), kommt der SRU zu dem Schluss, "dass diese Ziele ohne einen schnellen und dauerhaften Politikwechsel verfehlt werden" (SRU 2015, S.25).

Die Verwendung von Critical Load und die Kontrolle deren Einhaltung sind in Deutschland vielfältig auch Bestandteil der umweltbezogenen Genehmigungsplanung geworden (u.a. Umweltverträglichkeitsprüfung, FFH-Gutachten, Anlagengenehmigung nach TA-Luft). So wurden beispielsweise speziell für die "Untersuchung und Bewertung von straßenverkehrsbedingten Nährstoffeinträgen in empfindliche Biotop" Critical Loads für eine umfassende Liste von in Deutschland vorkommenden repräsentativen FFH-Lebensraumtypen und Anhang-II-Pflanzenarten ermittelt (BMVBS 2013).

Zahlreiche Einzelgutachten zur Umweltverträglichkeit von Anlagenplanungen verwenden Critical Load als Bemessungsgrundlage für die Bewertung der betriebsbedingten Zusatzbelastungen. In verschiedenen Urteilen der Bundes- und Landesverwaltungsgerichte fand diese Herangehensweise richterliche Bestätigung, so unter anderem bei folgenden Verfahren:

- ▶ Beurteilung der FFH-Verträglichkeit von betriebsbedingten Stickstoffdepositionen bei der Bundesautobahn A 44 Kassel – Herleshausen VKE 40.1, Bestätigung durch das Bundesverwaltungsgericht (Aktenzeichen: 9 A 22/11).
- ▶ Beurteilung der FFH-Verträglichkeit von betriebsbedingten Stickstoffdepositionen bei der Bundesautobahn A 49 VKE 40, Bestätigung durch das Bundesverwaltungsgericht (Aktenzeichen: 9 A 25/12).
- ▶ FFH-Verträglichkeitsuntersuchung versauernder und eutrophierender Schadstoffeinträge bei der Ortsumfahrung Celle, Bestätigung durch OVG Münster (Aktenzeichen: 7 KS 27/15).

Critical Load als ökologische Belastungsgrenzen sind damit fester Bestandteil der vorsorgenden Umweltpolitik in Deutschland geworden.

6.1.1 Critical Load zum Schutz vor Versauerung

Die Grundlagen für die Modellierung von Critical Loads (CL) sind vom International Co-operative Programme on Modelling and Mapping of Critical Loads and Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends (ICP Modelling & Mapping) in einem Mapping Manual publiziert (UBA 2004 und CLRTAP 2016). Der allgemeinen Definition der Critical Load folgend wird der zulässige maximale Eintrag von Säurebildnern als Einstellung des Gleichgewichts zu den ökosystemspezifischen Prozessen verstanden, die Säure binden, puffern oder unschädlich austragen. Zu den maßgeblichen Prozessen, die den Säureeinträgen gegenüber stehen, gehören die Verwitterung und die Deposition basischer Kationen, die wiederum jedoch vermindert werden durch den Stoffentzug mit der Biomasse sowie durch die Auswaschung von Säureneutralitätskapazität mit dem Sickerwasser. Mit nachfolgender Gleichung werden die wichtigsten Säurequellen und -senken berücksichtigt (CLRTAP 2016):

$$CL(S + N) = CL(S) + CL(N) = BC_{dep}^* - Cl_{dep}^* + BC_w - Bc_u + N_i + N_u + N_{de} - ANC_{le(crit)}$$

wobei:

CL = Critical Load (Belastungsgrenzwert) [eq ha⁻¹ a⁻¹]

S = Schwefelverbindungen

N = Stickstoffverbindungen

BC_{dep}^{*} = seesalzkorrigierte Rate der Deposition basischer Kationen Ca²⁺+Mg²⁺+K⁺+Na⁺ [eq ha⁻¹ a⁻¹]

Cl_{dep}^{*} = seesalzkorrigierte Rate der Deposition von Cloridionen [eq ha⁻¹ a⁻¹]

BC_w = Freisetzungsrates basischer Kationen durch die Verwitterung, Ca²⁺+Mg²⁺+K⁺+Na⁺ [eq ha⁻¹ a⁻¹]

B_{cu} = Nettoaufnahmebasischer Kationen durch die Vegetation, Ca²⁺+Mg²⁺+K⁺ [eq ha⁻¹ a⁻¹]

N_i = Stickstoff-Immobilisierungsrate [eq ha⁻¹ a⁻¹]

N_u = Nettoaufnahmebasischer Stickstoff durch die Vegetation [eq ha⁻¹ a⁻¹]

N_{de} = Denitrifikationsrate von Stickstoff [eq ha⁻¹ a⁻¹]

ANC_{le(crit)} = Kritische Austragsrate der Säureneutralisationskapazität mit dem Sickerwasser [eq ha⁻¹ a⁻¹]

Da einige Senkenprozesse aus der Massenbilanz nur für den Stickstoff gelten (N-Pflanzenaufnahme und N-Immobilisierung), muss die maximal zulässige Deposition von Schwefelverbindungen ohne diese formuliert werden (CL_{maxS}). Die Gleichung lautet dann (CLRTAP 2016):

$$CL_{maxS} = BC_{dep}^* - Cl_{dep}^* + BC_w - B_{cu} - ANC_{le(crit)}$$

Unter Berücksichtigung der für den Stickstoff zusätzlich zur Verfügung stehenden Senkenprozesse kann als Belastungsgrenze für Versauerung auch der maximal zulässige Stickstoffeintrag ermittelt werden. Dabei ist aber zu beachten, dass ein Mindestanspruch an Stickstoff Ökosystemen besteht (CL_{minN}), der als Nährstoff zur Verfügung stehen muss und nicht unterschritten werden darf. Daraus ergibt sich dann die Gleichung (CLRTAP 2016):

$$CL_{maxN} = CL_{minN} + \frac{CL_{maxS}}{1-f_{de}}$$

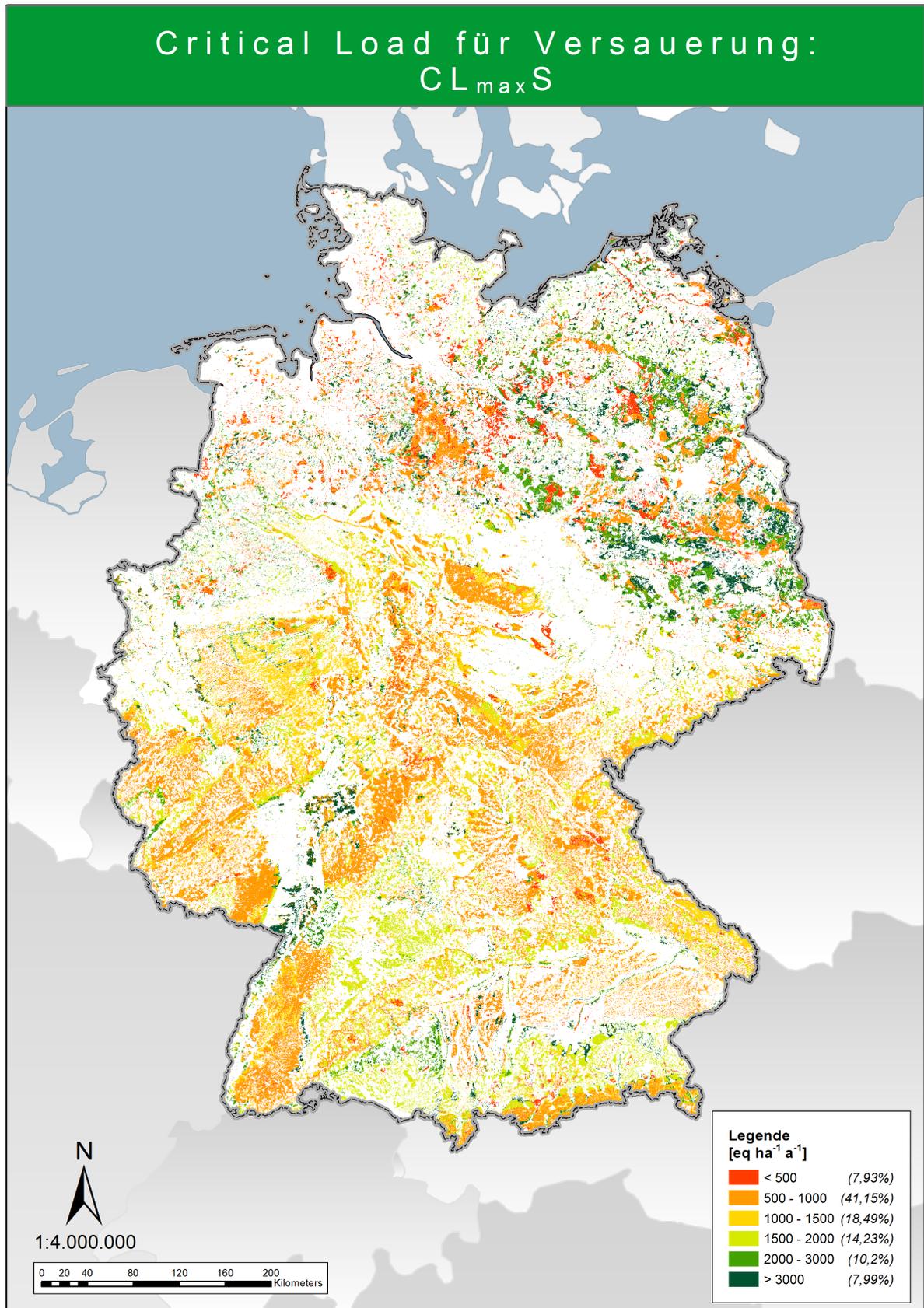
mit:

CL_{minN} = N_i + N_u

f_{de} = Denitrifikations-Faktor

Die Ergebnisse der Critical Load-Berechnung sind in Abbildung 48 und Abbildung 49 wiedergegeben, die die regionale Verteilung der Critical Load für Versauerung bezogen auf Schwefel (CL_{maxS}) und Stickstoff (CL_{maxN}) zeigen. Die Daten wurden aus dem UBA-Projekt "Bereitstellung der Critical Load Daten für den Call for Data 2015-2017..." (Schlutow et al. 2017) übernommen, alle methodischen Ansätze zur Bestimmung der Critical Load sowie eine ausführliche Ergebnisdiskussion sind dort publiziert.

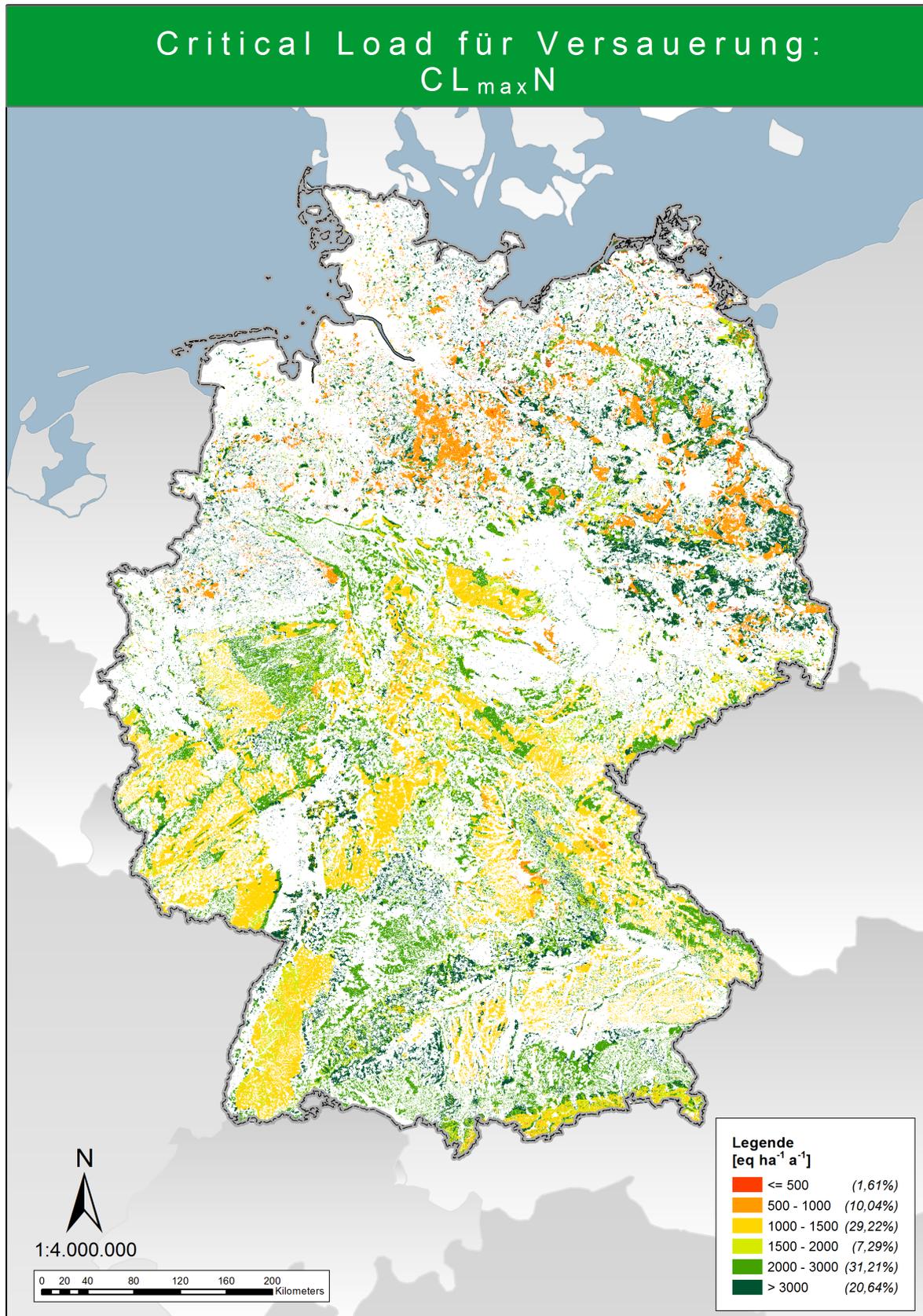
Abbildung 48: Critical Load für Versauerung in Schwefeleinheiten, CL_{maxS}



Mai 2017

Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 49: Critical Load für Versauerung in Stickstoffeinheiten, CL_{maxN}



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

6.1.2 Critical Load zum Schutz vor Eutrophierung

Zur Bestimmung des Critical Loads für den eutrophierenden Stickstoffeintrag wird ebenso wie bei denen für die Säurebelastung ein Gleichgewichtsansatz verfolgt. Danach kann der zulässige Stickstoffeintrag ins Ökosystem, als $CL_{nut}(N)$ oder $CL_{eut}(N)$ bezeichnet, als die Einstellung des Gleichgewichts zwischen Stoffein- und -austrägen beschrieben werden. Zeitweilige Abweichungen vom Gleichgewichtszustand sind nur tolerierbar, solange das System aus sich selbst heraus regenerationsfähig bleibt (quasi-stationärer Zustand). Dieser Gleichgewichtszustand kann mit einer Massenbilanz beschrieben werden, daher wird dieser Ansatz als einfache Massenbilanzmethode (Simple Mass Balance, SMB) bezeichnet. Eine modellhafte Beschreibung des Stickstoffhaushalts von Ökosystemen unter diesen Bedingungen stellt die folgende Gleichung dar (CLRTAP 2016):

$$CL_{nut}(N) = N_u + N_i + N_{le(acc)} + N_{de}$$

wobei:

$CL_{nut}(N)$ = Critical Load für eutrophierenden Stickstoffeintrag [$\text{kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$]

N_u = Netto-Stickstoff-Aufnahmerate durch die Vegetation [$\text{kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$]

N_i = Netto-Stickstoff-Immobilisierungsrate [$\text{kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$]

$N_{le(acc)}$ = tolerierbare Austragsrate von Stickstoff mit dem Sickerwasser [$\text{kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$]

N_{de} = Denitrifikation von Stickstoff [$\text{kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$]

Die Netto-Immobilisierungsrate N_i ist der Anteil an Stickstoff, der mit dem Blatt- bzw. Nadelfall organisch gebunden in die Humusschicht eingeht und dort dauerhaft gebunden, also ungelöst und damit nicht pflanzenverfügbar verbleibt. Die Netto-Immobilisierungsrate hängt von der Aktivität der dekompostierenden Bodenorganismen ab und diese wird von der Bodentemperatur sowie dem Angebot von Wasser, Nährkationen und Kohlenstoff gesteuert.

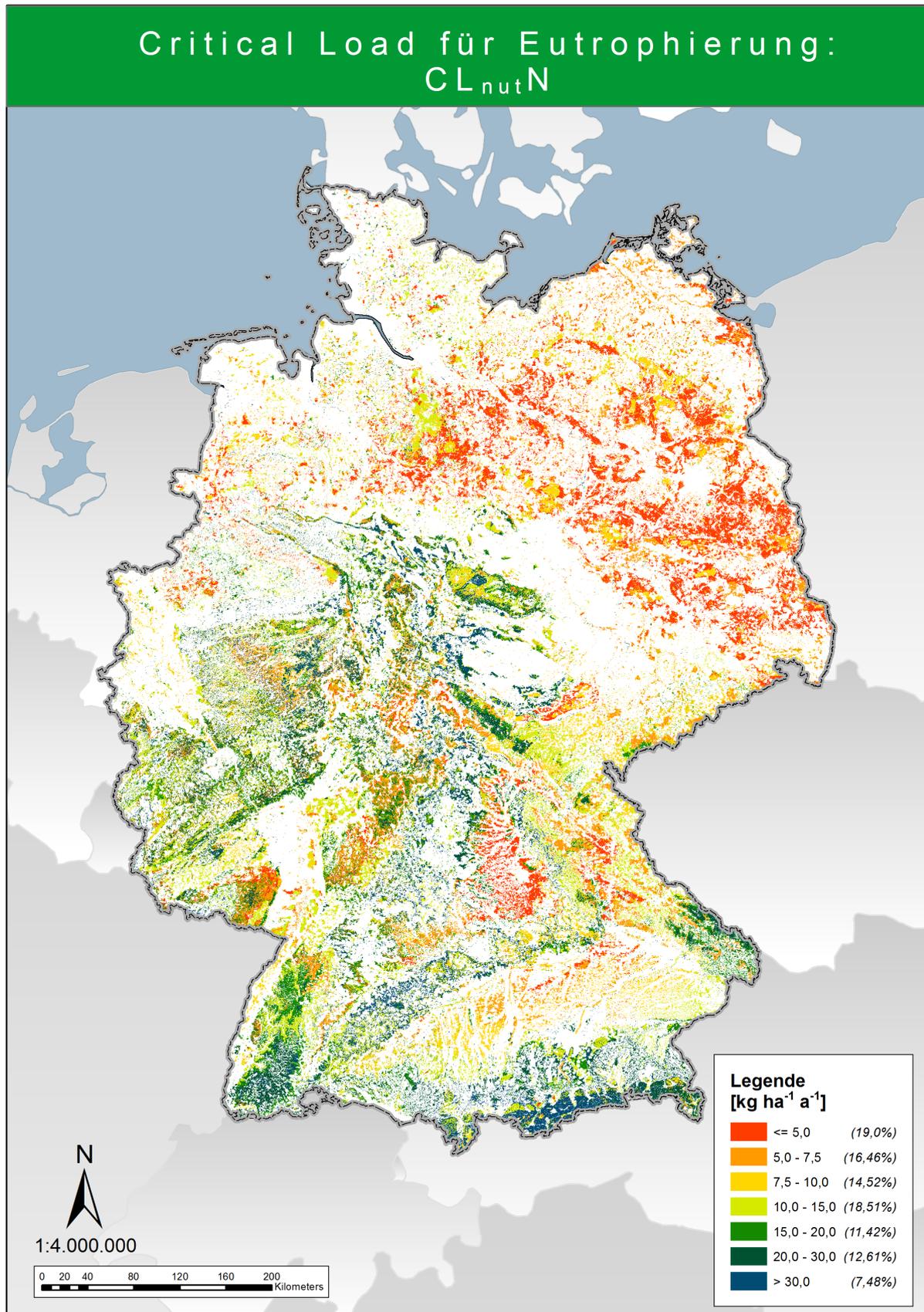
Die Denitrifikationsrate N_{de} ist der Anteil an Stickstoffverbindungen, der wieder aus dem Boden in die Atmosphäre ausgegast wird. Auch dieser Prozess wird von Bodenmikroorganismen durchgeführt und ist von der Bodentemperatur, dem Wasser-, Nährkationen- und Kohlenstoffangebot abhängig.

Die N-Aufnahmerate in die oberirdische pflanzliche Biomasse (N_u) wird aus der erntbaren Biomasse und dem Gehalt an Stickstoff in der Biomasse ermittelt. Berücksichtigt wird nur der in der Biomasse festgelegte Stickstoff, der durch Ernteausträge dem System entzogen wird, also zum Beispiel im Wald die Holzernte, nicht aber der Streufall.

Der verbleibende Rest an deponiertem und mineralisiertem Stickstoff, der nicht von Pflanzen aufgenommen, durch Denitrifikation in die Atmosphäre ausgegast oder durch Immobilisierung im Humus akkumuliert wird, steht einer Auswaschung mit dem Niederschlag aus dem Bodenwasser in die tieferen Schichten und letztendlich ins Grundwasser zur Verfügung (= Austrag mit dem Sickerwasser N_{le}). Zum Schutz der terrestrischen wie aquatischen Ökosysteme muss dieser Austrag auf ein tolerierbares Maß begrenzt werden. Im Mapping Manual (CLRTAP 2016) sind daher kritische Konzentrationen für den Stickstoff in der Bodenlösung definiert.

Die regionale Verteilung der Critical Load für eutrophierenden Stickstoff ist in Abbildung 50 dargestellt. Auch diese Daten wurden aus dem UBA-Projekt "Bereitstellung der Critical Load Daten für den Call for Data 2015-2017..." (Schlutow et al. 2017) übernommen, alle methodischen Ansätze zur Bestimmung der Critical Load sowie eine ausführliche Ergebnisdiskussion sind dort publiziert.

Abbildung 50: Critical Load für eutrophierenden Stickstoff, CL_{nutN}



Mai 2017

Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

6.2 Bewertung der Deposition von Luftschadstoffen im Vergleich zu den Critical Loads, Critical Load Exceedance

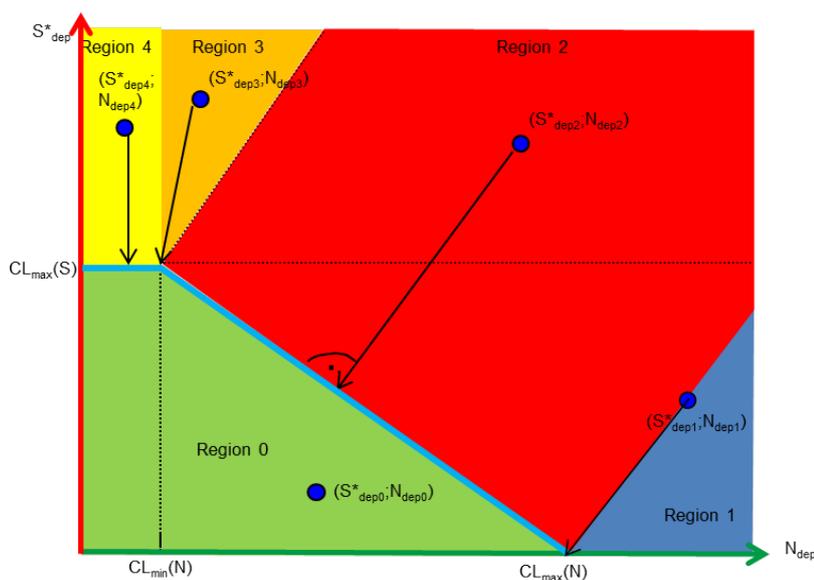
6.2.1 Methodischer Ansatz zur Berechnung der Exceedance

Aus dem Vergleich der Einträge von Luftschadstoffen mit den Critical Load ergibt sich, ob diese eingehalten oder überschritten sind, letzteres als Critical Load Exceedance bezeichnet. Dabei wird zwischen der Bewertung von Säureeinträgen und der für eutrophierenden Stickstoff unterschieden.

Schwefel- und Stickstoffeinträge tragen beide zur Versauerung bei, haben jedoch keinen gemeinsamen Critical Load. Daher wird mit den Eckpunkten CL_{maxS} , CL_{maxN} und CL_{minN} (vgl. Kapitel 6.1.1) ein Bereich definiert, in dem unterschiedliche Kombinationen von Schwefel- und Stickstoffeinträgen möglich und zulässig sind. Depositionswerte außerhalb der beschriebenen Fläche markieren eine Überschreitung der Critical Load (Exceedance). Dieser Ansatz wird als Critical Load-Funktion (CLF) bezeichnet. Die CLF beschreibt also einen Bereich, innerhalb dessen die ökologischen Belastungsgrenzen eingehalten sind. Die flächenkonkreten aktuellen Depositionswerte von Schwefel- und Stickstoffverbindungen ergeben den Depositionspunkt $(S^*_{dep}; N_{dep})$, wobei für Schwefel mit dem Stern ausgedrückt wird, dass es sich um den seesalzbereinigten Anteil handelt. Aus dem Abstand dieses Punktes zur Critical Load-Funktion ergibt sich die Einhaltung oder Überschreitung von ökologischen Belastungsgrenzen. Zudem wird deutlich, bei welchem Schadstoff und in welchem Umfang Maßnahmen zur Emissionsreduzierung getroffen werden müssen.

Für die Berechnung der Überschreitungsrates wurde festgelegt (CLRTAP 2015), dass die kürzeste Distanz zwischen dem Depositionspunkt und dem Schnittpunkt mit der äußeren Begrenzungslinie der Critical Load-Funktion als Grundlage für die Berechnung dient. Der Schnittpunkt dieser kürzesten Verbindung des Depositionspunktes mit der Critical Load-Funktion ist der Zielpunkt für die Reduktion von Depositionen. Der aktuelle Depositionspunkt $(S^*_{dep}; N_{dep})$ kann sich in 5 zu unterscheidenden Regionen in Relation zur Funktion der Critical Loads für Säureeinträge befinden (vgl. Abbildung 51). Diese Regionen müssen für die Berechnung der Überschreitungen gesondert voneinander betrachtet werden. Für jede Region ist eine Berechnungsvorschrift für die Exceedance definiert.

Abbildung 51: Critical Load-Funktion sowie die beispielhafte Lage der Depositionspunkte in unterschiedlichen Regionen zur Bestimmung der Critical Load-Überschreitung



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Die Überschreitungsrates der Critical Load für Versauerung durch Schwefel- und Stickstoffeinträge, $Ex(S^*_{dep}; N_{dep})$, ergibt sich daher je nach Lage des Depositionspunktes nach folgenden Formeln:

$$\begin{aligned}
 Ex(S^*_{dep}; N_{dep}) &= 0 && \text{wenn } (S^*_{dep}; N_{dep}) \in \text{Region 0} \\
 Ex(S^*_{dep1}; N_{dep1}) &= N_{dep1} - CL_{max}N + S_{dep1} && \text{wenn } (S^*_{dep}; N_{dep}) \in \text{Region 1} \\
 Ex(S^*_{dep2}; N_{dep2}) &= S^*_{dep2} - SCL_2 + N_{dep2} - NCL_2 && \text{wenn } (S^*_{dep}; N_{dep}) \in \text{Region 2} \\
 Ex(S^*_{dep3}; N_{dep3}) &= S^*_{dep3} - CL_{max}(S) + N_{dep3} - CL_{min}(N) && \text{wenn } (S^*_{dep}; N_{dep}) \in \text{Region 3} \\
 Ex(S^*_{dep4}; N_{dep4}) &= S^*_{dep4} - CL_{max}(S) && \text{wenn } (S^*_{dep}; N_{dep}) \in \text{Region 4}
 \end{aligned}$$

Die Überschreitungsrates des Critical Loads für den eutrophierenden Stickstoffeintrag ergibt sich in einfacher Subtraktion nach folgender Formel:

$$Ex(N_{dep}) = N_{dep} - CL_{nut}N$$

mit $Ex(N_{dep}) = 0$, wenn $N_{dep} < CL_{nut}N$

Die Einhaltung oder Überschreitung des Critical Loads wird als ein Indikator für die Belastung der Ökosysteme durch Luftschadstoffe gesehen (vgl. Kapitel 6.1). Critical Load-Überschreitungen (Exceedance) werden als Jahreswerte kartiert sowie im zeitlichen Trend dargestellt. Dabei werden dem vorhandenen Ökosystem (Rezeptor) die diesem Landnutzungstyp entsprechenden Depositionswerte zugeordnet. Eine ausführliche Beschreibung der Berechnung von landnutzungsabhängigen Stofffrachten ist dem Kapitel 2 dieses Berichts zu entnehmen.

6.2.2 Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015

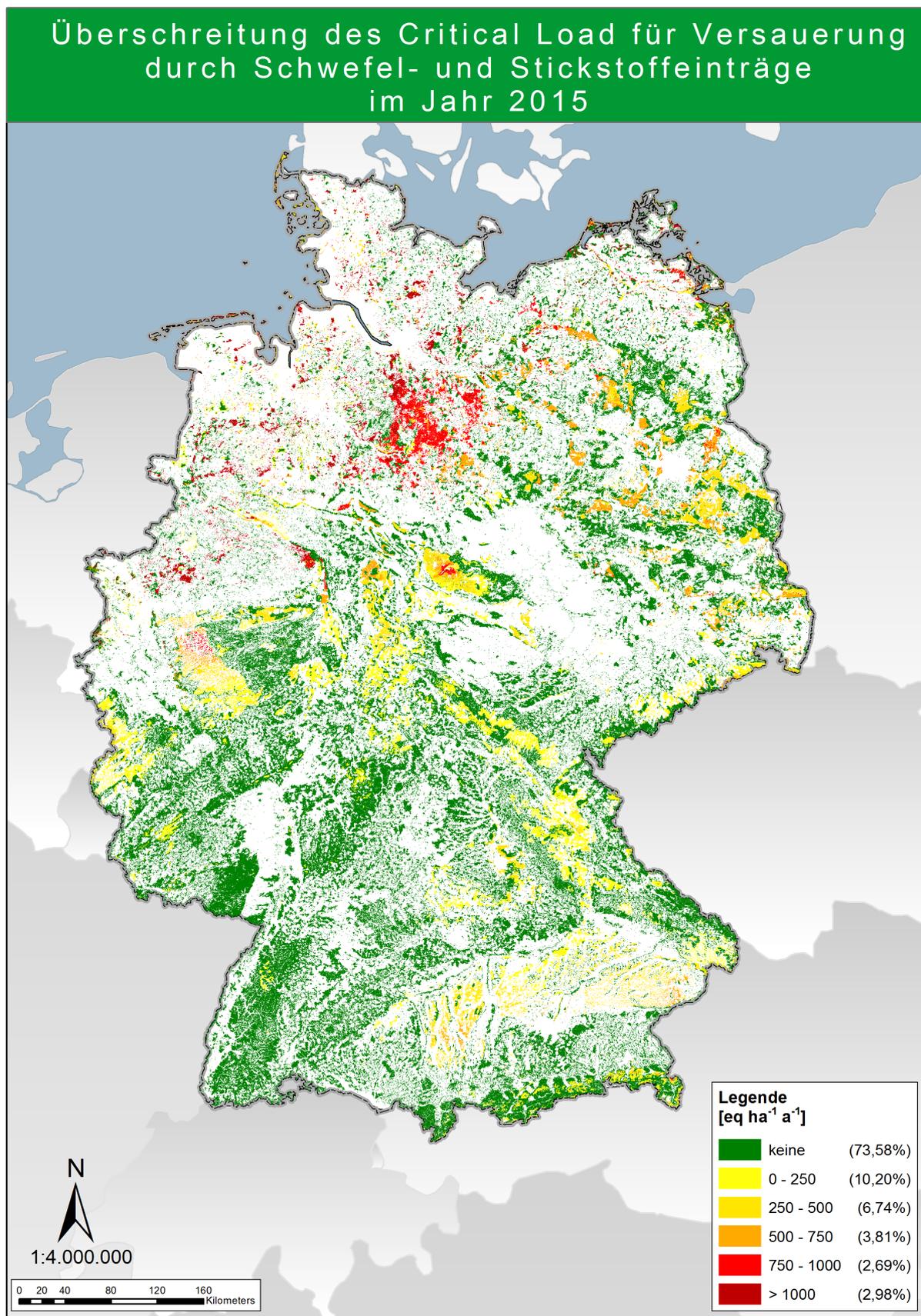
Noch Anfang der 90er Jahre des letzten Jahrhunderts litten in Deutschland über 85 % aller Ökosysteme unter zu hohen Säurebelastungen (SRU 1994, S.112). Einträge von mehr als 3000 Äquivalenten (eq) pro Hektar (ha) und Jahr (a) wurden auf mehr als 50 % der Rezeptorflächen festgestellt, "einem Wert, der z.B. im Schwarzwald oder im Harz das bis zu 6fache, in den sensitivsten Bereichen sogar das 15-30fache des ermittelten Critical Loads beträgt" (Nagel et al. 1994).

Dieses Bild hat sich dank einer erfolgreichen nationalen wie internationalen Luftreinhaltepolitik nahezu umgekehrt. In der Gegenwart (2014) sind bereits bei knapp 70 % der Ökosysteme die Critical Loads eingehalten. Wo Critical Load-Überschreitungen festzustellen sind liegen diese zu 20 % im Bereich bis zu 500 eq ha⁻¹ a⁻¹. Werte über 1000 eq ha⁻¹ a⁻¹ finden sich nur noch auf weniger als 3 % der Ökosysteme (vgl. Abbildung 52). Bei den weiterhin von einer Critical Load-Überschreitung betroffenen 30 % der Rezeptorflächen ist jedoch zukünftig die Verminderung von Säureeinträgen geboten.

Im zeitlichen Verlauf der Jahre 2000 bis 2014 betrachtet ist der Anteil hoher (750 - 1000 eq ha⁻¹ a⁻¹) bis sehr hoher Säurebelastung (> 1000 eq ha⁻¹ a⁻¹) ständig gesunken, während gleichzeitig der Anteil von nicht oder gering belasteten (bis 250 eq ha⁻¹ a⁻¹) stieg (vgl. Abbildung 53 und Tabelle 15).

Die Ergebnisse dieses Projektes zeigen, dass der Zielstellung der Nationalen Strategie zur biologischen Vielfalt (NBS), nach der bis zum Jahr 2020 alle Critical Loads eingehalten werden sollen (BMU 2007 und BMUB 2015), nahe gekommen werden kann. Anzumerken ist jedoch auch, dass die in vergangenen Jahrzehnten eingetragene Säurefracht durchaus noch wirksam ist und eine Erholung der Ökosysteme von dieser Belastung längere Zeiträume erfordert. Auch zeichnet sich ab, dass zukünftig die Einbeziehung des Schutzgutes Biodiversität in die Critical Load-Berechnung die Empfindlichkeit von Ökosystemen gegenüber Säureeinträgen erhöhen kann.

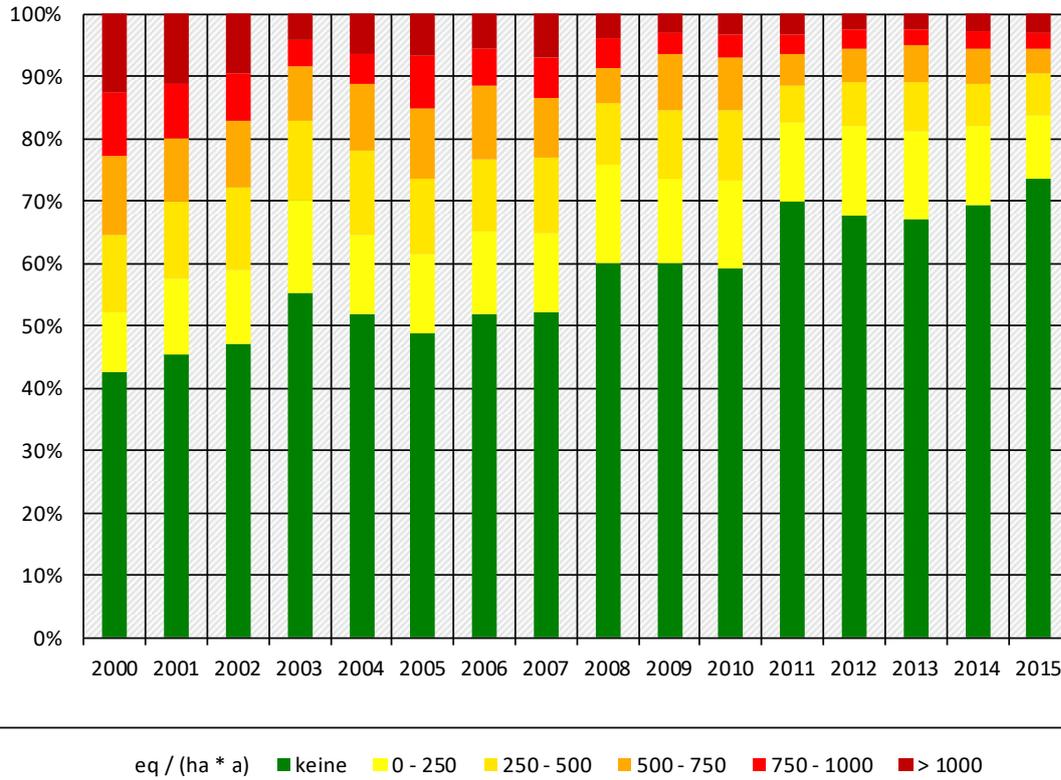
Abbildung 52: Überschreitung der Critical Load-Funktion durch Säureeinträge im Jahr 2015



September 2017

Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 53: Überschreitung der Critical Load-Funktion durch Säureeinträge in den Jahren 2000 bis 2015



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Tabelle 15: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in eq ha⁻¹ a⁻¹) bei den Critical Load für Versauerung

Jahr	Keine	>0 - 250	>250 -500	>500 -750	>750-1000	>1000
2000	42,58	9,75	12,37	12,59	10,06	12,65
2001	45,43	12,02	12,44	10,16	8,81	11,14
2002	47,23	11,66	13,19	10,87	7,66	9,40
2003	55,25	15,04	12,54	8,71	4,22	4,25
2004	51,86	12,85	13,46	10,71	4,82	6,30
2005	48,70	12,75	12,11	11,16	8,64	6,64
2006	51,98	13,01	11,79	11,71	5,92	5,57
2007	52,19	12,58	12,27	9,41	6,68	6,88
2008	60,21	15,70	9,81	5,54	4,78	3,97
2009	60,17	13,35	11,08	9,02	3,43	2,94
2010	59,25	14,15	11,26	8,44	3,50	3,41
2011	69,96	12,57	5,93	5,06	3,03	3,45
2012	67,77	14,32	6,88	5,40	3,16	2,48
2013	67,15	14,01	7,96	5,97	2,49	2,42
2014	69,34	12,61	6,85	5,56	2,83	2,81
2015	73,58	10,20	6,74	3,81	2,69	2,98

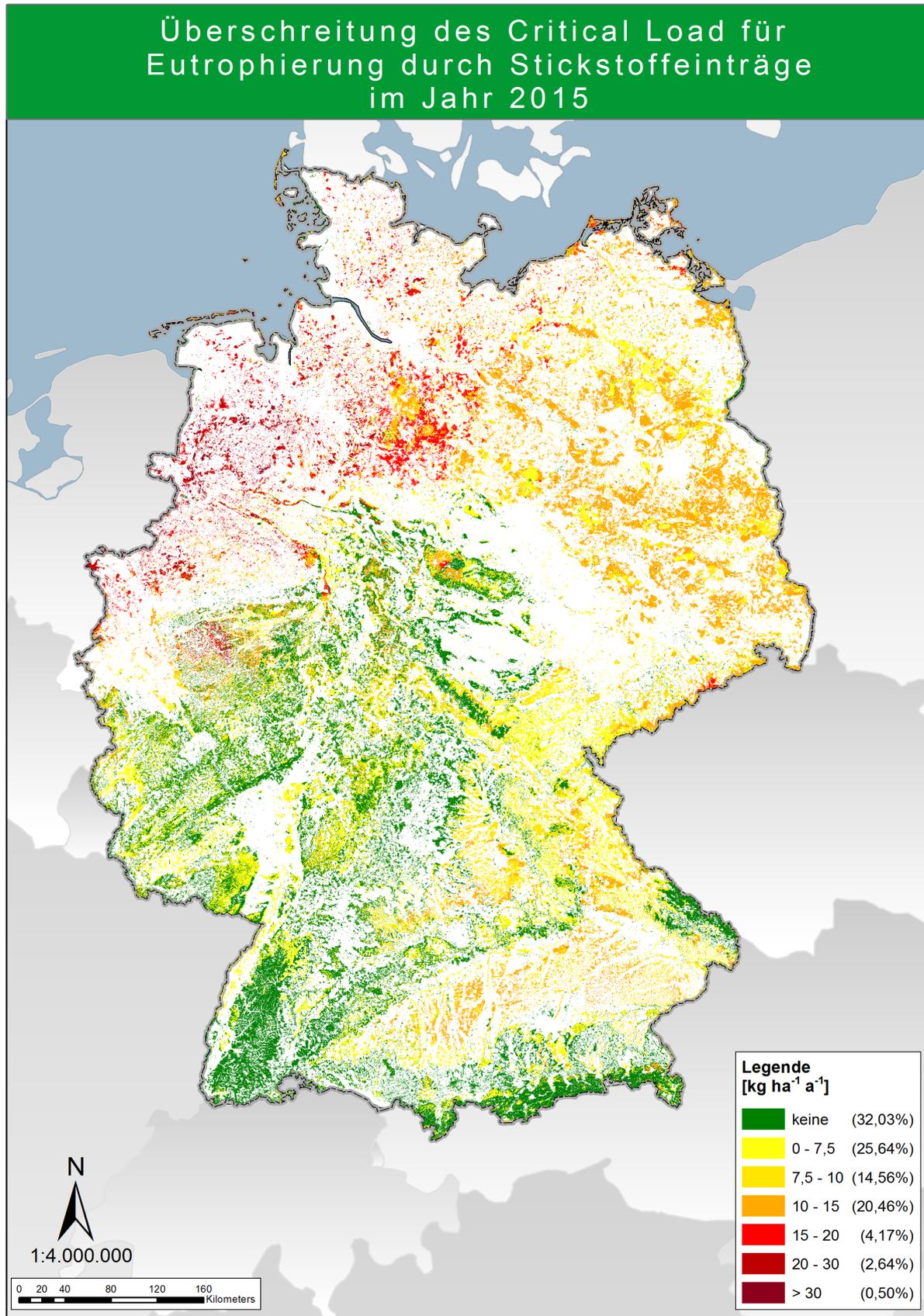
6.2.3 Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015

Vor etwa 25 Jahren, zu Beginn der 90er Jahre, waren die Critical Load für Eutrophierung in Deutschland nahezu flächendeckend überschritten. Im nationalen Statusreport an das europäische Koordinierungszentrum für das ICP Modelling & Mapping konnte nur für knapp 5 % der Ökosysteme eine Einhaltung der ökologischen Belastungsgrenzen (Bezugsjahr 1993) vermeldet werden (Gregor et al. 1997). Anders als bei der Säurebelastung sind Fortschritte bei der Verminderung von Stickstoffeinträgen allerdings nur sehr moderat verlaufen. Bis zum Jahr 2014 ist der Anteil von Flächen ohne Critical Load-Überschreitung nur auf 31 % angestiegen (vgl. Abbildung 54). Zwar sind zwischen 2000 und 2014 die Anteile von Flächen mit einer Überbelastung größer $15 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ von fast 30 % im Jahr 2000 auf etwas über 6 % im Jahr 2014 gesunken (vgl. Abbildung 55 und Tabelle 16, doch ist die Zielstellung aus der Nationalen Strategie zur biologischen Vielfalt (NBS), die für das Jahr 2020 die Einhaltung der Critical Loads fordert (BMU 2007 und BMUB 2015), nicht mehr realistisch. Daher hat die Bundesregierung in der Nachhaltigkeitsstrategie 2016 als Zielwert angegeben, ab dem Jahr 2030 den Flächenanteil der Ökosystemflächen Einträge oberhalb der Critical Load um 35 Prozent gegenüber 2005 zu senken (Bundesregierung 2016). In Bezug auf die Ergebnisse dieses Projekts darf der Anteil der Flächen oberhalb der Critical Loads dann nur noch 50 % betragen. So machen die Ergebnisse dieses Vorhabens die erreichten Fortschritte ebenso wie den verbleibenden Handlungsbedarf deutlich, die Reduzierung der Stickstoffeinträge bleibt ein dringendes Problem (SRU 2015). Da zukünftig auch der Erhalt der Biodiversität als ein Schutzgut betrachtet werden soll, kann sich die Empfindlichkeit der Ökosysteme gegenüber Stickstoffeinträgen noch erhöhen und dadurch der Anteil von Flächen geringer werden, auf denen die Critical Loads eingehalten werden.

Tabelle 16: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in $\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) bei den Critical Load für Eutrophierung

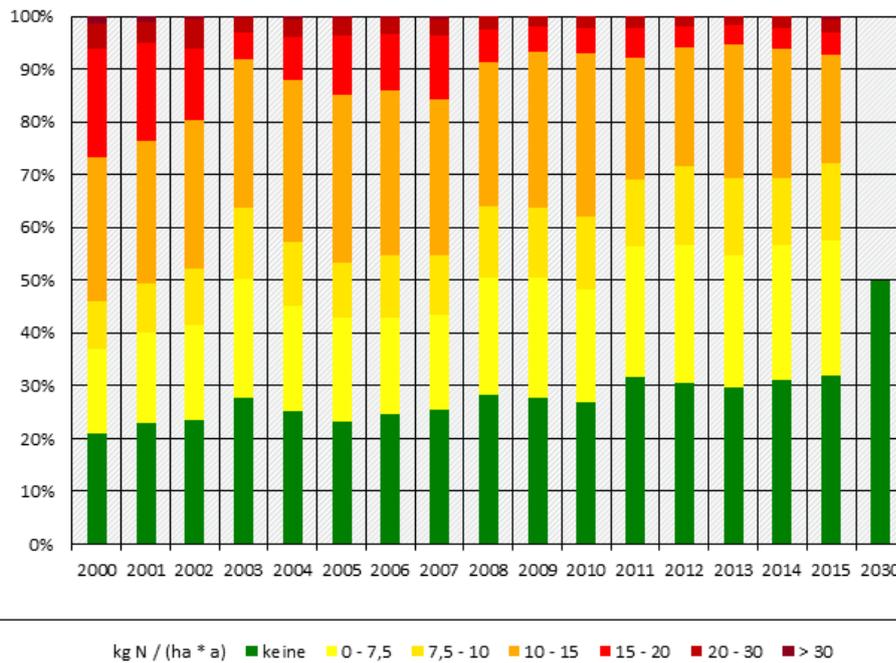
Jahr	Keine	>0 - 7,5	>7,5-10	>10 -15	>15 -20	>20-30	>30
2000	20,97	16,16	8,76	27,38	20,51	4,97	1,25
2001	22,92	17,04	9,46	27,01	18,60	3,99	0,98
2002	23,60	17,97	10,69	27,96	13,75	5,38	0,65
2003	27,67	22,48	13,61	28,14	5,08	2,68	0,34
2004	25,30	19,80	12,04	30,87	8,00	3,60	0,40
2005	23,11	19,74	10,39	31,86	11,17	3,44	0,29
2006	24,56	18,40	11,65	31,35	10,64	3,18	0,22
2007	25,33	18,19	11,30	29,41	12,08	3,30	0,40
2008	28,25	22,32	13,41	27,46	5,97	2,49	0,09
2009	27,58	22,84	13,31	29,63	4,61	1,97	0,06
2010	26,84	21,35	13,85	30,91	4,91	2,08	0,06
2011	31,65	24,63	12,71	23,19	5,52	2,26	0,03
2012	30,57	26,20	14,91	22,51	4,01	1,80	0,02
2013	29,71	25,07	14,54	25,44	3,55	1,67	0,01
2014	31,02	25,72	12,64	24,49	3,94	2,12	0,08
2015	32,03	25,64	14,56	20,46	4,17	2,64	0,50

Abbildung 54: Überschreitung der Critical Load für eutrophierenden Stickstoff im Jahr 2015



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 55: Überschreitung der Critical Load für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

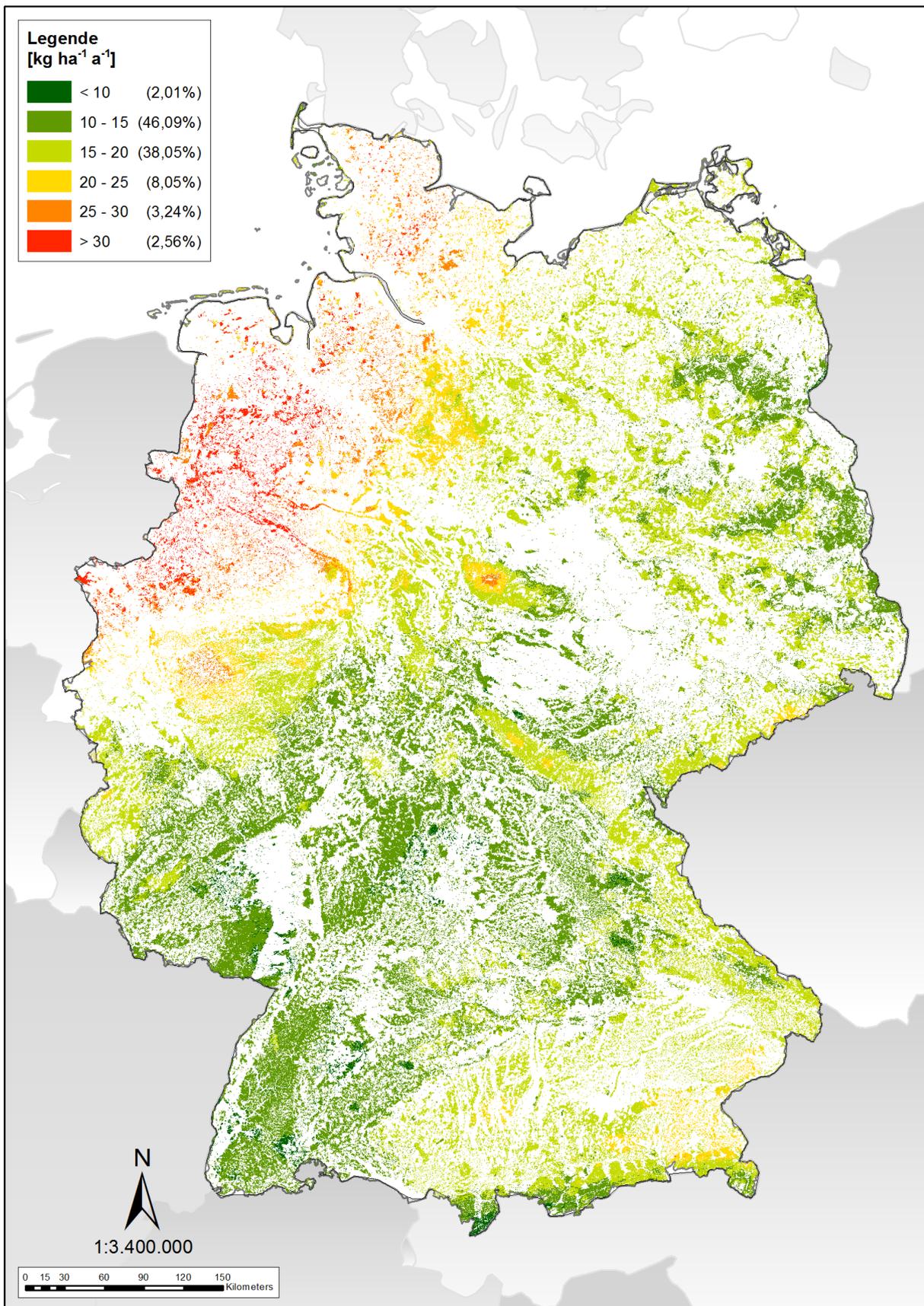
6.2.4 Abschätzung der Minderungserfordernisse für Stickstoffeinträge

Ausgehend von den Flächen in Deutschland, für die Critical Load ausgewiesen wurden, kann eine Abschätzung der Minderungserfordernisse für Stickstoffeinträge erfolgen. Dafür wird zunächst die Stickstofffracht berechnet, die auf die etwa 31 % der Landfläche Deutschlands mit ökologischen Belastungsgrenzen entfällt (vgl. Abbildung 56). Das sind etwa 170 Kilotonnen (2015), die damit 32 % der gesamten Stickstoffdeposition entsprechen (vgl. Abbildung 57). Die Summe an Stickstoffeinträgen oberhalb der Critical Load beträgt im Jahr 2015 etwa 67 kt. Davon entfallen 72 % auf Critical Load Überschreitungen in Nadelwäldern, knapp 14 % auf Laubwälder und etwa 13 % auf die Überschreitung von Belastungsgrenzen bei den Mischwäldern (vgl. Tabelle 17).

Tabelle 17: Anteil (%) der Stickstoffeinträge nach Landnutzungsklassen und auf Critical Load Flächen

Landnutzungsklasse	Anteil N-Einträge Deutschland gesamt	Anteil N-Einträge auf CL-Flächen	Anteil N-Einträge an CL-Überschreitung
Arable Land (ara)	32,36		
Coniferous Forest (cnf)	17,70	54,1	72,0
Permanent Crops (crp)	0,73		
Deciduous Forest (dec)	10,28	30,7	13,7
Grassland (grs)	17,20		
Mixed Forest (mix)	4,67	13,4	13,3
Other (oth)	0,10		
Seminatural (sem)	2,74	1,8	1,0
Urban (urb)	12,27		
Water (wat)	1,94		

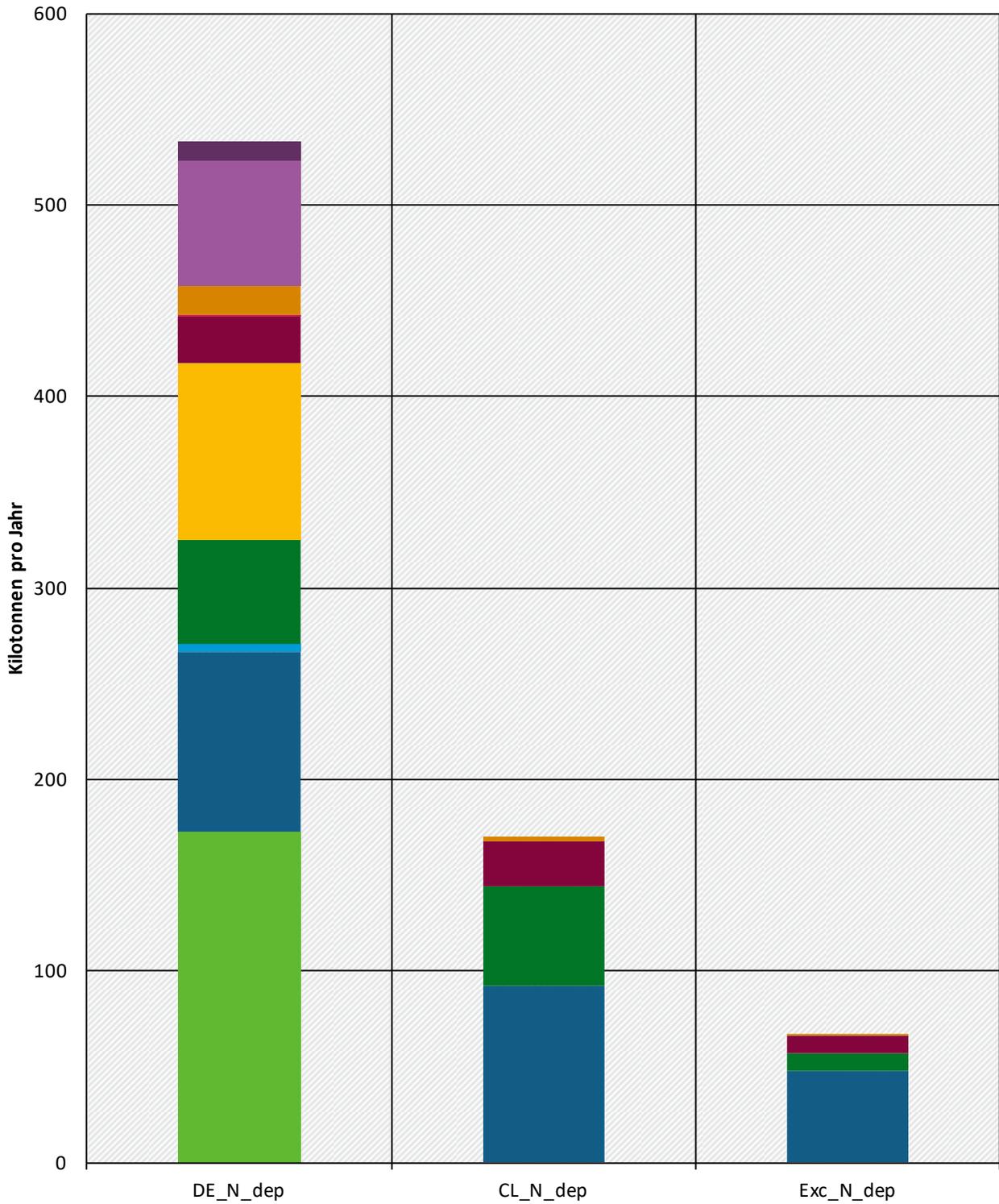
Abbildung 56: Stickstoffeinträge auf Flächen mit Critical Loads im Jahr 2015



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 57: Stickstoffeinträge verteilt auf Landnutzungsklassen (DE_N_dep), auf Flächen mit Critical Loads (CL_N_dep) und auf die Landnutzungsklassen mit Critical Load Exceedance (Exc_N_dep) im Jahr 2015

N-Einträge in Landnutzungsklassen [kt / a]



ara cnf crp dec grs mix oth sem urb wat

* Für die Abkürzungen der Landnutzungsklassen siehe Tabelle 3

Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Um zukünftig die Critical Loads nicht mehr zu überschreiten müssen die Stickstoffeinträge auf der Gesamtfläche Deutschlands in so einem Umfang gesenkt werden, dass auch an den Rezeptoren, die Überschreitungen aufweisen, dieses Ziel erreicht wird.

Ein beispielhafter Ansatz die Erfordernisse zur Minderung der Stickstoffeinträge zu bestimmen könnte wie folgt aussehen.

Danach wird angenommen, dass der übermäßige Anteil an der Deposition auf der gesamten Fläche Deutschlands gleich (räumlich homogen) zum übermäßigen Anteil auf empfindlichen Flächen sei. Danach kann die gesamte übermäßige Deposition D_{exc} wie folgt berechnet werden:

$$D_{exc} = \frac{Exc_N_dep}{f_{CL} \cdot f_{Exc}} \quad [\text{kt N}]$$

mit den Parametern:

Exc_N_dep: Übermäßige Deposition auf Flächen mit definiertem Critical Load

f_{Exc} : Anteil der Flächen mit definiertem Critical Load, auf denen der Critical Load überschritten ist

f_{CL} : Anteil der Flächen mit definiertem CL an der Gesamtfläche Deutschlands

Diesem methodischen Ansatz folgend wäre es notwendig, in Deutschland insgesamt die Stickstoffeinträge um

$$318 \text{ kt} = \frac{67 \text{ kt}}{0,31 \cdot 0,68} \text{ N}$$

zu senken, um die Critical Loads nicht mehr mit den ausgewiesenen 67 kt N zu überschreiten. Ein gewisser Teil dieser Minderung wird durch Maßnahmen außerhalb Deutschlands zu erwarten sein.

6.2.5 Critical Load Überschreitung als Indikator für Maßnahmen zur Luftreinhaltung

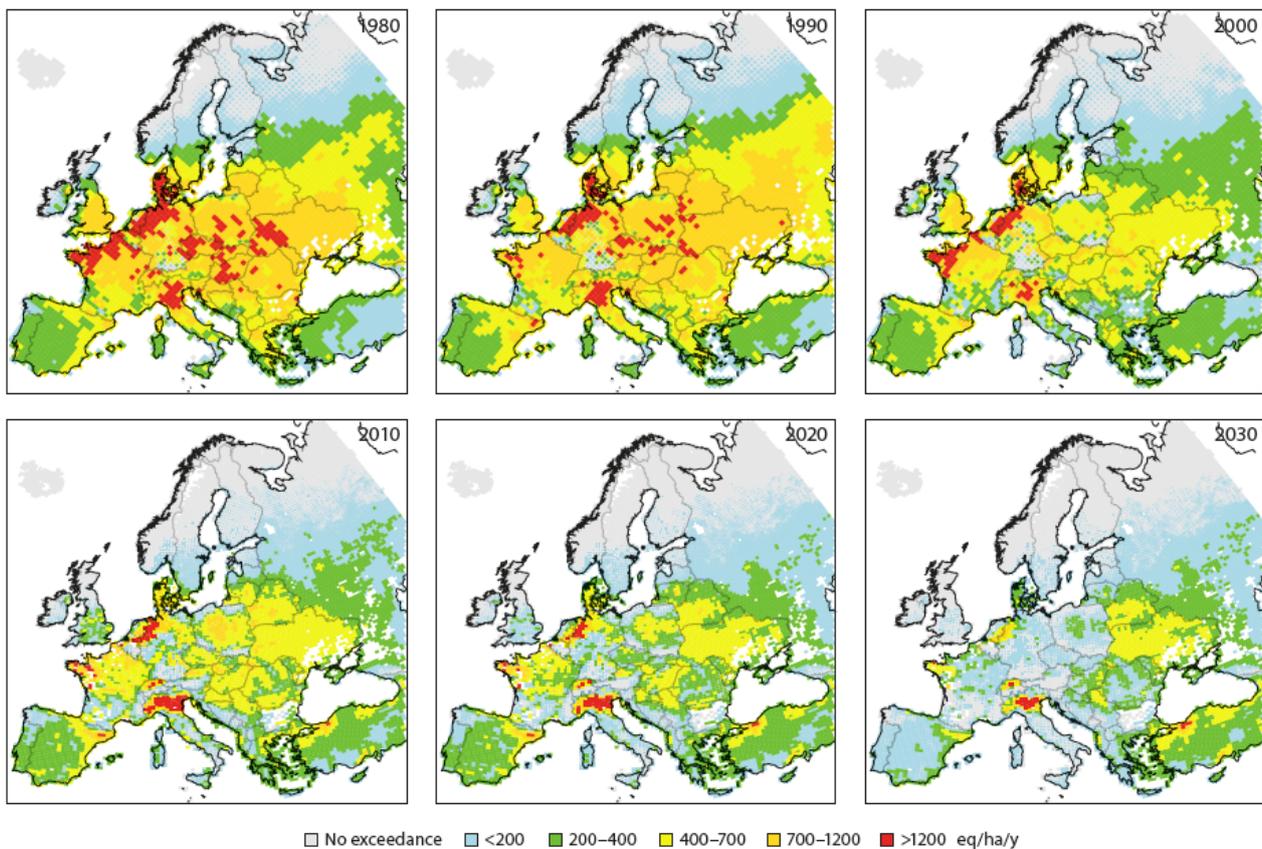
Im nationalen Rahmen wie auch für Europa insgesamt wird die Effizienz von Maßnahmen zur Luftreinhaltung vorrangig an den dabei erzielten positiven Wirkungen zu bemessen sein. Daher legt auch die Richtlinie (EU) 2016/2284 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 14. Dezember 2016 über die Reduktion der nationalen Emissionen bestimmter Luftschadstoffe im Artikel zur Überwachung der Auswirkungen der Luftverschmutzung fest:

"(1) Die Mitgliedstaaten sorgen mithilfe eines Netzes von Überwachungsstellen, die für Süßwasserökosysteme, natürliche und naturnahe Ökosysteme sowie Waldökosysteme repräsentativ sind, für die Überwachung der negativen Auswirkungen der Luftverschmutzung auf Ökosysteme, wobei sie einen kosteneffizienten und risikobasierten Ansatz verfolgen.

(2) Bei der Erhebung und Übermittlung der Daten können die im LRTAP-Übereinkommen festgelegten Methoden und der in dessen Rahmen erstellten Handbücher für Programme der internationalen Zusammenarbeit angewandt werden" (EU 2016).

Das bedeutet auch, dass die im Handbuch (Mapping Manual) des ICP Modelling & Mapping (LRTAP 2016) beschriebenen Methoden zur Bestimmung von ökologischen Belastungsgrenzen (Critical Loads) und deren Überschreitung (Critical Load Exceedance) für die Umweltüberwachung im europäischen Maßstab eingesetzt werden (vgl. Abbildung 58, Maas and Grennfelt 2016).

Abbildung 58: Überschreitung der Critical Load für Stickstoff in den Jahren 1980 bis 2030 (Maas and Grennfelt 2016)



Quelle: Maas and Grennfelt 2016

Gleiches gilt auch im nationalen Rahmen: "In Deutschland wurden zum Zweck der Einhaltung der Europäischen Richtlinien vom Bundestag das Bundes-Immissionsschutzgesetz (BImSchG) geändert und von der Bundesregierung die Zweiundzwanzigste und die Dreiunddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (22. BImSchV und 33. BImSchV) erlassen. Mit Inkrafttreten der 39. Bundes-Immissionsschutzverordnung wurden diese abgelöst und damit die Regelungen der Europäischen Richtlinie 2008/50/EG in nationales Recht umgesetzt. Im Blickpunkt dabei steht die angestrebte Verminderung und Vermeidung von schädlichen Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit und die Umwelt durch Luftschadstoffe. Die Einhaltung der vorgeschriebenen Immissionswerte und Emissionshöchstmengen wird die Schadstoffbelastung weiter mindern. Die Bevölkerung ist umfassend über die Luftqualität zu informieren⁷".

Als ein Indikator für die Luftreinhaltung steht dabei die Einhaltung der Critical Load. So benennen sowohl die Nationale Strategie zur biologischen Vielfalt (BMU 2007, BMUB 2015) als auch die Deutsche Nachhaltigkeitsstrategie (Bundesregierung 2016) die Einhaltung der ökologischen Belastungsgrenzen als ein zu erreichendes Ziel.

Die als Jahreswerte ermittelten Eintragsraten von Luftschadstoffen weisen natürlich eine enge Verflechtung mit dem meteorologischen Jahresverlauf auf und die unter Verwendung dieser ermittelten Critical Load Überschreitungen reagieren daher teilweise sehr empfindlich auf interannuelle Variationen. Vor diesem Hintergrund und auch unter Berücksichtigung der bestehenden Unsicherheiten bei der Depositionsmodellierung (vgl. Kapitel 4.4) wurden daher auch Möglichkeiten untersucht, den Indikator um robustere Größen (z.B. die mittlere Überschreitung) zu ergänzen. Ebenfalls wurde die Betroffenheit von Natura 2000-Gebieten und die anderer nationaler Naturschutzgebiete hinsichtlich von Critical-Load-Überschreitungen analysiert.

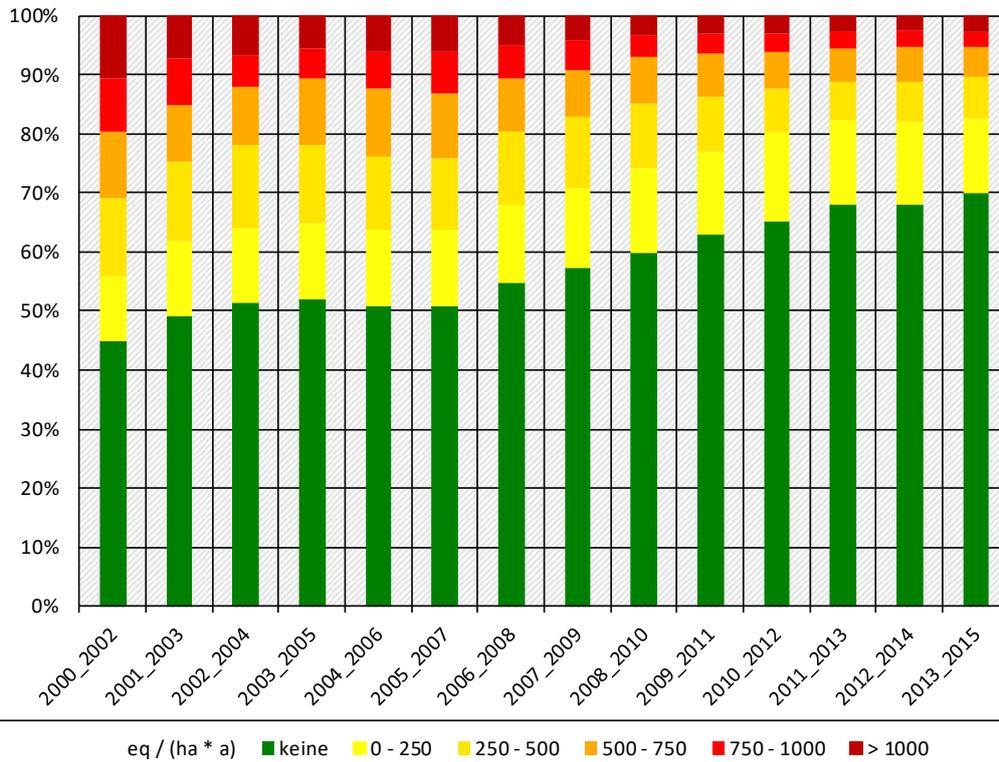
6.2.5.1 Critical Load Überschreitungen im mehrjährigen Mittel

Um jahresbezogene meteorologische Unterschiede zu nivellieren erfolgte eine Mittelung der Depositionswerte zu drei- und fünfjährigen Durchschnittswerten. Mit diesen konnten dann nach den in Kapitel 6.2.1 beschriebenen Methoden die Einhaltung oder Überschreitung der Critical Load bestimmt werden (vgl. Abbildung 59)

⁷ <https://www.umweltbundesamt.de/themen/luft/regelungen-strategien/nationale-luftreinhaltung#textpart-2>

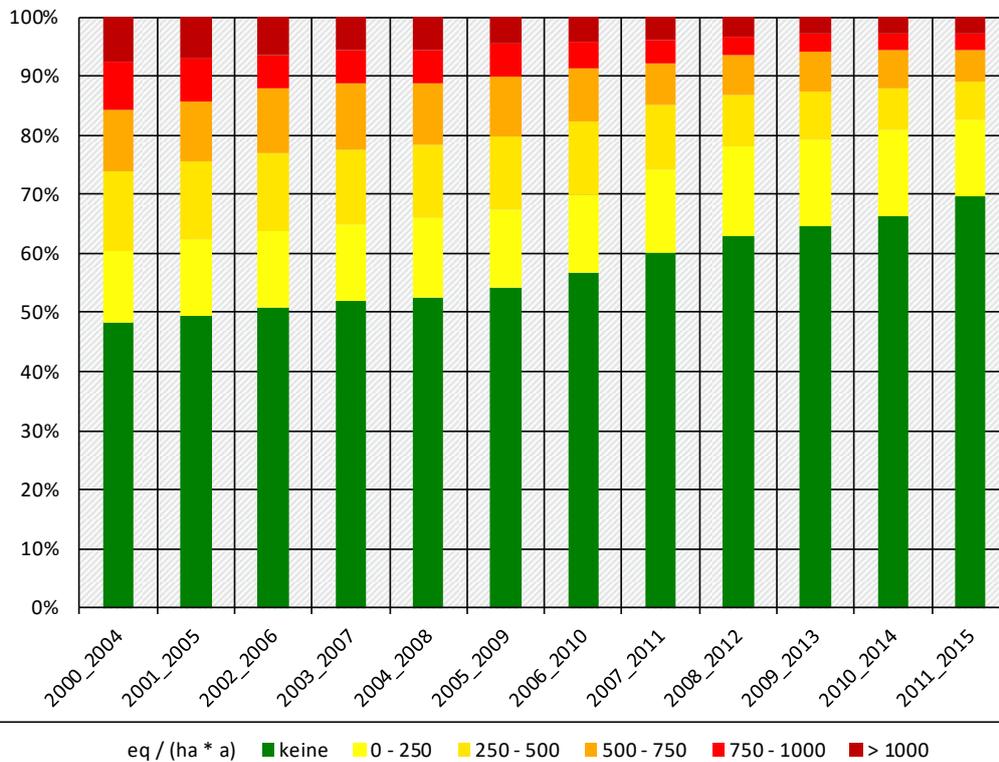
Abbildung 59bis Abbildung 622 und Tabelle 18 bis Tabelle 21). Dabei zeigt sich, dass die in der Auswertung einzelner Jahre noch zu verzeichnenden Unterschiede von bis zu 5 Prozentpunkten, die nicht ursächlich auf Maßnahmen zur Luftreinhaltung zurückgeführt werden können, aufgefangen werden und tatsächliche Trends der Umweltentlastung besser zur Geltung kommen. Für die Darstellung der zeitlichen Entwicklung wird daher das Mittel über einen Zeitraum von drei Jahren empfohlen (vgl. Abbildung 63 und Abbildung 64)

Abbildung 59: Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 60: Überschreitung der Critical Load für Versauerung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über fünf Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 61: Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff

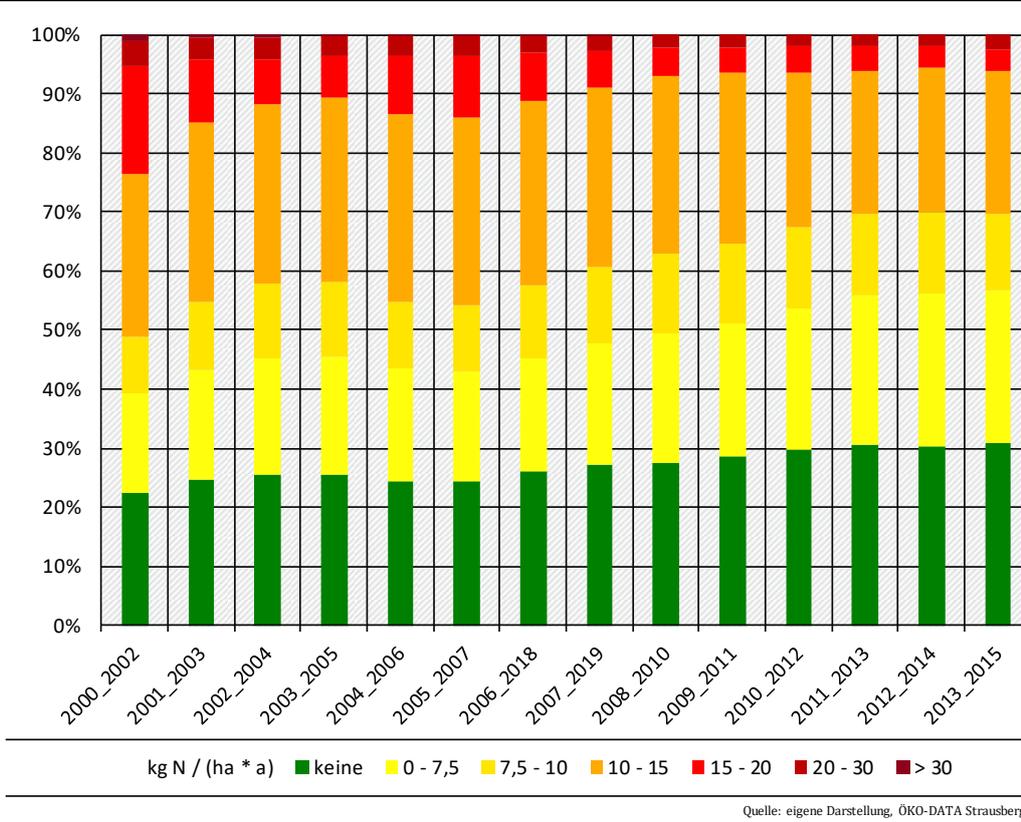


Abbildung 62: Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung in den Jahren 2000 bis 2015 mit über fünf Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff

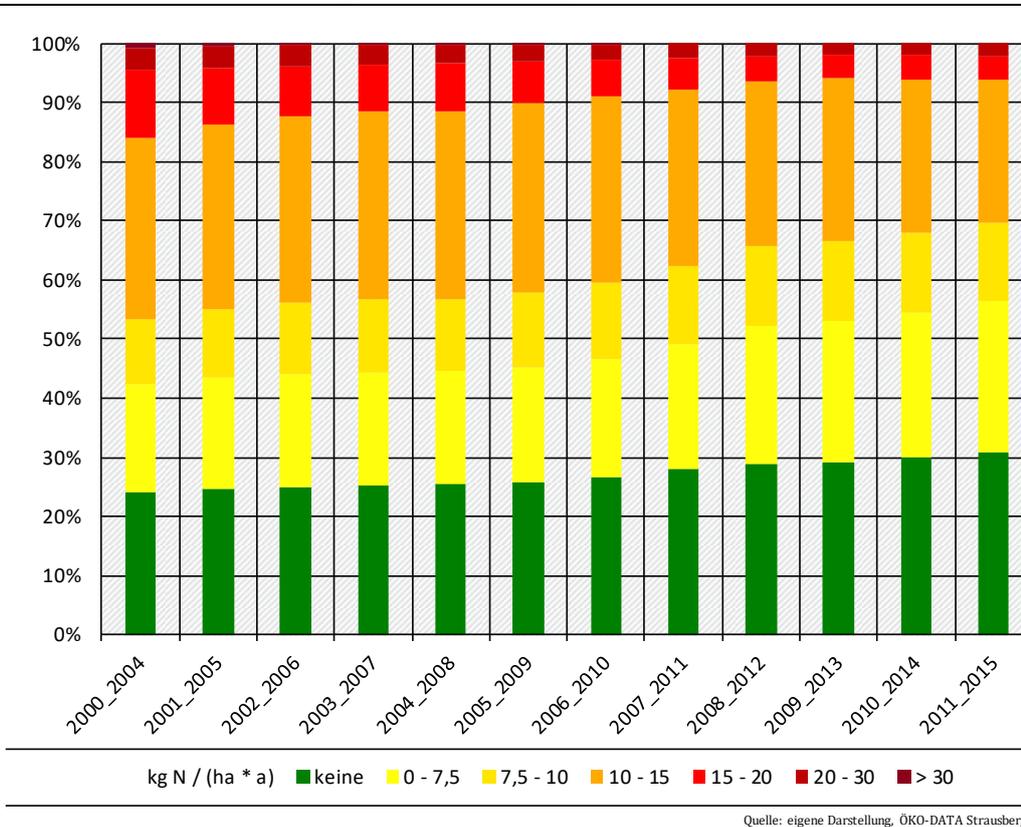


Tabelle 18: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in eq ha⁻¹ a⁻¹) bei den Critical Load für Versauerung unter Verwendung der gemittelten Einträge über drei Jahre

Jahr	Keine	>0 - 250	>250 -500	>500 -750	>750-1000	>1000
2000 - 2002	44,87	11,01	13,15	11,32	9,13	10,52
2001 - 2003	49,08	12,64	13,49	9,78	7,72	7,3
2002 - 2004	51,3	12,83	13,96	9,86	5,39	6,67
2003 - 2005	51,94	13,01	13,15	11,18	5,22	5,5
2004 - 2006	50,76	12,88	12,58	11,55	6,22	6,02
2005 - 2007	50,78	13,03	11,9	11,1	7,1	6,09
2006 - 2008	54,68	13,24	12,49	8,87	5,57	5,15
2007 - 2009	57,27	13,64	12,09	7,67	5,15	4,18
2008 - 2010	59,81	14,42	10,88	7,76	3,74	3,39
2009 - 2011	62,87	14,22	9,31	7,29	3,14	3,17
2010 - 2012	65,1	15,16	7,35	6,23	3,06	3,1
2011 - 2013	68,08	14,1	6,49	5,68	2,9	2,75
2012 - 2014	68,03	13,98	6,8	5,91	2,77	2,52
2013 - 2015	70,06	12,65	6,87	5,06	2,67	2,69

Tabelle 19: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in eq ha⁻¹ a⁻¹) bei den Critical Load für Versauerung unter Verwendung der gemittelten Einträge über fünf Jahre

Jahr	Keine	>0 - 250	>250 -500	>500 -750	>750-1000	>1000
2000 - 2004	48,16	12,09	13,68	10,30	8,15	7,62
2001 - 2005	49,54	12,68	13,30	10,18	7,40	6,90
2002 - 2006	50,89	12,81	13,18	10,95	5,86	6,30
2003 - 2007	51,88	13,06	12,73	11,05	5,63	5,65
2004 - 2008	52,64	13,30	12,58	10,14	5,81	5,53
2005 - 2009	54,28	13,24	12,40	9,89	5,61	4,58
2006 - 2010	56,61	13,38	12,32	8,95	4,63	4,11
2007 - 2011	60,01	14,20	10,81	7,21	3,94	3,83
2008 - 2012	63,03	15,17	8,59	6,70	3,28	3,23
2009 - 2013	64,47	14,75	8,18	6,84	2,90	2,87
2010 - 2014	66,38	14,52	7,13	6,26	2,88	2,84
2011 - 2015	69,61	13,06	6,33	5,36	2,83	2,80

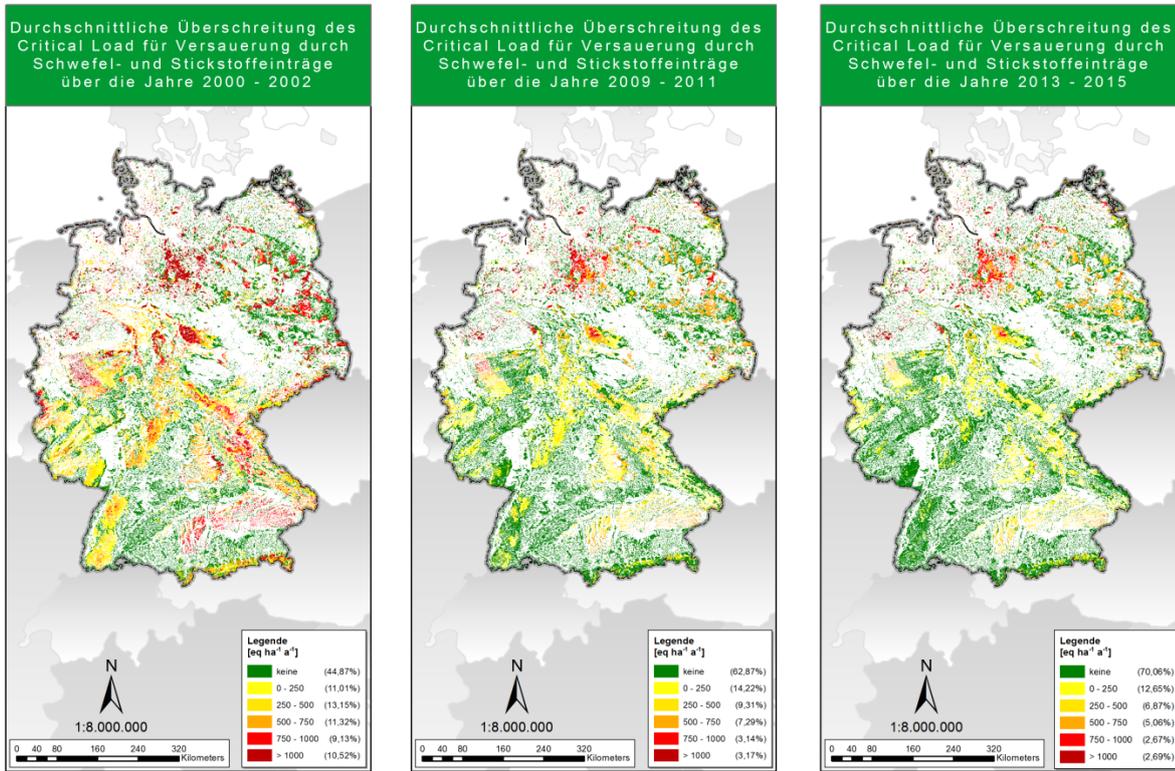
Tabelle 20: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) bei den Critical Load für Eutrophierung unter Verwendung der gemittelten Einträge über drei Jahre

Jahr	Keine	>0 - 7,5	>7,5-10	>10 -15	>15 -20	>20-30	>30
2000 - 2002	22,38	16,96	9,64	27,53	18,06	4,41	1,02
2001 - 2003	24,72	18,64	11,52	30,18	10,67	3,63	0,64
2002 - 2004	25,56	19,57	12,58	30,59	7,54	3,73	0,43
2003 - 2005	25,51	20,09	12,47	31,38	7,03	3,18	0,33
2004 - 2006	24,36	19,09	11,36	31,77	9,82	3,34	0,27
2005 - 2007	24,37	18,54	11,29	31,82	10,46	3,26	0,26
2006 - 2008	26,09	19,16	12,4	31,22	8,04	2,91	0,19
2007 - 2009	27,07	20,53	12,96	30,56	6,2	2,55	0,14
2008 - 2010	27,58	21,83	13,54	30,17	4,62	2,19	0,06
2009 - 2011	28,7	22,52	13,37	28,84	4,45	2,07	0,05
2010 - 2012	29,71	23,85	13,83	26,15	4,4	2,03	0,04
2011 - 2013	30,64	25,12	13,9	24,28	4,15	1,89	0,02
2012 - 2014	30,4	25,84	13,65	24,52	3,63	1,93	0,03
2013 - 2015	30,85	25,79	13,1	24,14	3,75	2,29	0,08

Tabelle 21: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) bei den Critical Load für Eutrophierung unter Verwendung der gemittelten Einträge über fünf Jahre

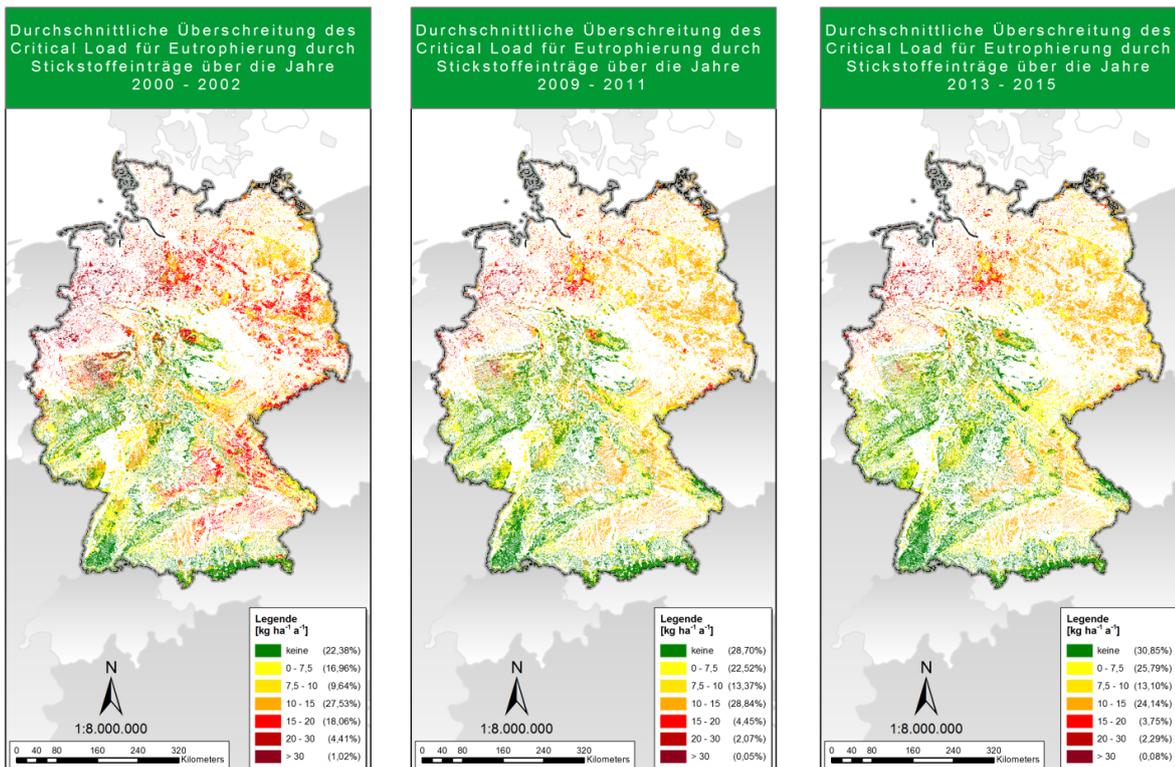
Jahr	Keine	>0 - 7,5	>7,5-10	>10 -15	>15 -20	>20-30	>30
2000 - 2004	24,04	18,24	10,95	30,66	11,58	3,80	0,74
2001 - 2005	24,55	18,98	11,42	31,26	9,74	3,56	0,49
2002 - 2006	24,90	19,23	11,95	31,57	8,54	3,45	0,36
2003 - 2007	25,29	19,19	12,15	31,92	7,98	3,17	0,31
2004 - 2008	25,41	19,11	12,10	31,84	8,23	3,07	0,23
2005 - 2009	25,87	19,42	12,59	32,02	7,13	2,81	0,16
2006 - 2010	26,55	20,01	13,07	31,49	6,18	2,58	0,12
2007 - 2011	27,95	21,15	13,23	29,86	5,32	2,40	0,08
2008 - 2012	28,98	23,16	13,48	27,89	4,32	2,12	0,04
2009 - 2013	29,25	23,74	13,64	27,44	3,97	1,93	0,03
2010 - 2014	29,95	24,44	13,63	25,94	4,00	1,99	0,04
2011 - 2015	30,95	25,51	13,34	23,96	4,02	2,18	0,06

Abbildung 63: Überschreitung der Critical Load für Versauerung mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Schwefel- und Stickstoffverbindungen



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Abbildung 64: Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung mit über drei Jahre gemittelten Eintragsraten von Stickstoff



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

6.2.5.2 Critical Load Überschreitungen in Naturschutzgebieten

Besonders schützenswerte Bestandteile der Landschaft, von Fauna und Flora sind durch europäisches und / oder nationales Recht unter Schutz gestellt, darunter besonders bedeutsam die Natura 2000 Gebiete. "Natura 2000 ist ein EU-weites Netz von Schutzgebieten zur Erhaltung gefährdeter oder typischer Lebensräume und Arten. Es setzt sich zusammen aus den Schutzgebieten der Vogelschutz-Richtlinie (Richtlinie 2009/147/EG) und den Schutzgebieten der Fauna-Flora-Habitat (FFH) Richtlinie (Richtlinie 92/43/EWG). Mit derzeit über 27.000 Schutzgebieten auf fast 20 Prozent der Fläche der EU ist Natura 2000 das größte grenzüberschreitende, koordinierte Schutzgebietsnetz weltweit. Es leistet einen wichtigen Beitrag zum Schutz der biologischen Vielfalt in der EU.

In der FFH-Richtlinie werden für die Europäische Union insgesamt 231 Lebensraumtypen (Anhang I, davon 92 in Deutschland vorkommend) und rund 1000 Arten und Unterarten (Anhang II, davon 138 in Deutschland vorkommend) von gemeinschaftlichen Interesse aufgelistet, für die ein System vernetzter Schutzgebiete ... eingerichtet werden muss. Nach der Vogelschutzrichtlinie sind für 193 Arten (Anhang I, davon 110 in Deutschland vorkommend) sowie für weitere, regelmäßig auftretende Zugvogelarten besondere Schutzgebiete (special protection area, SPA) auszuweisen. In Deutschland gibt es insgesamt über 4500 FFH-Gebiete und über 740 Vogelschutzgebiete, die sich zum Teil überschneiden. Insgesamt sind über 15 Prozent der deutschen Landfläche durch Natura 2000-Schutzgebiete abgedeckt"⁸.

Weitere in Deutschland ausgewiesene geschützte Flächen sind die Naturschutzgebiete, Landschaftsschutzgebiete, Nationalparks, Biosphärenreservate und Naturparks.

Für die Auswertung hinsichtlich einer Umweltbelastung durch Luftschadstoffe wurden alle in der Datenbank enthaltenen Flächen (BfN 2015) unterteilt nach FFH-Gebieten, SPA-Gebieten (Vogelschutz) und Gebieten mit nationalem Schutzstatus (NPA-Gebiete). Bei den FFH-Gebieten müssten vom Schutzziel ausgehend die in den einzelnen Gebieten ausgewiesenen Lebensraumtypen (LRT) für die Critical Load Berechnung verwendet werden. Für diese Gebiete stehen jedoch in der bundesweiten Datenbank die LRT nur als gelistete Aufzählung zur Verfügung. Eine Verortung, wie sie für die Bestimmung der Critical Load notwendig wäre, erfolgt in der Regel nur auf der Ebene der Bundesländer oder untergeordneter Naturschutzbehörden. Daher wurde in diesem Projekt auf die Critical Load aus dem deutschen Datensatz zurückgegriffen und diese mit den ausgewiesenen Naturschutzflächen verschnitten.

Methodisch erfolgte dann die Auswertung entsprechend Mapping Manual (CLRTAP 2016) als mittlere akkumulierte (flächengewichtete) Critical Load Überschreitung (average accumulated exceedance, AAE). Dafür wird zunächst die akkumulierte Critical Load Überschreitung (AE) für ein definiertes Ökosystem i , das heißt jeweils für die Natura 2000 Gebiete, entsprechend der folgenden Formel berechnet:

$$AE = \sum_{i=1}^n A_i Ex_i$$

mit:

AE = akkumulierte Critical Load Überschreitung (eq a⁻¹)

A _{i} = definierte Fläche (ha)

Ex _{i} = Critical Load Überschreitung für das Ökosystem i (eq ha⁻¹ a⁻¹)

Die akkumulierte Critical Load Überschreitung für eine gegebene Deposition wird dabei hauptsächlich durch die Ökosystemfläche in einer Rasterzelle bestimmt und ist somit nicht direkt mit den Depositionen (eq ha⁻¹ a⁻¹) vergleichbar. Daher wird AE durch die Summe der gesamten Ökosystemfläche geteilt:

⁸ <http://www.bmub.bund.de/themen/natur-biologische-vielfalt-arten/naturschutz-biologische-vielfalt/gebietsschutz-und-vernetzung/natura-2000/>

$$AAE = AE / \sum_{i=1}^n A_i$$

wobei:

AAE = mittlere akkumulierte (flächengewichtete) Critical Load Überschreitung

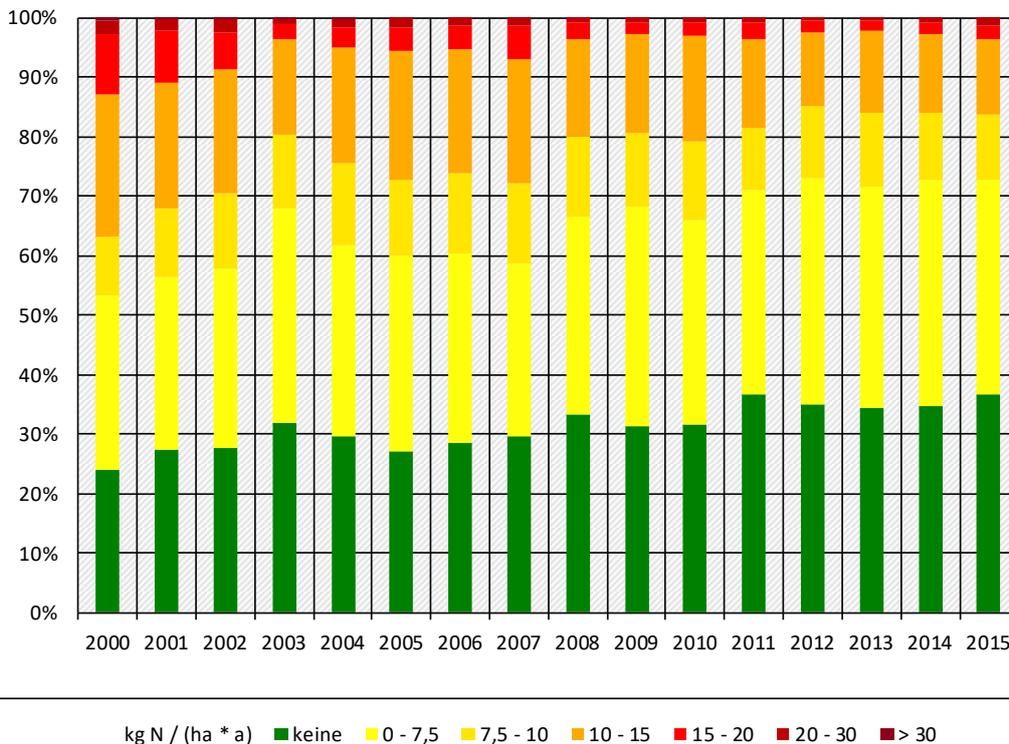
A_i = definierte Fläche

Die FFH-Gebiete sind überwiegend von dem Risiko einer Eutrophierung betroffen. Sie weisen im Jahr 2015 insgesamt eine mittlere kumulierte Exceedance (AAE) von 4,4 kg N ha⁻¹ a⁻¹ auf. Der Anteil von FFH-Gebieten ohne Critical Load Überschreitung erhöht sich von 24 % im Jahr 2000 auf gegenwärtig (2015) knapp 37 % (vgl. Abbildung 65).

Ausschließlich die Vogelschutzgebiete (SPA) betrachtet, die teilweise mit FFH-Gebieten zusammenfallen, ergibt sich ein ähnliches Bild, wobei die Entlastung von Stickstoffeinträgen in Trend etwas höher ausfällt. Der Anteil von SPA-Gebieten ohne Critical Load Überschreitung erhöht sich von 19 % im Jahr 2000 auf 30 % im Jahr 2015 (vgl. Abbildung 66).

Das gilt auch für die unter einem nationalen Schutzstatus stehenden Gebiete (NPA), bei denen sich der Anteil ohne Critical Load Überschreitung zwischen 2000 und 2015 von 19 % auf 27 % erhöht (vgl. Abbildung 67).

Abbildung 65: Überschreitung der Critical Loads für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015 in FFH-Gebieten (SAC)

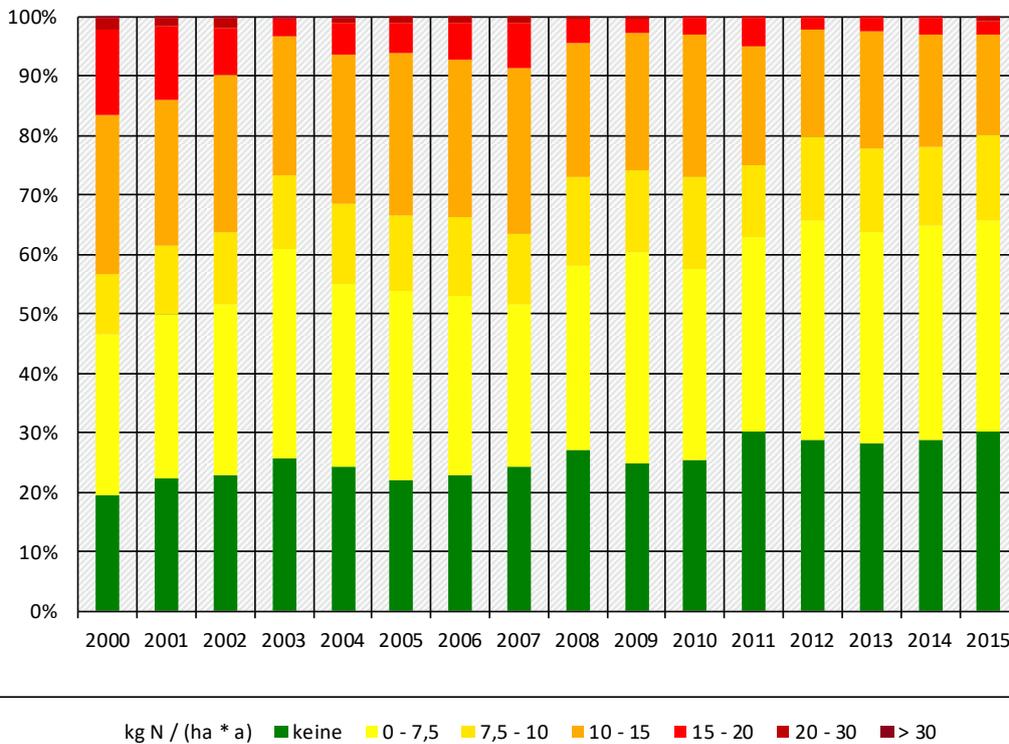


Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Tabelle 22: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha⁻¹ a⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung in FFH-Gebieten (SAC)

Jahr	Keine	>0 - 7,5	>7,5-10	>10 -15	>15 -20	>20-30	>30
2000	24,16	29,22	9,87	23,96	10	2,37	0,42
2001	27,3	29,08	11,59	21,22	8,71	1,78	0,32
2002	27,8	30,13	12,47	21,02	6,03	2,27	0,29
2003	32	36,1	12,38	15,82	2,55	0,99	0,17
2004	29,74	31,97	13,89	19,24	3,47	1,5	0,19
2005	27,24	32,87	12,72	21,59	4,03	1,47	0,08
2006	28,53	31,87	13,37	20,96	3,92	1,31	0,04
2007	29,71	29,06	13,5	20,87	5,47	1,3	0,09
2008	33,26	33,18	13,47	16,6	2,57	0,88	0,03
2009	31,45	36,77	12,52	16,33	2,14	0,75	0,02
2010	31,55	34,43	13,15	17,69	2,46	0,7	0,03
2011	36,6	34,45	10,46	14,85	2,92	0,72	0,01
2012	34,9	38,11	12,05	12,59	1,78	0,58	0
2013	34,33	37,32	12,37	13,77	1,68	0,52	0,01
2014	34,73	37,87	11,28	13,35	2,01	0,72	0,03
2015	36,59	36,17	11,1	12,42	2,42	1,23	0,08

Abbildung 66: Überschreitung der Critical Loads für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015 in Vogelschutzgebieten (SPA)

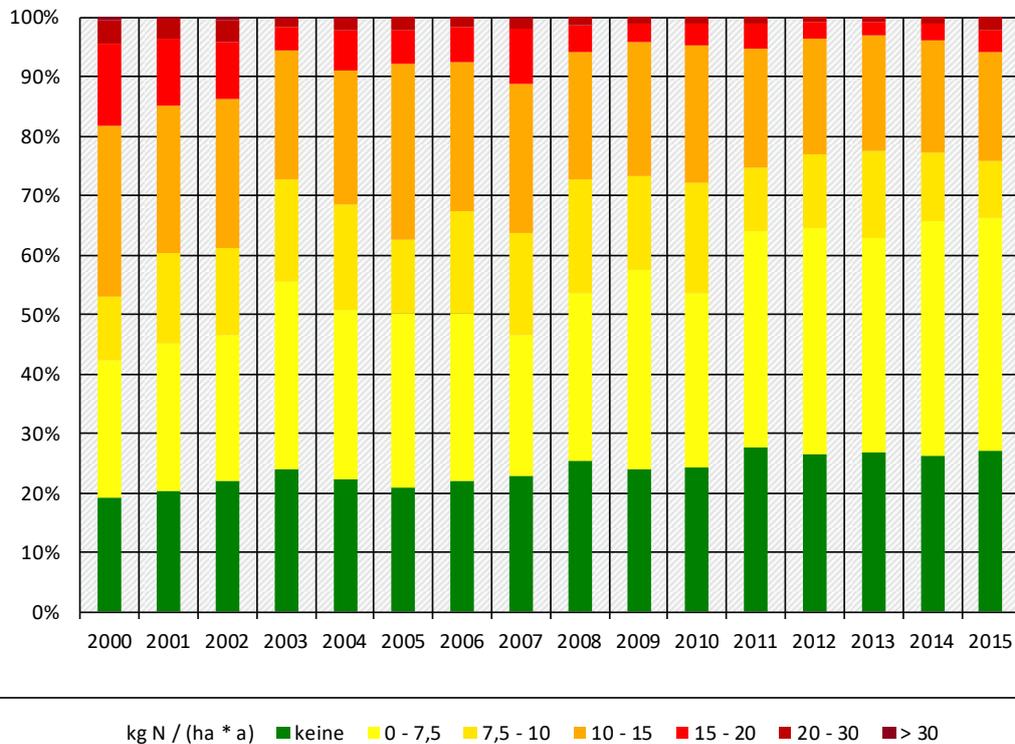


Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Tabelle 23: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in kg ha⁻¹ a⁻¹) bei den Critical Load für Eutrophierung in Vogelschutzgebieten (SPA)

Jahr	Keine	>0 - 7,5	>7,5-10	>10 -15	>15 -20	>20-30	>30
2000	19,44	27,26	10,01	26,62	14,42	2,08	0,18
2001	22,35	27,59	11,57	24,57	12,32	1,43	0,16
2002	22,87	28,74	12,16	26,45	7,89	1,7	0,19
2003	25,63	35,38	12,37	23,39	2,58	0,52	0,13
2004	24,24	30,77	13,46	25,09	5,25	1,04	0,15
2005	22,09	31,75	12,61	27,36	5,02	1,13	0,05
2006	22,98	30,09	13,3	26,47	6,2	0,95	0
2007	24,25	27,26	11,98	27,86	7,69	0,9	0,05
2008	27,28	30,77	14,89	22,56	3,92	0,57	0
2009	25	35,45	13,59	23,23	2,3	0,44	0
2010	25,4	32,06	15,64	23,83	2,74	0,33	0
2011	30,25	32,59	12,11	19,98	4,76	0,3	0
2012	28,92	36,9	14,02	17,95	1,96	0,25	0
2013	28,19	35,46	14,09	19,72	2,29	0,25	0
2014	28,7	36,16	13,26	18,73	2,77	0,38	0
2015	30,26	35,39	14,31	16,88	2,27	0,87	0,01

Abbildung 67: Überschreitung der Critical Loads für Stickstoff in den Jahren 2000 bis 2015 in unter nationalem Schutz stehenden Gebieten (NPA)



Quelle: eigene Darstellung, ÖKO-DATA Strausberg

Tabelle 24: Prozentualer Anteil der Überschreitungsklassen (in $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) bei den Critical Load für Eutrophierung in unter nationalem Schutz stehenden Gebieten (NPA)

Jahr	Keine	>0 - 7,5	>7,5-10	>10 -15	>15 -20	>20-30	>30
2000	19,37	23,01	10,69	28,76	13,74	3,86	0,58
2001	20,45	24,57	15,37	24,71	11,41	3,1	0,38
2002	21,97	24,46	14,67	25,19	9,43	3,86	0,42
2003	24,03	31,55	17,26	21,49	3,94	1,45	0,28
2004	22,34	28,39	17,7	22,55	6,71	2,05	0,26
2005	20,92	29,21	12,37	29,66	5,68	2,08	0,08
2006	22,12	28,02	17,28	25,04	5,78	1,71	0,05
2007	22,79	23,88	17,2	24,88	9,26	1,83	0,17
2008	25,39	28,35	18,97	21,52	4,4	1,34	0,03
2009	24,05	33,59	15,63	22,47	3,14	1,12	0,02
2010	24,44	29,13	18,68	23,11	3,57	1,06	0,01
2011	27,75	36,2	10,84	19,98	4,25	0,97	0,01
2012	26,56	38,12	12,4	19,33	2,78	0,82	0
2013	26,96	35,89	14,82	19,27	2,34	0,73	0
2014	26,37	39,37	11,42	18,93	2,92	0,98	0,01
2015	27,27	38,95	9,59	18,18	3,68	2,22	0,1

Für alle Gebiete insgesamt bleibt ein hohes Risiko von schädigenden Veränderungen durch die zu hohen Stickstoffeinträge bestehen, das bis zum Jahr 2030 deutlich vermindert werden soll.

7 Schlussfolgerungen

Das Hauptergebnis dieser Studie ist eine konsistente Datenreihe für die Periode 2000-2015 sowohl von Depositionsmengen als der Bewertung der Einhaltung ökologischer Belastungsgrenzen.

Die Stickstoff-Gesamtdeposition im Zeitraum 2000 bis 2015 über Deutschland ist von etwas mehr als $1300 \text{ eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ im Jahr 2000 auf etwas über $1050 \text{ eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ im Jahr 2015 zurückgegangen. Den größten Anteil an dieser Abnahme hat NO_y mit einem Rückgang von mehr als $200 \text{ eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ über den Gesamtzeitraum, während sich die NH_x -Deposition um lediglich $25 \text{ eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ verringerte. Die NO_y -Deposition setzt sich über den gesamten Erfassungszeitraum hinweg aus zwei Drittel Nass- und einem Drittel Trockendeposition zusammen, während die Trockendeposition bei NH_x zwischen 43 und 50 Prozent beträgt.

Die Gesamtdeposition von N auf Nadelwald beträgt im Mittel über Deutschland $1304 \text{ eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ während die Gesamtdeposition von Schwefel (S_{nss}) im Mittel $238 \text{ eq ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ beträgt. Die Maxima der Stickstoff-Gesamtdeposition liegen im Nordwesten und Südosten des Landes, da diese Regionen landwirtschaftlich am intensivsten bewirtschaftet sind. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass die Depositionen von oxidiertem und reduziertem Stickstoff voneinander abweichende Verteilungen über Deutschland aufweisen. Oxidierter Stickstoff trägt in nicht landwirtschaftlich genutzten Regionen einen großen Beitrag zur Stickstoff-Gesamtdeposition bei und

bedingt in Regionen wie zum Beispiel dem Schwarzwald über die Hälfte der Stickstoff-Gesamtdeposition. Die Schwefel-Gesamtdeposition weist die höchsten Werte im Ruhrgebiet auf. Sekundäre Maxima zeigen sich in den Mittelgebirgen. Die Einträge in Waldbestände sind etwa 25-50% höher als die in Wasserflächen, was durch die Rauigkeitslänge bedingt wird.

Die Basischen Kationen Natrium (Na^+) und Magnesium (Mg^+), deren Hauptquelle Seesalz ist, weisen Depositionsmaxima an der Nordseeküste auf. Die Verteilung der Deposition von Kalium weist ein eher anthropogen geprägtes Muster auf, mit maximalen Werten in Regionen mit den höchsten Niederschlägen. Kalzium stammt sowohl aus anthropogenen Quellen als auch aus Seesalz. Daher weist die Deposition von Kalzium sowohl in den Mittelgebirgen als auch in Küstenregionen Maxima auf.

Zwischen dem für dieses Projekt verwendeten Modell LOTOS-EUROS v2.1 und dem für das PINETI-2-Projekt genutzten Modell LOTOS-EUROS v1.10 gibt es einige Unterschiede in der Betrachtung der Bewuchshöhe für Ackerland im Winter, der Berechnung der *atmosphärische Stabilität* und der Auflösung der *meteorologischen Daten*. Zudem wurde in PINETI-3 für Deutschland anstelle des PAREST-Datensatzes der GRETA-Datensatz verwendet. Der Europäische Emissionsdatensatz wurde auf den neueren Stand des TNO-MACC-III-Datensatzes gebracht. Diese unterscheiden sich sowohl in Bezug auf die Gesamtemissionswerte als auch auf die geografische Verteilung.

In jenen Regionen in der Nordhälfte Deutschlands, in denen viel Landwirtschaft betrieben wird, erhöht sich die NH_x -Deposition um 30 bis 50 Prozent, während die Deposition an einigen anderen Orten um 20 Prozent geringer ausfällt. Dies ist eine Folge der Veränderungen in den geografischen Emissionsmustern. Die Unterschiede in der Modellierung zwischen PINETI-2 und PINETI-3 werden durch die Einbeziehung der Messungen für die nasse Deposition teilweise ausgeglichen, die wesentlichen Muster haben jedoch Bestand. Im PINETI-3-Gesamtergebnis fallen die Depositionswerte für Nadelwälder höher aus als bei PINETI-2; davon ausgenommen sind örtlich begrenzte Flächen und die Grenzregion Hessen/Baden-Württemberg/Bayern. In Bezug auf NO_y sind die Unterschiede klein; in den Gebieten mit hoher NO_x -Emission kommt es jedoch zu einer stärkeren Deposition. Insgesamt ergibt sich dadurch ein Anstieg der NH_x -Deposition in der Nordosthälfte des Landes sowie im Süden, während die NH_x -Gesamtdeposition im Rest des Landes abnimmt. Die neuen Zahlen zeigen, dass sich der Kontrast zwischen den Landnutzungsklassen Nadelwald und Ackerland verstärkt hat.

In Bezug auf NO_2 und NH_3 ist deutlich, dass die neue Modellierung die Übereinstimmung mit dem räumliche und zeitliche Variabilität in die Messzeitreihen deutlich gesteigert hat. Die modellierte Regenwasserkonzentration von Ammonium beim Wechsel vom PINETI-2- zum PINETI-3-Rechenverfahren besser mit die Messwerte übereinstimmt. Die Umstellung auf eine aktualisierte Grundlage für die Emissionsdaten hat hier einen großen Unterschied gemacht. Für den hier dargestellten Vergleich zu Kronenraumbilanzen wurden KRB-Daten des Thünen-Instituts für 94 Standorten in den Jahren 2000 bis 2015 verwendet. Aus dem Vergleich geht hervor, dass die PINETI-3-Daten im Großen und Ganzen gut mit den KRB-Daten übereinstimmen. Die räumliche Korrelation ist besser als im Vorgängerprojekt PINETI-2.

Schon vor dem PINETI-3-Projekt hat es eine Vielzahl anderer Forschungsvorhaben zur Bestimmung der Stickstoffdeposition über Deutschland gegeben. Der Vergleich zeigt deutlich, dass die Unterschiede zwischen früheren Studien vor allem Methodisch bedingt waren. Die PINETI-3-Ergebnisse liegen über denen von PINETI-2 liegen, jedoch niedriger sind als die PINETI- und MAPESI-Ergebnisse. Die PINETI-3-Zeitreihe fügt sich sehr gut in die EMEP-Berechnungen aus dem Jahr 2013, unterschreitet jedoch die EMEP-Berechnung von 2016. Der Minderbefund im Vergleich zu EMEP lässt sich vor allem durch ein ungefähr 30 Prozent niedriger aus Deposition von NO_y erklären. In Bezug auf NH_x liegen die Werte des EMEP-Modells sehr nah zu der mit PINETI-3 berechneten Deposition.

Zur Überprüfung der Einhaltung ökologischer Belastungsgrenzen wurden Depositionen aus den Jahren 2000 bis 2015 für ganz Deutschland ausgewertet. Einträge von Luftschadstoffen, die den Critical

Load überschreiten, werden als Critical Load Exceedance bezeichnet. Dabei wurde zwischen der Bewertung von Säureeinträgen und der für eutrophierenden Stickstoff unterschieden.

Die Einhaltung oder Überschreitung des Critical Loads wird als ein Indikator für die Belastung der Ökosysteme durch Luftschadstoffe gesehen. Critical Load-Überschreitungen (Exceedance) werden als Jahreswerte kartiert sowie im zeitlichen Trend dargestellt. Dabei werden dem vorhandenen Ökosystem (Rezeptor) die diesem Landnutzungstyp entsprechenden Depositionswerte zugeordnet.

Noch Anfang der 90er Jahre des letzten Jahrhunderts litten in Deutschland über 85 % aller Ökosysteme unter zu hohen Säurebelastungen. Aufgrund der erfolgreichen nationalen wie internationalen Luftreinhaltepolitik hat sich dieses Bild umgekehrt, sodass aktuell (2015) bereits bei knapp 70 % der Ökosysteme die Critical Loads eingehalten sind. Bei den weiterhin von einer Critical Load-Überschreitung betroffenen 30 % der Rezeptorflächen ist jedoch zukünftig die Verminderung von Säureeinträgen geboten.

Im zeitlichen Verlauf der Jahre 2000 bis 2015 betrachtet ist der Anteil hoher ($750 - 1000 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) bis sehr hoher Säurebelastung ($> 1000 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) ständig gesunken, während gleichzeitig der Anteil von nicht oder gering belasteten (bis $250 \text{ eq ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) stieg.

Die Ergebnisse dieses Projektes zeigen, dass der Zielstellung der Nationalen Strategie zur biologischen Vielfalt (NBS), nach der bis zum Jahr 2020 alle Critical Loads eingehalten werden sollen (BMU 2007 und BMUB 2015), nahe gekommen werden kann. Anzumerken ist jedoch auch, dass die in vergangenen Jahrzehnten eingetragene Säurefracht durchaus noch wirksam ist und eine Erholung der Ökosysteme von dieser Belastung längere Zeiträume erfordert. Auch zeichnet sich ab, dass zukünftig die Einbeziehung des Schutzgutes Biodiversität in die Critical Load-Berechnung die Empfindlichkeit von Ökosystemen gegenüber Säureeinträgen erhöhen kann.

Auch die fast flächendeckende Überschreitung der Critical Load für Eutrophierung zu Beginn der 90er Jahre in Deutschland war sehr bedenklich. Im nationalen Statusreport an das europäische Koordinierungszentrum für das ICP Modelling & Mapping konnte nur für knapp 5 % der Ökosysteme eine Einhaltung der ökologischen Belastungsgrenzen (Bezugsjahr 1993) vermeldet werden (Gregor et al. 1997). Anders als bei der Säurebelastung sind Fortschritte bei der Verminderung von Stickstoffeinträgen allerdings nur sehr moderat verlaufen, sodass im Jahr 2015 nur bei etwa 32 % der Fläche der Critical Load nicht überschritten wurde. Somit ist die Zielstellung aus der Nationalen Strategie zur biologischen Vielfalt (NBS), die für das Jahr 2020 die Einhaltung der Critical Loads fordert (BMU 2007 und BMUB 2015), nicht mehr realistisch. Daher hat die Bundesregierung in der Nachhaltigkeitsstrategie 2016 als Ziel angegeben, ab dem Jahr 2030 den Flächenanteil der Ökosystemflächen Einträge oberhalb der Critical Load um 35 Prozent gegenüber 2005 zu senken (Bundesregierung 2016). In Bezug auf die Ergebnisse dieses Projekts darf der Anteil der Flächen oberhalb der Critical Loads dann nur noch 50 % betragen.

Die Reduzierung der Stickstoffeinträge bleibt ein dringendes Problem (SRU 2015). Da zukünftig auch der Erhalt der Biodiversität als ein Schutzgut betrachtet werden soll, kann sich die Empfindlichkeit der Ökosysteme gegenüber Stickstoffeinträgen noch erhöhen und dadurch der Anteil von Flächen geringer werden, auf denen die Critical Loads eingehalten werden.

Zur Abschätzung der Minderungserfordernisse für die Stickstoffeinträge wurde die Stickstofffracht, die auf die etwa 31 % der Landfläche Deutschlands mit ökologischen Belastungsgrenzen entfällt, berechnet. Im Jahr 2015 betrug diese 170 Kilotonnen, wobei 67 Kilotonnen über dem Critical Load lagen. Demnach wäre es notwendig, in Deutschland insgesamt die Stickstoffeinträge um 318 kt N zu senken, um die Critical Loads nicht mehr mit den ausgewiesenen 67 kt N zu überschreiten.

Im nationalen Rahmen wie auch für Europa insgesamt wird die Effizienz von Maßnahmen zur Luftreinhaltung vorrangig an den dabei erzielten positiven Wirkungen zu bemessen sein. Als ein Indikator

für die Luftreinhaltung steht dabei die Einhaltung der Critical Load. So benennen sowohl die Nationale Strategie zur biologischen Vielfalt (BMU 2007, BMUB 2015) als auch die Deutsche Nachhaltigkeitsstrategie (Bundesregierung 2016) die Einhaltung der ökologischen Belastungsgrenzen als ein zu erreichendes Ziel.

Die als Jahreswerte ermittelten Eintragsraten von Luftschadstoffen weisen natürlich eine enge Verflechtung mit dem meteorologischen Jahresverlauf auf und die unter Verwendung dieser ermittelten Critical Load Überschreitungen reagieren daher teilweise sehr empfindlich auf interannuelle Variationen. Vor diesem Hintergrund und auch unter Berücksichtigung der bestehenden Unsicherheiten bei der Depositionsmodellierung wurden daher auch Möglichkeiten untersucht, den Indikator um robustere Größen (z.B. die mittlere Überschreitung) zu ergänzen.

Um jahresbezogene meteorologische Unterschiede zu nivellieren erfolgte eine Mittelung der Depositionswerte zu drei- und fünfjährigen Durchschnittswerten. Mit diesen konnte die Einhaltung oder Überschreitung der Critical Load bestimmt werden. Dabei zeigt sich, dass die in der Auswertung einzelner Jahre noch zu verzeichnenden Unterschiede von bis zu 5 Prozentpunkten, die nicht ursächlich auf Maßnahmen zur Luftreinhaltung zurückgeführt werden können, aufgefangen werden und tatsächliche Trends der Umweltentlastung besser zur Geltung kommen. Für die Darstellung der zeitlichen Entwicklung wird daher das Mittel über einen Zeitraum von drei Jahren empfohlen.

Die FFH-Gebiete sind überwiegend von dem Risiko einer Eutrophierung betroffen. Sie weisen im Jahr 2015 insgesamt eine mittlere kumulierte Exceedance (AAE) von $4,4 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ auf. Der Anteil von FFH-Gebieten ohne Critical Load Überschreitung erhöht sich von 24 % im Jahr 2000 auf gegenwärtig (2015) knapp 37 %. Ausschließlich die Vogelschutzgebiete (SPA) betrachtet, die teilweise mit FFH-Gebieten zusammenfallen, ergibt sich ein ähnliches Bild, wobei die Entlastung von Stickstoffeinträgen in Trend etwas höher ausfällt. Der Anteil von SPA-Gebieten ohne Critical Load Überschreitung erhöht sich von 19 % im Jahr 2000 auf 30 % im Jahr 2015. Das gilt auch für die unter einem nationalen Schutzstatus stehenden Gebiete (NPA), bei denen sich der Anteil ohne Critical Load Überschreitung zwischen 2000 und 2015 von 19 % auf 27 % erhöht.

Für alle Gebiete insgesamt bleibt ein hohes Risiko von schädigenden Veränderungen durch die zu hohen Stickstoffeinträge bestehen, das bis zum Jahr 2030 deutlich vermindert werden soll.

8 Quellenverzeichnis

Amann, M., Bertok, I., Borken-Kleefeld, J., Cofala, J., Heyes, C., Höglund-Isaksson, L., Klimont, Z., Nguyen, B., Posch, M., Rafaj, P., Sandler, R., Schöpp, W., Wagner, F., Winiwarter, W. (2011), Cost-effective control of air quality and greenhouse gases in Europe: Modeling and policy applications, *Environmental Modelling and Software*, 26 (12), pp. 1489-1501

Banzhaf, S., Schaap, M., Kerschbaumer, A., Reimer, E., Stern, R., van der Swaluw, E. and Builtjes, P. (2012): Implementation and evaluation of pH-dependent cloud chemistry and wet deposition in the chemical transport model REM-Calgrid. *Atmospheric Environment* 49, 378-390.

Beltman, J. B., Hendriks, C., Tum, M., & Schaap, M. (2013). The impact of large scale biomass production on ozone air pollution in Europe. *Atmospheric Environment*, 71, 352-363.

BfN (Bundesamt für Naturschutz) (2015): Natura 2000-Daten, elektronisch übermittelt am 04.05.2016

Bleeker, A., Draaijers, G.P. J., Klap, J. M. and Van Jaarsveld, J. A., 2000. Deposition of Acidifying Components and Base Cations in the Period 1987-1995 in Germany. Study on Behalf and for the Account of Umweltbundesamt, Berlin (FE. Nr. 108 03 081). National Institute of Public Health and the Environment (RIVM). Bilthoven. Report No. 722108027, Bilthoven, the Netherlands. 124 pp.

BMVBS (Bundesministerium für Verkehr, Bauwesen und Städtebau) (2013): Untersuchung und Bewertung von straßenverkehrsbedingten Nährstoffeinträgen in empfindliche Biotope. Endbericht zum FE-Vorhaben 84.0102/2009 im Auftrag der Bundesanstalt für Straßenwesen, verfasst von Balla, S., Uhl, R., Schlutow, A., Lorentz, H., Förster, M., Becker, C., Scheuschner, T., Kiebel, A., Herzog, W., Düring, I., Lüttmann, J., Müller-Pfannenstiel, K. in: *Forschung Straßenbau und Straßenverkehrstechnik*, Heft 1099, BMVBS Abteilung Straßenbau, Bonn. 362 S.

BMU (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit) (2007): Nationale Strategie zur Biologischen Vielfalt (vom Bundeskabinett am 07.11.2007 beschlossen), Oktober 2007

BMUB (Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit) (2015): *Naturschutz-Offensive 2020. Für biologische Vielfalt*, Oktober 2015. Priorisierte Ziele der NBS, S. 13

Bobbink, R., Hicks, K., Galloway, J., Spranger, T., Alkemade, R., Ashmore, M., De Vries, W. (2010). Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: A synthesis. *Ecological Applications*, 20(1), 30–59. <https://doi.org/10.1890/08-1140.1>

Builtjes, P.J.H., Hendriks, E., Koenen, M., Schaap, M., Banzhaf, S., Kerschbaumer, A., Gauger, T., Nagel, H.-D., Scheuschner, T., Schlutow, A., 2011. Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland (in German). MAPESI-Project: Modeling of Air Pollutants and Ecosystem Impact. UBA Bericht zu BMU/UBA FE-Nr. 3707 64 200; Texte 38/2011; ISSN 1862-4804; Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau, 2011.

Bundesregierung (2016): *Deutsche Nachhaltigkeitsstrategie 2016*, Die Bundesregierung (Hrsg.), Stand 01.10.2016, Kabinettsbeschluss vom 11.01.2017, online unter www.deutsche-nachhaltigkeitsstrategie.de

CCE (2017): *European critical loads: database, biodiversity and ecosystems at risk*, CCE Final Report 2017, Coordination Centre for Effects, RIVM Report 2017-0155, Bilthoven, Netherlands

Clarisse, L. et al., 2009. Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations. *Nature Geoscience*, 2(7), pp.479–483. Available at: <http://dx.doi.org/10.1038/ngeo551>

CLRTAP (2015): *Exceedance calculations*, Chapter VII of Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping critical loads and levels and air pollution effects, risks and trends. UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution; accessed on 04.05.2017 on Web at www.icpmapping.org (last update 16.02.2015)

CLRTAP (2016): Mapping critical loads for ecosystems, Chapter V of Manual on methodologies and criteria for modelling and mapping critical loads and levels and air pollution effects, risks and trends. UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution; accessed on 04.05.2017 on Web at www.icpmapping.org (last update 13.01.2017)

Curier, R. L., Timmermans, R., Calabretta-Jongen, S., Eskes, H., Segers, A., Swart, D. and Schaap, M.: Improving ozone forecasts over Europe by synergistic use of the LOTOS-EUROS chemical transport model and in-situ measurements, *Atmos. Environ.*, 60, 217–226, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.06.017, 2012.

Curier, R.L., Kranenburg, R., Segers, A.J.S., Timmermans, R.M.A., Schaap, M. (2014), Synergistic use of OMI NO₂ tropospheric columns and LOTOS-EUROS to evaluate the NO_x emission trends across Europe, *Remote Sensing of Environment*, 149, pp. 58-69.

De Vries, W (2001): Intensive Monitoring of Forest Ecosystems in Europe (ICPF TR 2001).

de Vries, W., Hettelingh, J.-P., Posch, M. (Eds.) (2015): Critical Loads and Dynamic Risk Assessments Nitrogen, Acidity and Metals in Terrestrial and Aquatic Ecosystems. 662 pp. Springer, 2015. ISBN: 9789401795074.

Draaijers, G. P. J., Van Leeuwen, E.P., de Jong, P.G.H., Erisman, J.W., 1996. Deposition of base-cations in Europe and its role in acid neutralization and forest nutrition. RIVM Report 722108017, Bilthoven, the Netherlands. 79 pp.

EEA (2016), EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook 2016: Technical guidance to prepare national emission inventories, EEA Report No 21/2016, EEA, Copenhagen, Denmark

EMEP, 1996: EMEP manual for sampling and chemical analysis, EMEP/CCC-Report 1/95, Norwegian Institute for Air Research, Kjeller, Norway.

EU (2016): RICHTLINIE (EU) 2016/2284 DES EUROPÄISCHEN PARLAMENTS UND DES RATES vom 14. Dezember 2016 über die Reduktion der nationalen Emissionen bestimmter Luftschadstoffe, zur Änderung der Richtlinie 2003/35/EG und zur Aufhebung der Richtlinie 2001/81/EG

Fagerli et al. (2017), EMEP status report 2017, Transboundary particulate matter, photo-oxidants, acidifying and eutrophying components, Joint MSC-W & CCC & CEIP Report, http://emep.int/publ/reports/2017/EMEP_Status_Report_1_2017.pdf

Fountoukis, C. and Nenes, A.: ISORROPIA II (2007): a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, NH₄⁺, Na⁺, SO₄²⁻, NO₃⁻, Cl⁻, H₂O aerosols. *Atmos. Chem. and Phys.*, 7, 4639-4659.

Gauger Th, Köble R, Anshelm F (2000) Kritische Luftschadstoff-Konzentrationen und Eintragsraten sowie ihre Überschreitung für Wald- und Agrarökosysteme sowie naturnahe waldfreie Ökosysteme. Teil 1: Deposition Loads. Teil 2: Critical Levels. Forschungsvorhaben im Auftrag des BMU/UBA, FENr. 297 85 079. Institut für Navigation, Universität Stuttgart. [http://www.nav.uni-stuttgart.de/navigation/forschung/critical_loads/INS_UBA29785079_1.pdf]

Gauger Th, Haenel HD, Rösemann C, Dämmgen U, Bleeker A, Erisman JW, Vermeulen AT, Schaap M, Timmermanns RMA, Bultjes PJH, Duyzer JH (2008) National Implementation of the UNECE Convention on Long-range Transboundary Air Pollution (Effects) / Nationale Umsetzung UNECE Luftreinhaltekonvention (Wirkungen): Part 1: Deposition Loads: Methods, modelling and mapping results, trends. BMU/UBA FE-Nr. 204 63 252. UBA-Texte 38/08 (1). ISSN 1862-4804. Teil 2: Wirkungen und Risikoabschätzungen: Critical Loads, Biodiversität, Dynamische Modellierung, Critical Levels Überschreitungen, Materialkorrosion. BMU/UBA 204 63 252.

Geupel, M. and Frommer, J.: Reactive Nitrogen in Germany - Causes and effects - measures and recommendations., Dessau., 2015

- Gregor, H. D., Werner, B., Nagel, H.-D. (1997): National Focal Center Report Germany, in: Calculation and Mapping of Critical Thresholds in Europe, Status Report 1997, Coordination Center for Effects, RIVM Report No. 259101007, Bilthoven, Netherlands
- Grubbs, F.: Procedures for Detecting Outlying Observations in Samples, *Technometrics*, 11, 1–21, 1969.
- Hendriks, C., Kranenburg, R., Kuenen, J., van Gijlswijk, R., Wichink Kruit, R., Segers, A., Denier van der Gon, H. and Schaap, M.: The origin of ambient particulate matter concentrations in the Netherlands, *Atmos. Environ.*, 69, 289–303, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.12.017, 2013.
- Hendriks, C., Kranenburg, R., Kuenen, J. J. P., Van den Bril, B., Verguts, V. and Schaap, M.: Ammonia emission time profiles based on manure transport data improve ammonia modelling across north western Europe, *Atmos. Environ.*, 131, 83–96, doi:10.1016/j.atmosenv.2016.01.043, 2016.
- Hudman, R.C., Moore, N.E., Mebust, A.K., Martin, R.V., Russell, A.R., Valin, L.C. & Cohen, R.C. 2012, "Steps towards a mechanistic model of global soil nitric oxide emissions: implementation and space based-constraints", *Atmospheric Chemistry and Physics*, vol. 12, no. 16, pp. 7779-7795
- Hurkuck, M., Brümmer, C., Mohr, K., Grünhage, L., Flessa, H., Kutsch, W.L. (2014): Determination of atmospheric nitrogen deposition to a semi-natural peat bog site in an intensively managed agricultural landscape, *Atmospheric Environment*, 97, pp. 296-309
- Im, U., Bianconi, R., Solazzo, E., Kioutsioukis, I., Badia, A., Balzarini, A., Baró, R., Bellasio, R., Brunner, D., Chemel, C., Curci, G., Denier van der Gon, H., Flemming, J., Forkel, R., Giordano, L., Jiménez-Guerrero, P., Hirtl, M., Hodzic, A., Honzak, L., Jorba, O., Knote, C., Makar, P.A., Manders-Groot, A., Neal, L., Pérez, J.L., Pirovano, G., Pouliot, G., San Jose, R., Savage, N., Schroder, W., Sokhi, R.S., Syrakov, D., Torian, A., Tuccella, P., Wang, K., Werhahn, J., Wolke, R., Zabkar, R., Zhang, Y., Zhang, J., Hogrefe, C., Galmarini, S., 2015. Evaluation of operational online-coupled regional air quality models over Europe and North America in the context of AQMEII phase 2. Part II: Particulate matter, *Atmospheric Environment*, 115, pp. 421-441
- Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., Keating, T., Zhang, Q., Kurokawa, J., Wankmüller, R., Denier Van Der Gon, H., Kuenen, J.J.P., Klimont, Z., Frost, G., Darras, S., Koffi, B., Li, M. (2015), HTAP-v2.2: A mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15 (19), pp. 11411-11432
- Jörß, W., Kugler, U. and Theloke, J.: Emissionen im PAREST Referenzszenario 2005-2020, Dessau, 2010.
- Katata, G., H. Nagai, T. Wrzesinsky, O. Klemm, W. Eugster, and R. Burkard, 2008. Development of a land surface model including cloud water deposition on vegetation, *J. Appl. Meteorol. Climatol.*, 47, 2129–2146, doi:10.1175/2008JAMC1758.1.
- Katata, G., Kajino, M., Hiraki, T., Aikawa, M., Kobayashi, T., Nagai, H., 2011. A method for simple and accurate estimation of fog deposition in a mountain forest using a meteorological model. *Journal of Geophysical Research*, Vol. 116, No. D20, doi:10.1029/2010JD015552.
- Klemm, O. and Wrzesinsky, T.: Fog deposition fluxes of water and ions to a mountainous site in Central Europe, *Tellus, Ser. B Chem. Phys. Meteorol.*, 59(4), doi:10.1111/j.1600-0889.2007.00287.x, 2007.
- Kuenen, J.J.P., Visschedijk, A.J.H., Jozwicka, M., Denier Van Der Gon, H.A.C. (2014): TNO-MACC-II emission inventory; A multi-year (2003-2009) consistent high-resolution European emission inventory for air quality modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14 (20), pp. 10963-10976.

- Maas, R., Grennfelt, P. (eds.) 2016: Towards Cleaner Air, Scientific Assessment Report 2016. EMEP Steering Body and Working Group on Effects of the Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution, Oslo
- Manders, A. M. M., Schaap, M. and Hoogerbrugge, R.: Testing the capability of the chemistry transport model LOTOS-EUROS to forecast PM10 levels in the Netherlands, *Atmos. Environ.*, 43(26), 4050–4059, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.05.006, 2009.
- Manders, A. M. M., Schaap, M., Querol, X., Albert, M. F. M. A., Vercauteren, J., Kuhlbusch, T. A. J., et al. (2010). Sea salt concentrations across the European continent. *Atmospheric Environment*, 44(20), 2434-2442
- Mohr, C.: Emsland: Erfassung der Stickstoffbelastungen aus der Tierhaltung zur Erarbeitung innovativer Lösungsansätze für eine zukunftsfähige Landwirtschaft bei gleichzeitigem Schutz der sensiblen Moorlandschaft (ERNST), Emsland., 2013.
- Müller-Westermeier, G. (1995): Numerisches Verfahren zu Erstellung klimatologischer Karten, Berichte des Deutschen Wetterdienstes Nr. 193, Deutsche Wetterdienst, Offenbach am Main, Deutschland
- Nagel, H.-D., Smiatek, G., Werner, B. (1994): Das Konzept der kritischen Eintragsraten als Möglichkeit zur Bestimmung von Umweltbelastungs- und qualitätskriterien - Critical Loads & Critical Levels, Materialien zur Umweltforschung des Sachverständigenrats für Umweltfragen, Verlag Metzler-Poeschel Stuttgart, August 1994, ISBN 3-8246-0372-1
- Nilsson, J., Grennfelt, P. (1988): Critical loads for sulphur and nitrogen. Nordic council of Ministers, Report from a workshop held at Skokloster, Sweden, 19-24 March 1988, Miljorapport 15. 418 pp.
- Rauthe, M., H. Steiner, U. Riediger, A. Mazurkiewicz and A. Gratzki, 2013: A Central European precipitation climatology – Part I: Generation and validation of a high-resolution gridded daily data set (HYRAS), Vol. 22(3), p 235–256, DOI:10.1127/0941-2948/2013/0436.
- Schaap, M., van Loon, M., ten Brink, H. M., Dentener, F. J. and Builtjes, P. J. H.: Secondary inorganic aerosol simulations for Europe with special attention to nitrate, *Atmos. Chem. Phys.*, 4(3), 857–874, 2004.
- Schaap, M., Otjes, R. P. and Weijers, E. P.: Illustrating the benefit of using hourly monitoring data on secondary inorganic aerosol and its precursors for model evaluation, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(21), 11041–11053, doi:10.5194/acp-11-11041-2011, 2011
- Schaap, M., Kranenburg, R., Curier, L., Jozwicka, M., Dammers, E., Timmermans, R., 2013. Assessing the sensitivity of the OMI-NO2 product to emission changes across Europe. *Remote Sensing* 5, 4187-4208.
- Schaap, M., Wichink Kruit, R., Banzhaf, S., Scheuschner, T., Hendriks, C., Kranenburg, R., Segers A., Builtjes, P. (2015): Atmospheric deposition to German natural and semi-natural ecosystems during 2009. Report to PINETI II Project (Project No. FKZ 371263240-1), Umweltbundesamt, Dessau.
- Schaap, M., Wichink Kruit, R., Hendriks, C., Kranenburg, R., Segers, A. and Builtjes, P.: Modelling and assessment of acidifying and eutrophying atmospheric deposition to terrestrial ecosystems (PINETI-2); Part I: Atmospheric deposition to German natural and semi-natural ecosystems during 2009, 2010 and 2011, UBA-Texte, 62-2017, 1–98 [online] Available from: <https://www.umweltbundesamt.de/publikationen/modelling-assessment-of-acidifying-eutrophying>, 2017
- Schlutow, A., Nagel, H.-D., Bouwer, Y. (2017): Bereitstellung der Critical Load Daten für den Call for Data 2015-2017 des Coordination Centre for Effects im Rahmen der Berichtspflichten Deutschlands für die Konvention über weitreichende grenzüberschreitende Luftverunreinigungen (CLRTAP), Abschlussbericht zum UBA-Projekt 80075, UBA-Texte 2017
- Schneider, C., Pelzer, M., Toenges-Schuller, N., Nacken, M., Niederau, A. (2016), ArcGIS basierte Lösung zur detaillierten, deutschlandweiten Verteilung (Gridding) nationaler Emissionsjahreswerte auf Basis

des Inventars zur Emissionsberichterstattung, Abschlussbericht zum UBA-Projekt FKZ 3712 63 240 2, UBA-Texte 71-2016, UBA, Dessau, Deutschland

Shephard, M. W. and Cady-Pereira, K. E.: Cross-track Infrared Sounder (CrIS) satellite observations of tropospheric ammonia, *Atmos. Meas. Techn.*, 8, 1323–1336, doi:10.5194/amt-8-1323-2015, <http://www.atmos-meas-tech.net/8/1323/2015/>, 2015.

Skjøth, C.A., Geels, C., Berge, H. et al.. 2011. Spatial and temporal variations in ammonia emissions: a freely accessible model code for Europe. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11 (11), 5221-5236

SRU (Sachverständigenrat für Umweltfragen) (1994): Für eine dauerhaft-umweltgerechte Entwicklung. Umweltgutachten 1994 des Rats von Sachverständigen für Umweltfragen, Verlag Metzler-Poeschel Stuttgart, Februar 1994, ISBN 3-8246-0366-7

SRU (Sachverständigenrat für Umweltfragen) (2015): Stickstoff: Lösungsstrategien für ein drängendes Umweltproblem, Erich Schmidt Verlag Berlin 2015, ISBN 978-3-503-16300-7

Thiruchittampalam, Balendra, Renate Köble, Jochen Theloke, Ulrike Kugler, Melinda Uzbasich, und Tatjana Geftler (2010): Berechnung von räumlich hochaufgelösten Emissionen für Deutschland. Satelliten Bericht des F&E-Vorhabens „Strategien zur Verminderung der Feinstaubbelastung - PAREST“ (UFOPLAN FKZ 206 43 200/01), <http://www.umweltbundesamt.de/publikationen/berechnung-von-raeumlich-hochaufgeloesten>

UBA (Umweltbundesamt) (2004): Manual on methodologies and criteria for Modelling and Mapping Critical Loads & Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends. UBA-Texte 52/04

UBA, 2004: Qualitätssicherungs-Handbuch des UBA-Messnetzes (in German), UBA Texte 28/04, (Federal Environmental Agency), Dr. Klaus Nienerowski, Umweltbundesamt, Berlin, Germany.

UBA (Umweltbundesamt) (2014): Nationale Trendtabellen für die deutsche Berichterstattung atmosphärischer Emissionen 1990-2012. http://cdr.eionet.europa.eu/de/un/UNECE_CLRTAP_DE

UBA (Umweltbundesamt) (2016): Nationale Trendtabellen für die deutsche Berichterstattung atmosphärischer Emissionen 1990-2014. http://cdr.eionet.europa.eu/de/un/UNECE_CLRTAP_DE

UBA (Umweltbundesamt) (2017): Nationale Trendtabellen für die deutsche Berichterstattung atmosphärischer Emissionen 1990-2015. http://cdr.eionet.europa.eu/de/un/UNECE_CLRTAP_DE

Van Zanten, M.C., Sauter, F.J., Wichink Kruit, R.J., Van Jaarsveld, J.A., Van Pul, W.A.J. (2010): Description of the DEPAC module: Dry deposition modelling with DEPAC GCN2010, RIVM Report 680180001/2010.

Van Damme, M., Wichink Kruit, R. J., Schaap, M., Clarisse, L., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Dammers, E., Dolman, A. J. and Erisman, J. W.: Evaluating 4 years of atmospheric ammonia (NH₃) over Europe using IASI satellite observations and LOTOS-EUROS model results, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 119(15), 9549–9566, doi:10.1002/2014JD021911, 2014.

Van Damme, M. et al., 2014. Global distributions, time series and error characterization of atmospheric ammonia (NH₃) from IASI satellite observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(6), pp.2905–2922. Available at: <http://dx.doi.org/10.5194/acp-14-2905-2014>.

Vautard, R., Schaap, M., Bergström, R., Bessagnet, B., Brandt, J., Bultjes, P.J.H., Christensen, J.H., Cuvelier, C., Foltescu, V., Graff, A., Kerschbaumer, A., Krol, M., Roberts, P., Rouil, L., Stern, R., Tarrason, L., Thunis, P., Vignati, E., Wind, P., 2009. Skill and uncertainty of a regional air quality model ensemble. *Atmospheric Environment* 43, 4822-4832.

Wichink Kruit, R., Schaap, M., Segers, A., Banzhaf, S., Schauschner, T., Bultjes, P., Heslinga, D., 2014: PINETI (Pollutant INput and EcosysTem Impact) report. Modelling and mapping of atmospheric nitrogen

and sulphur deposition and critical loads for ecosystem specific assessment of threats to biodiversity in Germany, Umweltbundesamt, Dessau.

Wichink Kruit, R.J., Schaap, M., Sauter, F.J., Van Zanten, M.C., Van Pul, W.A.J. (2012), Modeling the distribution of ammonia across Europe including bi-directional surface-atmosphere exchange, *Biogeosciences*, 9 (12), 5261-5277

Zhang, L., Gong, S., Padro, J., Barrie, L. (2001): A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module, *Atmospheric Environment*, 35 (3), pp. 549-560

Zöll, U., Brümmer, C., Schrader, F., Ammann, C., Ibrom, A., Flechard, C.R., Nelson, D.D., Zahniser, M., Kutsch, W.L. (2016), Surface-atmosphere exchange of ammonia over peatland using QCL-based eddy-covariance measurements and inferential modeling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16 (17), pp. 11283-11299.