

Trockene Deposition von Schwefeldioxid (SO₂), Ozon (O₃) und Stickoxiden (NO_x) an der Forschungsstation des IfT in Melpitz 1992-1995 - Meßtechnische Realisierung und Ergebnisse

G. Spindler, U. Teichmann, D. Theiss, E. Brüggemann

Summary:

Results from the subproject "Dry Deposition" of the national research project entitled SANA (Scientific Attendance Program of the Rehabilitation of the Atmosphere in the New Federal Lands) are presented. After the political unification of Germany a change in the air quality in the region of the conurbation of Leipzig have been observed as consequence of changes in the energy politics, economic structural reorganisation and the environmental legislative.

The concentrations of the trace gases SO₂, Ozone and NO_x (NO and NO₂) were measured over a period of more than three years (May 1992 to December 1995). For the measurements the micrometeorological gradient technique was applied to calculate the trace gas fluxes of SO₂ and O₃. The instrumentation of the research station near Melpitz - downwind of the conurbation of Leipzig - , the calculation of dry deposition and the meteorological situation for this time consist of SO₂ and O₃, the temperature, global radiation, and wind velocity are described.

Typical monthly impacts for SO₂ and Ozone were found in the range between 2-5 and 2-3 kg/(ha*month) for winter time and between 0.2-0.6 and 3-10 kg/(ha*month), respectively, for summer time, respectively. The ratio of dry deposition to total S-impact was 0.5 with a large variation from month to month.

Zusammenfassung:

Ergebnisse aus dem Teilprojekt "Trockene Deposition" des nationalen Verbundforschungsvorhabens SANA (Wissenschaftliches Begleitprogramm zur SANierung der Atmosphäre über den neuen Bundesländern) werden vorgestellt. In der Zeit nach der politischen Einigung Deutschlands konnte eine Veränderung der Luftqualität im Ballungsraum Leipzig als Folge der neuen Energiepolitik, einer ökonomischen Neustrukturierung und des Wirksamwerdens einer neuen Umweltgesetzgebung festgestellt werden

Die Konzentration der Spurengase SO₂, Ozon und NO_x (NO und NO₂) wurde über mehr als drei Jahre gemessen. Die Berechnung des trockenen Eintrages von SO₂ und Ozon erfolgte unter Anwendung der mikrometeorologischen Gradiententechnik. Der Aufbau der Forschungsstation im Lee des Ballungsraumes Leipzig, die Berechnung der trockenen Deposition für SO₂ und O₃ und die meteorologische Situation am Beispiel der Temperatur, der Globalstrahlung und der Windgeschwindigkeit für diesen Zeitraum werden beschrieben.

Typische monatliche Einträge für SO₂ und Ozon wurden im Bereich von 2 -5 und 2-3 kg/(ha*Monat) einerseits im Winter und 0,2-0,6 bzw. 3-10 kg/(ha*Monat) andererseits im Sommer ermittelt. Der mittlere Anteil der trockenen Deposition für S am Gesamtschwefeleintrag konnte zu etwa 50 % festgestellt werden, wobei sehr große Unterschiede von Monat zu Monat auftraten.

1. Einleitung

Die trockene Deposition von Spurenstoffen aus der Atmosphäre hin zur Erdoberfläche kann als Senke für Spurenstoffe in der Troposphäre wie auch als eine Komponente in der Stoffbilanz von Ökosystemen nicht vernachlässigt werden. Dieser vertikale Stofftransport, der ohne Mitwirkung von Niederschlägen erfolgt und den Transport partikulärer Beimengungen (Aerosole) mit einschließt, kann in der gleichen Größenordnung liegen wie der Eintrag durch nasse Deposition, (Fowler 1980; Eisenreich et al. 1981; Erisman et al. 1989; Lindberg und Lovett, 1992, Smith 1991). Welcher der beiden Depositionsmechanismen überwiegt, hängt von verschiedenen Faktoren ab, z. B. der atmosphärischen Konzentration und den chemischen Eigenschaften des Spurenstoffes selbst, der Rauigkeit der Unterlage und der geographischen Lage, welche die Niederschlagshäufigkeit und die mittlere Windgeschwindigkeit mit bestimmt. Nicht zuletzt ist die Entfernung zur Quelle des emittierten Spurenstoffes ein weiterer wesentlicher Einflußfaktor.

Im Verbundforschungsvorhaben SANA des BMBF¹⁾ wurde davon ausgegangen, daß sich durch die auf dem Gebiet der ehemaligen DDR unmittelbar nach der deutschen Vereinigung schnell stattfindende Umstrukturierung von Industrie, Landwirtschaft und Gesellschaft sowie greifende umweltpolitische Maßnahmen die Emissionsraten der klassischen Spurengase (SO_2 , NO_2 und NO_x) stark ändern. Das muß sich direkt und über eine veränderte Bildung sekundärer Spezies - Ozon, Säuren und Photooxidantien - wiederum auf die Immissionen in suburbanen Regionen auswirken. Solche sinkende Konzentrationen (oder im Falle von Ozon auch einen möglichen Anstieg) können Oberflächeneigenschaften verändern, wodurch zu erwarten war, daß sich die Einträge durch molekular turbulenten Transport in das Ökosystem verändern könnten.

Da heute als allgemein anerkannt gilt, daß eine sinnvolle Bestimmung der trockenen Deposition nur unter Anwendung mikrometeorologischer Methoden erfolgen sollte (Foken et al. 1995, Peters 1995), wurde beschlossen, innerhalb des Verbundprojektes exemplarisch eine automatisch betriebene Dauermeßstation nach vorliegenden neueren Erkenntnissen zu konzipieren und möglichst schnell im Lee des Ballungsraumes Halle-Leipzig zu errichten und zu betreiben. Dabei sollten die Messungen der Konzentration und der Flüsse ausgewählter Spurengase mit Hilfe der Gradientenmethode über einer für den Großraum repräsentativen Vegetationsoberfläche erfolgen.

Die Station konnte auf den Großwiesen bei Melpitz im Urstromtal der Elbe von Juli 1991 bis Januar 1992 in ausreichender Entfernung zum Ballungsraum errichtet werden. Das komplette Gradientensystem für die Spurengase SO_2 , NO_x und O_3 ging zusammen mit den notwendigen meteorologischen Messungen im Mai 1992 in Betrieb. Zusätzlich wurde auch die nasse Deposition in Melpitz registriert, (Brüggemann 1996).

2. Experimenteller Aufbau, Datenerfassung und Qualitätssicherung

2.1. Auswahl des Standortes

Für die Anwendung der mikrometeorologischen Gradientenmethode zur experimentellen Bestimmung der trockenen Deposition von Spurengasen war ein Standort notwendig, der die Ausbildung einer "constant flux layer" ermöglicht. Das erfordert eine sehr ebene Fläche, die in Hauptwindrichtung frei von nahen Emissionsquellen sein muß. Die unmittelbare Umgebung sollte darüber hinaus möglichst homogen bewachsen und nicht geneigt sein (Höhenunterschiede weniger als 1 m auf 100 m).

1) Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie

Es dürfen keine Quellen zusätzlich induzierter Turbulenz (Baumreihen, Bauwerke, Waldkanten etc.) bis in 1 km Entfernung vorhanden sein. Foken (1990) fordert für die Genauigkeit und Repräsentanz von Messungen turbulenter Energie- und Stoffflüsse in der bodennahen Grenzschicht und als wesentliche Voraussetzung für die Auswertbarkeit der gemessenen Vertikalprofile für Wind, Temperatur, Feuchte und Konzentrationsverteilung der Spurengase:

1. Völlig ebenes Gelände, Hangneigungen $< 3 \%$,
2. einheitliche Bodenstruktur ohne Unterschiede im Bewuchs, damit keine signifikanten Oberflächenrauigkeiten und/oder thermische Strukturen mit folglich verändertem Depositionsverhalten auftreten,
3. großer Abstand (mehrere Kilometer) von Emittenten in der Hauptwindrichtung, da sonst die notwendige Annahme eines von Advektionsprozessen ungestörten turbulenten Spurenstoffflusses nicht erfüllt ist.

Die Aufzählung zeigt, daß es sich bei einem "realen" Meßplatz bei der relativ dichten Besiedelung des Freistaates Sachsen nur um einen Kompromiß zwischen Anforderungen durch das Meßverfahren, vorhandener Orographie und Erfüllbarkeit infrastruktureller Randbedingungen handeln kann.

Das 90 Jahre alte Grasland besteht hauptsächlich aus folgenden Pflanzen: *Lolium perenne* (Deutsches Weidelgras), *Taraxacum officinale* (Gemeiner Löwenzahn) und *Leontodon autumnales* (Herbst Löwenzahn). Der Standort ist zumindest zeitweise grundwasserberührt. In einer Entfernung von ca. 80 m östlich des Meßfeldes befinden sich die Container für die Datenerfassung. Zum Containerstandort führt eine Zufahrt aus Melpitz.

Es bleibt zu beachten, daß sich aus der unterschiedlichen landwirtschaftlichen Nutzung außerhalb der eigentlichen Weide mechanisch und thermisch induzierte interne Grenzschichten ausbilden können. Dabei wird im unteren Teil des Höhenprofils die Turbulenzstruktur durch die eigentliche Unterlage Weide bestimmt, im oberen Teil des Höhenprofils wird die Turbulenz durch die vorgelagerte Unterlage geprägt. Die Höhe des ungestörten Bereiches oberhalb einer internen Grenzschicht (h_0) und unterhalb (h_u) läßt sich in Abhängigkeit der Windwirklänge "fetch" (f) abschätzen (Raabe 1991).

$$\begin{aligned} h_0 &\approx 0,5 * \sqrt{f} \\ h_u &\approx 0,3 * \sqrt{f} \end{aligned} \tag{1}$$

Zeitweilig ist mit der Existenz interner Grenzschichten (im Höhenbereich zwischen 4 m und 7 m) zu rechnen. Abbildung 1 zeigt die geographische Lage der Meßstation mit Windrose.

2.2. Aufbau des Gradientensystems

Das Gradientensystem wurde so ausgelegt, daß es dauerhaft automatisch betrieben werden kann. Dies erforderte von vornherein die Festlegung von Steuermodi, da im Zusammenhang mit der Zielstellung ausgeschlossen werden mußte, daß sich Veränderungen im Betriebsregime auf die Konstanz der Meßreihe auswirken. Die Abbildung 2 zeigt die Realisierung der Immissionsmessungen in unterschiedlichen Höhenniveaus.

Es wurden zwei getrennte Gittermasten (Entfernung 27 m) für die Erfassung der meteorologischen Größen und die Luftansaugung für die höhenvariable Konzentrationsmessung errichtet. Damit wurde verhindert, daß es am Mast für die Luftansaugung zur zusätzlichen Induzierung von Turbulenz durch Datenfassungsmodulen und Sensoren kommt.

Die relativ dichte Höhenbestückung für das Gradientensystem wurde bewußt gewählt. Im Prinzip wären zwei Meßniveaus ausreichend, um alle zur Berechnung von Spurengasflüssen

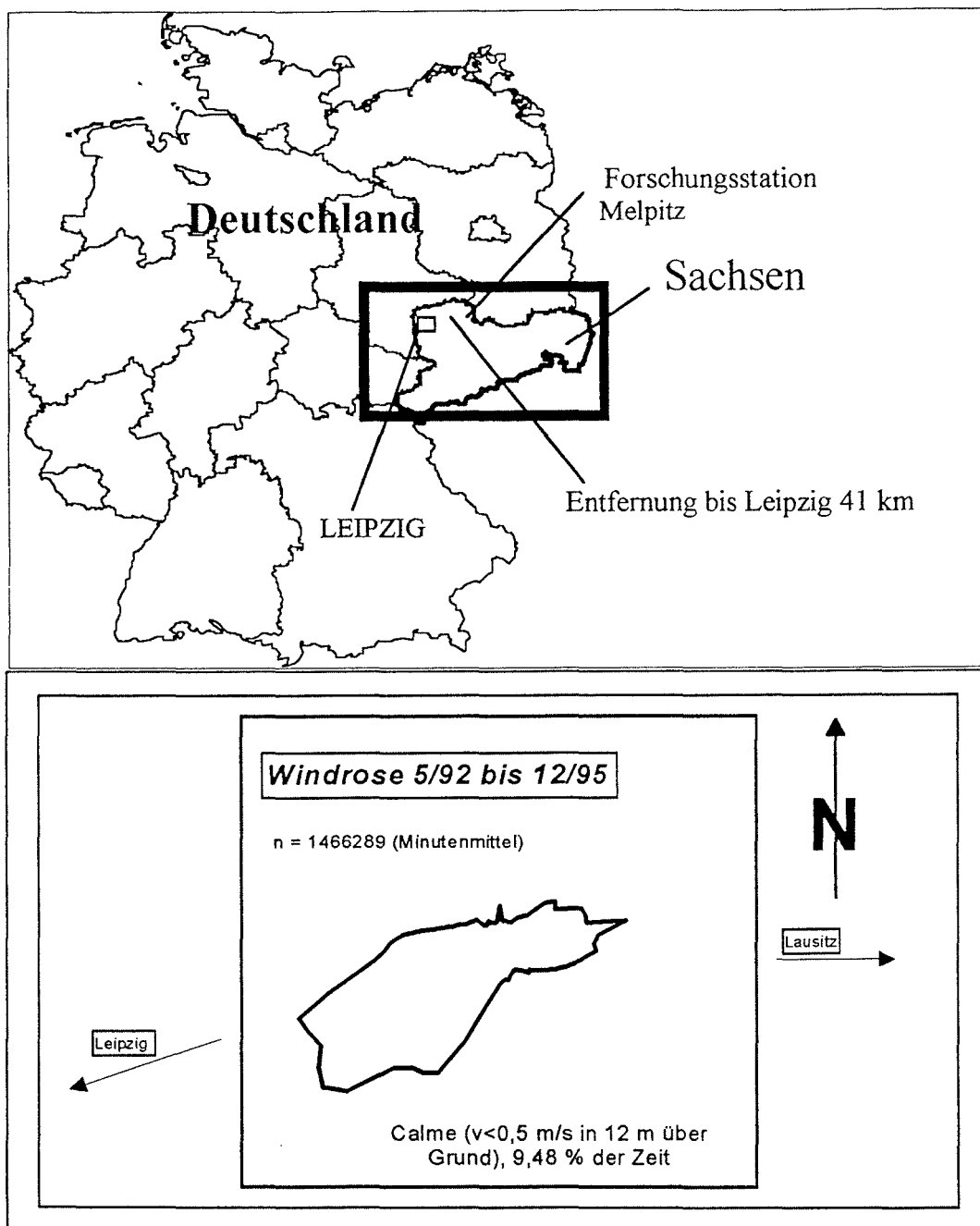


Abbildung 1 Geographische Lage der Meßstation (87 m NN, 51°32' N, 12°54' E) und Windrose 5/92 bis 12/95

erforderlichen Größen bestimmen zu können. Störungen in den Profilen sind dann aber nicht erkennbar. Da ein Meßgebiet, das o.g. theoretischen Anforderungen genügt, praktisch nicht zu finden ist, wurde das Vertikalprofil der Dauermeßstation bis in 12 m Höhe 8-fach mit Sensoren (Windgeschwindigkeit, trockene und feuchte Temperatur) bestückt und eine Luftansaugung für die Immissionsmessungen aus vergleichbaren Höhenniveaus vorgesehen. Um die Verteilung der Meßstellen so zu gestalten, daß zwar nach unten hin die dichtere Bestückung vorhanden ist, aber andererseits im oberen Teil der Masten keine zu großen "Lücken" auftreten, wurde eine zweifach logarithmisch gegliederte Anordnung gewählt ("Duolog"). Für die Höhenniveaus 1 bis 8 ergeben sich die in Tabelle 2 angegebenen Höhen über Grund.

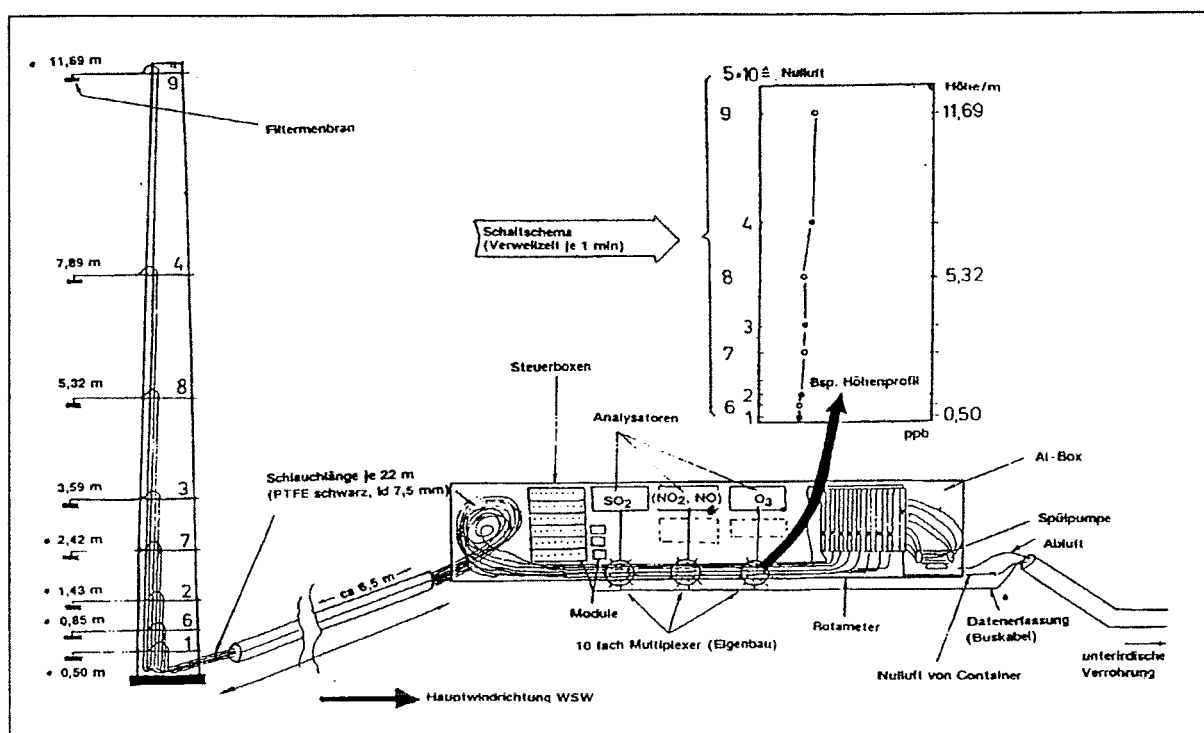


Abbildung 2 Gradientensystem, Mast für Immissionsmessungen¹⁾ und Analysatorbox

Es war notwendig, zwischen Datenerfassungscontainer und Meßfeld (Standort Analysatorbox) unterirdisch Rohre zu verlegen, um auch weiterhin eine einheitliche landwirtschaftliche Nutzung der Weide zu ermöglichen. In 1 m Tiefe liegen vier parallele Rohre mit einem Innendurchmesser von 100 mm, am Meßfeld enden sie oberirdisch neben der Analysatorbox und vor dem Container in einem gemauerten Schacht. Parallel zu diesen Rohren, durch die Kabel und Versorgungsschläuche gezogen wurden, sind zwei Kupferrohre verlegt. Durch diese Rohre wird im Sommer Wasser gepumpt (Wegstrecke 160 m in 1 m Tiefe). Dieses Wasser wird in der Analysatorbox über einen Wärmetauscher mit Querstromlüfter geführt. Somit ist es möglich, die im Sommer in der Box entstehende Wärme abzuführen. Im Winter dient die warme Abluft der Gradientenpumpe zum Heizen der Analysatorbox. Es wurden 8 Schalenkreuzanemometer und in 12m Höhe eine Wetterfahne der Firma "Siggelkow" installiert. Als Sensoren für die trockene und feuchte Temperatur dienen 8 Psychrometer (PT 100) der Firma "Thies", zusätzlich wurden Strahlungskomponenten und die Bodentemperatur bis in 0,5 m Tiefe registriert. In Tabelle 1 ist die Bestückung des Gradientensystems mit chemischer Meßtechnik aufgelistet.

2.3. Zentrale Datenerfassung und Steuerung, Datenaufbereitung

Das Kernstück der zentralen Datenerfassung bildet ein Echtzeitrechner mit 32-Bit-Betriebssystem auf VME-Bus-Basis. Echtzeitrechner (VMEexec-Target, Motorola MVME167) und Entwicklungsrechner (Unix System V; Motorola MVME147) sind getrennt, können jedoch über VME-Bus und Ethernet kommunizieren. Zur Synchronisation externer Experimente stehen Signalausgänge zur Verfügung.

1) Ursprünglich war vorgesehen, die Filterhalterungen der Luftansaugung mit Teflonfiltern (5 µm) zu bestücken, aufgrund der vorhandenen Aerosolbelastung war dies jedoch nicht möglich, da sich in sehr kurzer Zeit ein extrem hoher Unterdruck aufbaut. Deshalb mußten diese Teflonfilter durch Quarzfritten (keine Zerstörung von O₃ im Gegensatz zu Glasfritten) ersetzt werden. Diese Fritten haben den Vorteil, daß sie gereinigt und wiederverwendet werden können.

Jegliche zeitbezogene Aktion wird definiert über sogenannte Events mit der Genauigkeit der DCF77-Funkuhr (VME-Bus-Ausführung) gestartet. Als Zeitbasis wurde die mittlere Ortszeit (MOZ), MEZ -8 min und -16 s, vereinbart. Die Daten des Gradientensystems werden über serielle Module der Firma IMKO mit einer Zeitauflösung von 10 Sekunden erfaßt und zum Rechner (Polling) übertragen.

Die Datenablage erfolgt auf MO-Disk (600 MB Kapazität) in Halbstundendateien, deren Inhalt im IfT weiterbearbeitet und in eine Datenbank (INGRES) als Minutenmittel gespeichert wird. Der Echtzeitrechner steuert u.a. die gesamte Ventilschaltung, registriert und behandelt Fehler

Tabelle 1 Komponenten des Gradientensystems (Spurengaschemie)

Meßwertgeber/Gegenstand	Einbau/Funktion	Anzahl
PTFE-Schlauch (schwarz) ^{a)} Fa. "BEMU", \varnothing 7,5/9,5 mm, je 22 m	Transport der Luft aus den 8 Ansaughöhen	8
radiale Gasmultiplexer (Eigenbau), alle verwendeten Teile und Schalt- ventile Fa. "Galtec" aus PTFE	Analysatorbox, wahlweise Luftzufuhr zu den Analysatoren aus unterschiedlichen Höhen	3
Rotameter mit Minimaschalter, Fa. "MFE"	Analysatorbox, Kontrolle des Luftstromes aus 8 Höhen	9
Saugpumpe mit 8 Köpfen Fa. "hyco"	Analysatorbox, ständige Spülung des Ansaugsystems	1
SO ₂ -Analysator, Typ AF21M Fa. "Ansyco" (schnelle Version, Sonderanfertigung)	Analysatorbox, kontinuierliche Messung der SO ₂ -Immission (UV-Fluoreszenz) Ansprechzeit 10s	1
O ₃ -Analysator, Typ 41M Fa. "Ansyco"	Analysatorbox, kontinuierliche Messung der O ₃ -Immission (UV-Adsorption) Ansprechzeit 30s	1
NO _x -Analysator, Typ 8841 Fa. "MonitorLabs"	Analysatorbox, kontinuierliche Messung der NO/NO _x -Immision, (Chemiluminiszenz) Ansprechzeit 60s	1

a) Es wurden schwarze PTFE-schläuche verwendet, um photochemische Reaktionen im Schlauch weiterstehend zu unterdrücken (Beier und Schneewind 1991).

einzelner Module bis hin zu einer Initialisierung. Auf XWindows (netzwerkfähig) basierende Grafiktools gestatten die Online-Darstellung von Meßwerten und Steuereingriffe per Mausklick. QA/QC-Güteanforderungen wird zusätzlich durch ein elektronisches Stationstagebuch entsprochen. Die gesamte Datenerfassung wird aufgrund der schlechten E-Netzqualität über eine unterbrechungsfreie Stromversorgung (USV) betrieben, die im Bedarfsfalle per Softwaretool einen automatischen Systemabschluß und Neustart des Rechners ermöglicht. Nach Blitzschlag/Hochwasser in 1994 wurde größerer Aufwand in entsprechende Prävention seitens E-Netz und Meßfeld investiert, was sich bewährt hat. Der Entwicklungsrechner wurde zum zentralen Kontrollrechner der Station ausgebaut mit Tools zur Systemüberwachung, -kontrolle und -steuerung. Diese Funktionen sind auch "remote" vom IfT aus bedienbar bis zum RESET, BOOT der Rechner und der Möglichkeit der Abforderung aktueller oder gespeicherter Daten. Dazu besteht eine Modemverbindung über Telefonnetz zwischen Melpitz und einem ins IfT-Netz eingebundenen Unix-Rechner.

Für die hier diskutierten Berechnungen wurden aus den Minutenmitteln der Datenbank INGRES 5-Minutenmittel gebildet, einer graphischen Sichtung unterzogen und als LOTUS-Files (*.WK3) zu entsprechenden Ergebnissen weiterverarbeitet. Dieses Datenformat erlaubt eine direkte graphische Weiterverarbeitung unter EXEL 4.0 und einen Export von ASCII-Files für weitere Nutzer.

2.4. Langzeitmessungen

2.4.1. Messungen mit dem Gradientensystem

Die Gradientenmethode (auch Integral- oder Profilmethode), als ein indirektes Verfahren zur Bestimmung der trockenen Deposition, beruht auf der Annahme, daß die turbulenten Flüsse von Impuls, sensibler Wärme und Materie - im Sinne einer Schließung erster Ordnung - parametrisiert werden können (Monin und Obuchov 1954, Businger 1973, Atkins und Garland 1974, Fowler 1978, Herbert und Kramm 1981, Rojas et al. 1993).

Dieses Verfahren wird neben anderen (Winkler 1985, Spindler et.al. 1989, Erisman et.al. 1994, Foken et.al. 1995, Peters 1995) zur Berechnung der trockenen Deposition von Spurengasen aus Immissions-, Windgeschwindigkeits- und Temperaturmessungen in unterschiedlichen Höhen über Grund häufig herangezogen. Es erscheint nach mehr als dreijähriger Betriebserfahrung für die Flußmessung von SO₂ und Ozon im "automatischen" Dauerbetrieb geeignet.

Es ist dazu notwendig, die Immissionskonzentrationen in unterschiedlichen Höhen über Grund zu messen. Dafür gibt es zwei Möglichkeiten, die kontinuierliche Messung mit je einem Gasmonitor in einer Höhe (kontinuierliches Verfahren) zum einen und zum anderen die zeitversetzte Messung durch alternierende Zufuhr von Luft aus jeweils einer Höhe zu einem Monitor (quasikontinuierliches Verfahren). Die Entscheidung für eines der Verfahren birgt ein Für und Wieder in sich. Ein Problem ist die Wiedergabe von zeitlichen Konzentrationsänderungen einerseits, weil ein diskontinuierliches Verfahren ein Profil immer nur zeitlich versetzt liefern kann, andererseits ist beim kontinuierlichen Verfahren die niemals mögliche exakte Kalibrierung von mehreren Spurengasmonitoren eine zusätzliche Fehlerquelle. Es wurde deshalb das Verfahren einer quasikontinuierlichen Messung, wie es Abbildung 2 verdeutlicht, gewählt. Tabelle 2 beschreibt den realisierten Schaltzyklus für die Gasmultiplexer, die den permanenten Luftstrom dem jeweiligen Gasanalysator zuführen.

Tabelle 2 Schaltzyklus der Luftzufuhr für die Gasanalysatoren^{a)}

Zeit [min]	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Höhe/Kennziffer ^{b)}	1	3	5	7	?	2	4	6	8	?
Ansaughöhe [m]	0,50	1,43	3,59	7,89		0,85	2,42	5,32	11,69	
	Teilprofil 1					Teilprofil 2				

a) Aus meßtechnischen Gründen (langsamere Einstellzeit) konnte für den NO_x-Analysator nur ein Profil aus den Höhen 2,4,6,8 mit einer zweiminütigen Verweilzeit realisiert werden.

b) ? entspricht frei verfügbar

Die plötzlich starke Änderung von Immissionen kann auf Grund der zeitlichen Verzögerung zu Schwierigkeiten führen, da die Voraussetzung einer *constant flux layer* nicht mehr gegeben ist. Dies zeigt sich bei dem gewählten Schaltzyklus in einem Kippen der Teilprofile gegeneinander. Entsprechende Situationen konnten nach manueller Sichtung der Daten eliminiert werden.

Aus den gemessenen Konzentrationsprofilen und den Messungen von Windgeschwindigkeit, trockener und feuchter Temperatur in 8 Höhen kann der Fluß der Spurenkompone i zum Boden ermittelt werden. Dieser Fluß ist für annähernd inerte Komponenten in den unteren Metern über Grund konstant, bei reaktionsfähigen Komponenten (O₃, NO_x) können, zumindest zeitweise, chemische Reaktionen, die innerhalb der gleichen Zeitskala wie die Depositionsprozesse ablaufen, zu Flußdivergenzen führen (Spindler et.al. 1996). Das heißt, der in einer Referenzhöhe über der Erdoberfläche (Vegetationsoberfläche) bestimmte Fluß ist nicht gleich dem Fluß direkt an der Oberfläche. Da Ozon in der Regel in höheren Konzentrationen als NO_x auftritt, ist es in erster Näherung möglich, hier den Einfluß chemischer Reaktionen zu vernachlässigen. Im folgenden wird die Berechnung des Flusses kurz aufgezeigt (Thom 1975).

Es wird angenommen, daß der vertikale Fluß der Komponente i [F_{ci}] dem Gradienten der mittleren Größe der Konzentration proportional ist.

$$F_{ci} = -K_c \frac{dc_i}{dz} \quad (2)$$

Analog dem Transfer von Impuls und Wärme soll in der turbulenten *Prandtl*-Schicht auch der vertikalen Spurengasfluß stattfinden. Das bedeutet, daß die turbulenten Austauschkoefizienten für die Wärme (K_h), den Impuls (K_p) und die Konzentration (K_c) gleichgesetzt werden (Thom et al., 1975, Oke, 1987, Foken et al., 1975):

$$F_p = K_p \frac{du}{dz} \quad \text{und} \quad F_h = K_h \frac{dT}{dz} \quad (3)$$

$$K_c \approx K_p \approx K_h \quad (4)$$

Für die Auswertung der Dauermessungen soll zeitgleich das Wind- und Temperaturprofil im gleichen Höhenbereich bekannt sein. Abbildung 4 zeigt als Beispiel ein unter neutralen atmosphärischen Bedingungen real gemessenes Windprofil und verdeutlicht den Weg zur Berechnung der Verdrängungshöhe d , die als ein indirektes Maß für die Vegetationshöhe ist. In dieser Arbeit wird eine Faustregel bestätigt, nach der gilt, daß d ca. 60 bis 80 % der physikalischen Höhe des Bewuchses entspricht. Die Verdrängungshöhe d wurde für alle Stunden mit annähernd neutralen meteorologischen Bedingungen ermittelt und wird jeweils als Monatsmittel bei den Flußberechnungen berücksichtigt. Abbildung 13 zeigt die monatlich ermittelten Verdrängungshöhen d . Aus der Steigung der Geraden in Abbildung 3 kann die Schubspannungsgeschwindigkeit (u^*) berechnet werden, und aus der Gleichung der optimierten Geraden wird die Rauigkeitslänge (z_0) abgeleitet. Als Faustregel für die Rauigkeitslänge unter neutralen Bedingungen gilt, daß sie etwa 10 bis 20% der Höhe der Rauigkeitselemente ausmacht. Für die Schubspannungsgeschwindigkeit (u^*) gilt

$$u^* = \frac{du}{d(z-d)} \cdot k \cdot (z-d) \quad (5)$$

der turbulente Austauschkoefizient für den Impuls kann als

$$K_p = k \cdot u^* \cdot (z-d) \quad (6)$$

beschrieben werden. k ist die dimensionslose *von Karman*-Konstante ($k = 0,4$). Unter Beachtung von Gleichung 2 und der Gleichsetzung der turbulenten Austauschkoefizienten K_p und K_c läßt sich für den vertikalen Spurengasfluß eine bei neutraler atmosphärischer Schichtung ($F_{c(\text{neutral})}$) geltende Berechnungsformel ableiten:

$$F_{c \text{ neutral}} = k^2 \cdot (z-d)^2 \cdot \frac{du}{d(z-d)} \cdot \frac{dc}{d(z-d)} \quad (7)$$

Da diese Berechnung des Spurengasflusses aus der Kenntnis des Konzentrations- und Windgeschwindigkeitsgradienten streng nur für eine neutral geschichtete Atmosphäre gilt, ist es notwendig, den jeweiligen Zustand der Atmosphäre im betreffenden Höhenbereich zu ermitteln. Dies ist mit Berechnung der *Richardson*-Zahl (R_i) möglich, dafür muß zusätzlich der Temperaturgradient über Grund gemessen werden. Die *Richardson*-Zahl berechnet sich nach Gleichung 8:

$$R_i = \frac{g \frac{dT}{dz}}{T \frac{du^2}{dz^2}} = \frac{g}{T} \cdot \frac{(T_2 - T_1)(z_2 - z_1)}{(u_2 - u_1)^2} \quad (8)$$

$R_i < 0$ gilt, wenn die Atmosphäre labil geschichtet ist, bei stabiler Schichtung ist $R_i > 0$. Eine neutrale Schichtung liegt streng genommen nur bei $R_i = 0$ vor. In der Praxis wurden für diesen Fall jedoch Grenzen angegeben ($0,03 > R_i > -0,03$ für den neutralen Fall). Der Fluß kann nun für labile und stabile Verhältnisse mit Hilfe empirisch ermittelter Stabilitätsfunktionen "korrigiert" werden.

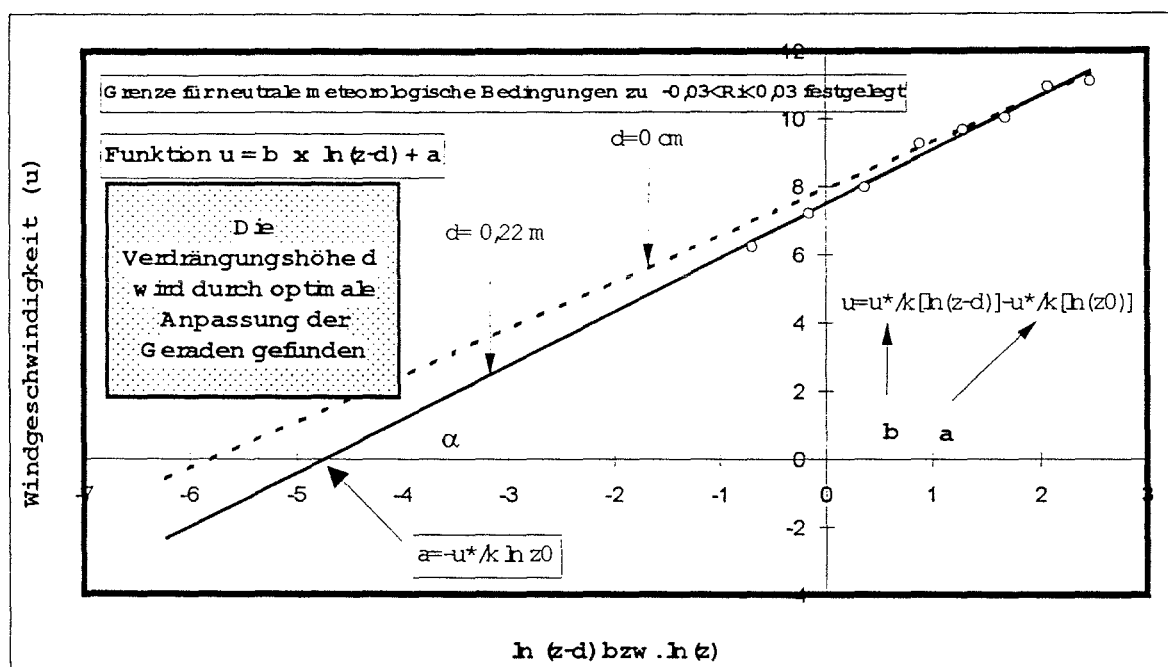


Abbildung 3 Beispiel eines linearisierten Windprofils (Stundenmittel) 16.01.93 13:00 CET Melpitz (horizontale Windgeschwindigkeit u in m/s)

In der Literatur findet man verschiedene Vorschläge für eine solche Korrektur. In dieser Arbeit finden die Korrekturen nach Thom (1975) Anwendung.

$$F_{c(stabil)} = F_{c(neutral)} \cdot (1 - 5 R_i)^2 \quad (9a)$$

$$F_{c(labil)} = F_{c(neutral)} \cdot (1 - 16 R_i)^{3/4} \quad (9b)$$

Es ist auch möglich, die Stabilitätsfunktionen für Impuls-, Wärme- und Spurenstofffluß (Φ_p , Φ_h , Φ_c) alternativ als Funktion der MONIN-OBUKOV-Länge (L) über die dimensionslose Größe z/L auszudrücken (Businger et al. 1971). Eine mögliche Korrektur ist folgende nach Panofsky und Dutton (1984):

$$\Phi_p(z/L) = (1 - 16 z/L)^{-1/4} \quad \text{stabile Verhältnisse} \quad -2.5 \leq z/L \leq 0 \quad (10)$$

$$\Phi_p(z/L) = (1 + 5 z/L) \quad \text{labile Verhältnisse} \quad 0 \leq z/L \leq +2$$

2.4.2. Kalibration der chemischen Monitore und Qualitätssicherung der Immissionsmessung

Die verwendeten chemischen Monitore sind in Tabelle 1 aufgelistet, Prüfgase und Kalibratoren sind in Tabelle 3 beschrieben. Die Kalibration der verwendeten Spurengasanalytoren erfolgte diskontinuierlich off-line, eine direkte Kalibration über das Ansaugsystem ist auf Grund der hohen Gasströme (500 bis 600 l/h) nicht möglich. Tabelle 4 beschreibt die Standardkalibrationsprozeduren. Bei den vorgenommenen Kalibrationen zeigten die Analytoren, wenn nicht offensichtliche technische Defekte eintraten, nach 4 Wochen keine Abweichung um mehr als 5 % des Absolutwertes. Die Melpitzer Meßstation unterlag innerhalb des Verbundprojektes der Qualitätskontrolle durch das luftchemische QA/QC-Labor des Institutes für Atmosphärische Umweltforschung (IFU) in Garmisch-Partenkirchen (H.-J. Kanter und V. Mohnen). Weiterhin wurden Parallelmessungen in einem vergleichbaren Höhengniveau durchgeführt. Durch direkte Prüfgasaufgabe auf die in der Analysatorbox befindlichen Monitore wurde die gesamte verwendete Datenerfassung geprüft. Die Datenverfügbarkeit zum Eingang in Flußberechnungen nach der Gradientenmethode beträgt etwa 75-78 %.

Tabelle 3 Verwendete Prüfgase und Kalibratoren

Prüfgas/Kalibrator	Standort/Beschreibung	Anzahl
Nullluftaufbereitung Wechsellöcher Fa. "Zander", Kompressor Fa. "Dürr"	Stationscontainer, Nullluftförderung über 80 m PTFE-Schlauch zur Analysatorbox (Datenerfassungscontainer und IFT-Labor)	2
SO ₂ - und NO-Prüfgas Fa. Messer-Griesheim	transportabel	2
O ₃ -Kalibrator, Typ SYCOS K-O ₃ , Fa. "Ansyco"	2 Konzentrationen einstellbar für Einsatz im Feld, Analysatorbox	1
O ₃ -Primärstandard (UV-photometrisch) Fa. "Thermo Instruments"	Vorgabe einer O ₃ -Primärkonzentration (IFT-Labor)	1
Gasmischer: Serie 2000 (Fa. Environics)	IFT-Kalibrierlabor bzw. Datenerfassungscontainer in Verbindung mit Null-Luft	1

Tabelle 4 Standardkalibrationen

Gasmonitor	Kalibrierverfahren
O ₃ -Analysator:	Primärstandard am IFT in Leipzig, im Feld Zweipunktkalibrierung mit Hilfe des Transferstandards SYCOS, K-O ₃ , (30 ppb / 70 ppb)
SO ₂ -Analysator:	Prüfgasaufgabe im verwendeten Meßbereich (0 bis 250 ppb) bei 200 ppb bzw. in 4 Konzentrationsschritten über Gasmischer
NO _x -Analysator:	Gasphasentitration am IFT, Mehrpunktkalibration auf NO und NO ₂ , Kontrolle des Konverterwirkungsgrades bei höchster Konzentration.

Zusätzlich legten die Betreiber Wert darauf, auch über die Dauer mehrerer Tage - und damit unter unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen - zu zeigen, daß die quasikontinuierlichen Immissionsmessungen in einer Höhe den wahren Immissionsverlauf richtig wiedergeben und das Ansaugsystem mit seinen Fritten und relativ langen Schläuchen keine wesentliche Beeinträchtigung der Qualität der Messungen liefert. Vorher wurden die jeweils verwendeten Monitore gemeinsam kalibriert. Das Ergebnis einer Parallelmessung für NO₂ zwischen einem Höhengniveau des Gradientensystems und einer kontinuierlichen Immissionsmessung in gleicher Höhe zeigt als Beispiel Abbildung 4, bis auf eine kurzzeitig größere Abweichung um den 8. November (Schneefall) ergibt sich eine gute Übereinstimmung. In Abbildung 5 ist ein Beispiel für eine Vergleichsmessung für SO₂ im Januar 95 dargestellt, es

wurde bewußt diese Jahreszeit gewählt, da SO_2 stark wasserlöslich ist und eventuell Regen und Schnee die Qualität der Messungen beeinflussen könnten. Die Abbildung zeigt, daß dies nicht der Fall ist.

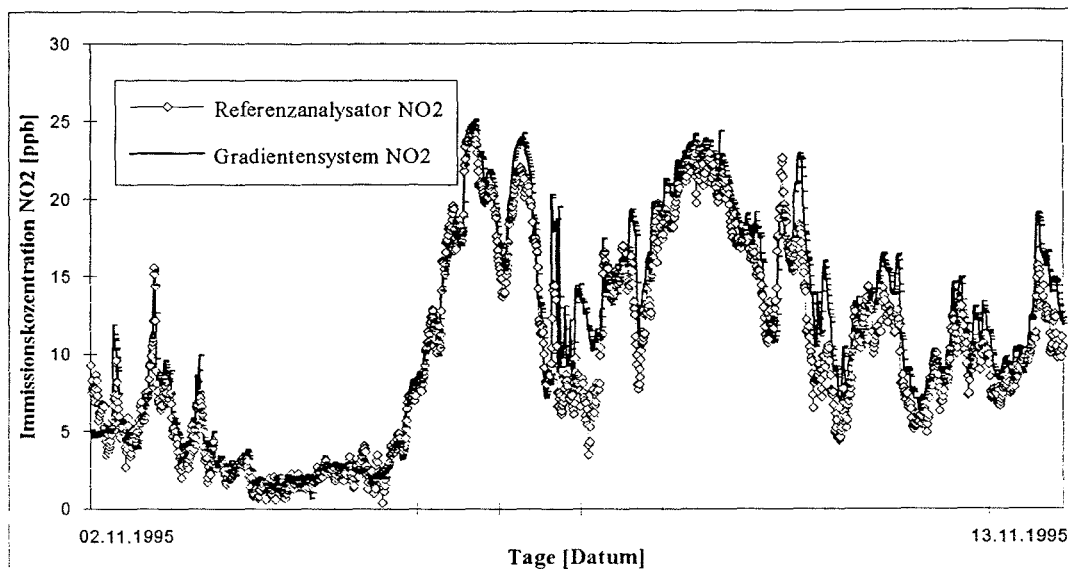


Abbildung 4 Beispiel einer parallelen Immissionsmessung für NO_2 (2,42 m über Grund)

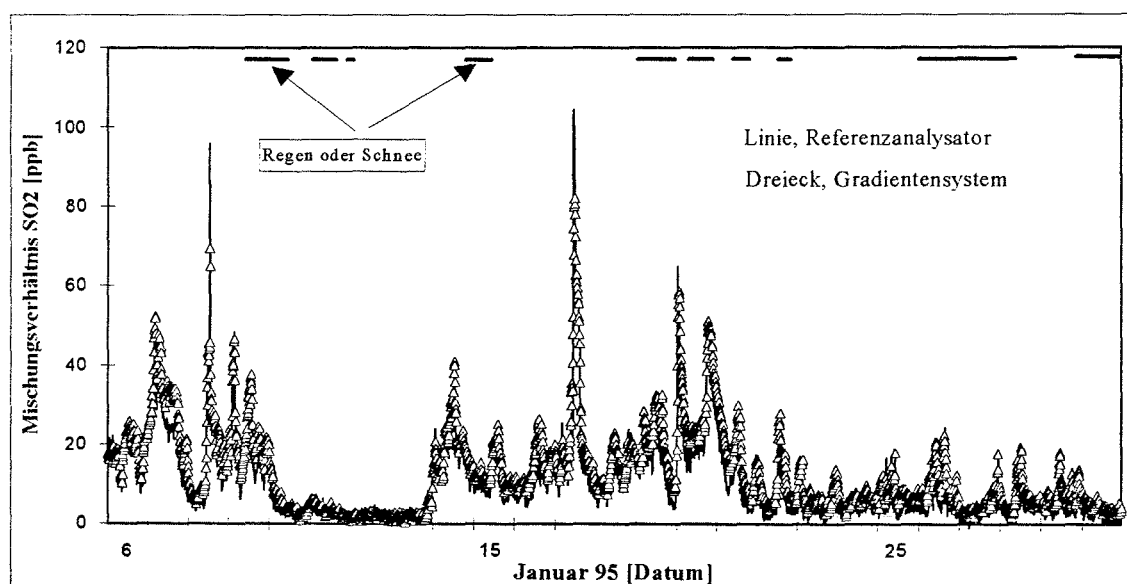


Abbildung 5 Beispiel einer parallelen Immissionsmessung für SO_2 (2,42 m über Grund)

3. Ergebnisse

3.1. Charakterisierung des Standortes an Hand ausgewählter meteorologischer Daten

Die Meßstation Melpitz liegt im Mitteldeutschen Raum im Urstromtal der Elbe. Es handelt sich damit um einen relativ küstenfernen Ort (Entfernung zur Nordsee in Hauptwindrichtung mehr als 500 km). Die vorherrschende Hauptwindrichtung ist Südwest für bis zu 75 % der Zeit, die zweite Hauptwindrichtung (bevorzugt in kontinentalen Hochdruckwetterlagen) ist Ost mit bis zu 20 % der Zeit, andere Windrichtungen sind für den Standort ohne Bedeutung(vgl.

Abbildung 1). Der hier beschriebene Meßzeitraum (Mai 1992 bis Dezember 1995) war durch relativ warme Winter mit nur gelegentlichen Frosteinbrüchen gekennzeichnet, in denen es kaum zur Ausbildung einer Schneedecke kam. Erst gegen Ende der Meßphase (Dezember 1995) begann ein kalter und langer Winter. Der Sommer 1992 war für mitteleuropäische Verhältnisse normal. Der Sommer 1993 war sehr niederschlagsreich und kühl, im Gegensatz dazu stehen die Sommer 1994 und 1995, die mit zu den wärmsten dieses Jahrhunderts zählen. Dies zeigt sich zum einen in Abbildung 6 am Verlauf der Tagesmitteltemperatur und zum anderen in Abbildung 7 in der Darstellung der mittleren täglichen Globalstrahlung: im sonnenscheinarmen Sommer 1993 befinden sich mehr Punkte weit unterhalb der jahreszeitabhängig maximal möglichen Einstrahlung. Die Verläufe von minimaler und maximaler Tagestemperatur (jeweils extremes Minutenmittel des Tages) zeigen langanhaltende Hochdruckwetterlagen im Sommer 1994 und Spätsommer 1995 durch größere Differenzen deutlich an (Abbildung 6).

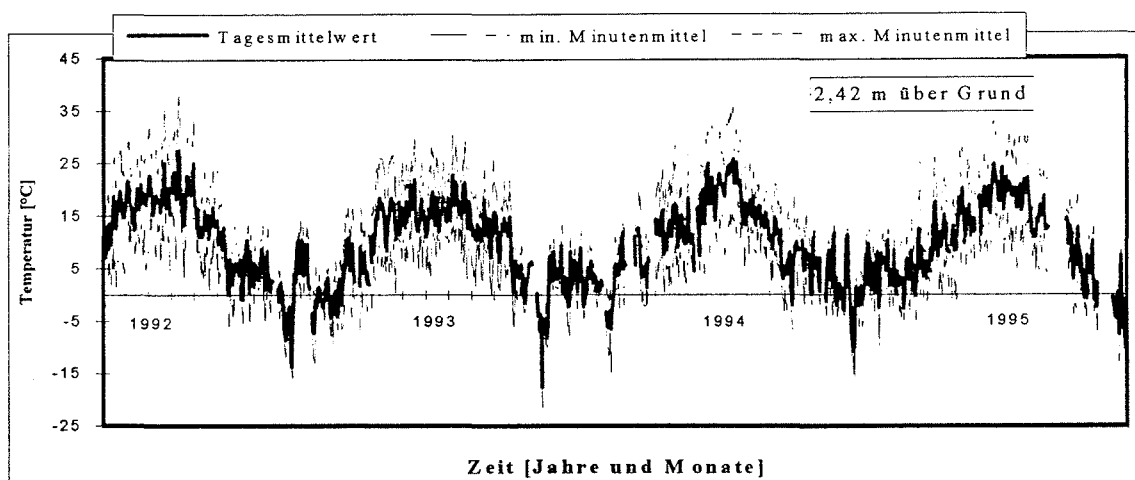


Abbildung 6 Tagesmitteltemperaturen und Maxima, Minima (Minutenmittel des Tages)

Abbildung 8 zeigt die Tagesmittel der Windgeschwindigkeit auf gleicher Zeitachse. Es zeigt sich für die Winter 1992/93 und 93/94 eine relativ normale Verteilung von Schwachwindlagen (stabile Situationen mit Neigung zur Smogbildung) und Zeitabschnitten mit starker Luftbewegung. Der Winter 1994/95 weist allgemein eine recht starke Luftbewegung aus, was kaum zur Ausbildung typischer Wintersmogepisoden führte. Ganz im Gegensatz dazu steht der langanhaltende kalte Winter 1995/96 (der nur bis Dezember 95 erfaßt ist), hier kommt es Ende Dezember bereits zur Ausbildung stabiler Wetterlagen mit ausgeprägt hohen Immissionskonzentrationen für SO_2 und NO_x . Mit einer durchschnittlichen Windgeschwindigkeit von über 3,3 m/s in 2,42 m über Grund weist der Standort relativ hohe Windgeschwindigkeiten auf, es konnten Böen bis über 17 m/s (Minutenmittel) registriert werden.

3.2. Immissionssituation für SO_2 , O_3 und NO_x

Für die Beurteilung des Standortes und der für die trockener und nasser Deposition erhaltenen Ergebnisse ist eine kurze Charakterisierung hinsichtlich seiner Immissionssituation von Interesse. In den Meßzeitraum fällt eine starke Abnahme der noch im Winter 1992/93 registrierten hohen mittleren SO_2 -Konzentrationen auf ein in den folgenden Wintern stagnierendes niedrigeres Niveau. Die SO_2 -Konzentrationen des Sommers stagnieren bei gleich niedrigen Werten, dies ist ein Hinweis darauf, daß das im Winter 92/93 gemessene SO_2

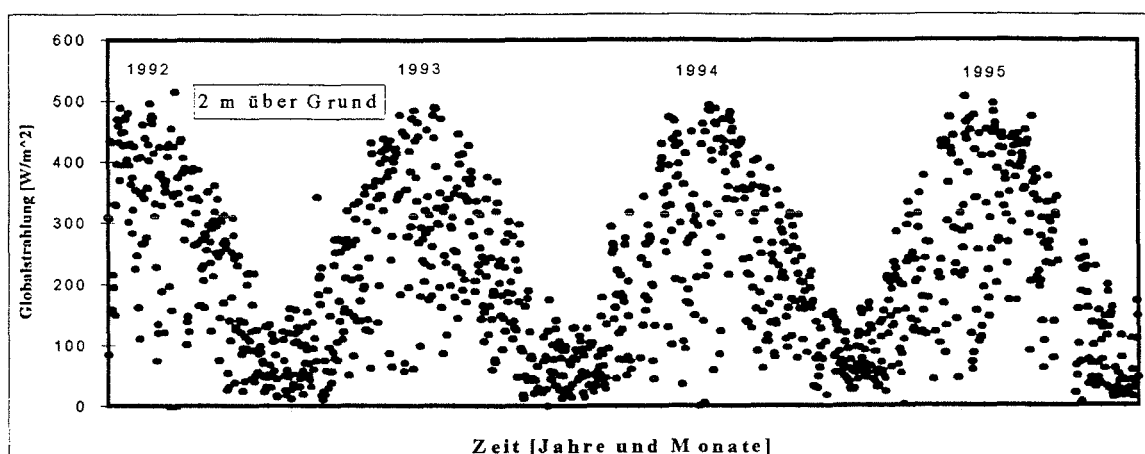


Abbildung 7 Tagesmittel der Globalstrahlung

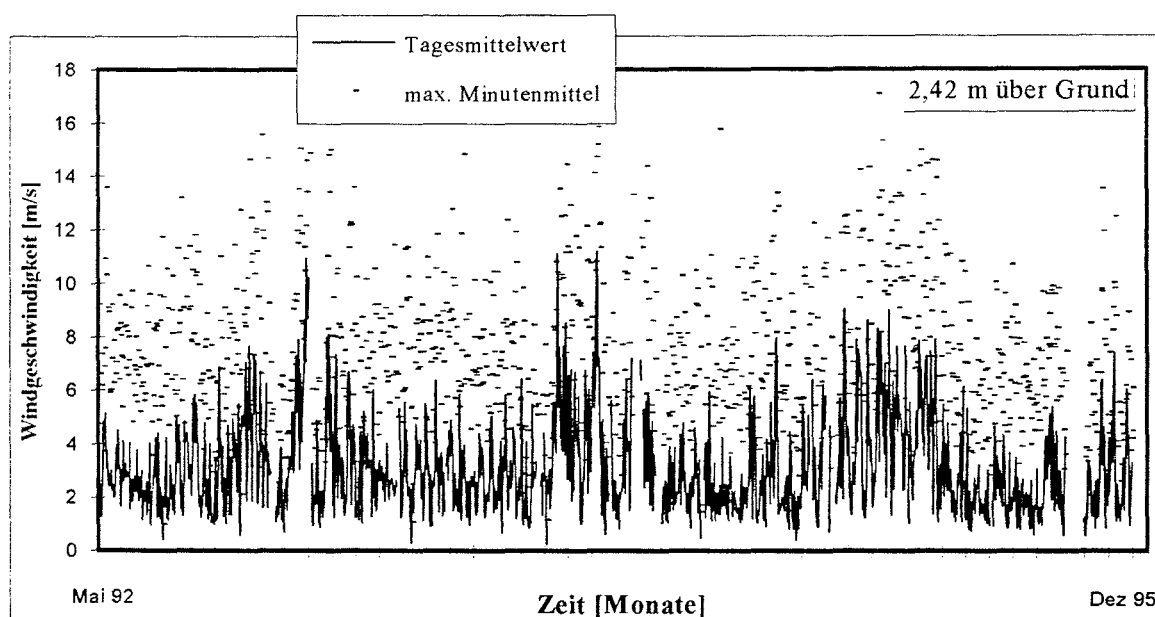


Abbildung 8 Verlauf der Tagesmittel der Windgeschwindigkeit und der maximalen Tagesböen (Minutenmittel)

noch aus der Verbrennung schwefelhaltiger Kohle in Einzelöfen und dem Betrieb der Kohlekraftwerke ohne Rauchgasentschwefelung stammen muß. In den darauf folgenden drei Wintern gibt es mittlere SO_2 -Konzentrationen (10 Tagesmittel) bis nahe 20 ppb nur noch in Verbindung mit Kälteeinbrüchen (Spätwinter 93/94 und Winter 94/95), besonders ausgeprägt bereits im Dezember des extrem kalten Winters 1995/96. Die mittleren Ozonkonzentrationen sind für Melpitz auch in den Sommermonaten recht moderat und erreichen nach einem in diesem kurzen Zeitabschnitt scheinbar ständigen leichten Anstieg ihr Maximum im extrem warmen Hochsommer 1994 mit einer Sommersmogsituation, bei der es über etwa 12 Tage zu einem deutlichen Ozonkonzentrationsanstieg bis über 100 ppb kam. Überraschenderweise setzt sich die Ausprägung von Sommersmogsituationen im relativ warmen und langen Sommer 1995 nicht fort, vergleiche Abbildung 9. Von Umweltbundesamt (UBA) werden die Ozonimmissionen der für die Bundesrepublik in den Sommern 1990 bis 1995 als schwankend eingestuft, 1994 zeigt sich auch hier als "gutes Ozonjahr", das sich 1995 trotz relativ hoher

Temperaturen nicht wiederholt¹⁾. Dieses Ergebnis steht im Einklang mit sinkenden Kohlenwasserstoffemissionen für Melpitz von 1994 zu 1995 (Gnauk et.al. 1996).

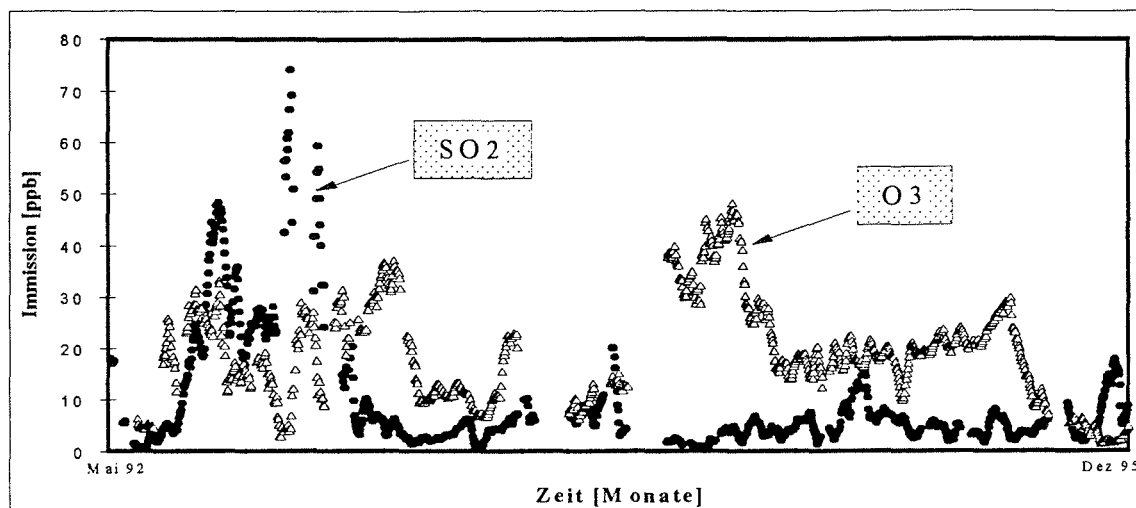


Abbildung 9 Immission von SO₂ und O₃ in Melpitz (2,42 m über Grund, gleitende 10-Tagesmittel, zentriert)

Für die Stickoxide NO₂ und NO (NO_x) bleibt eine erkennbare Veränderung der Immissionssituation im beschriebenen Zeitraum aus (vgl. Abbildung 10). Es ist möglich, daß sich hier zwei Effekte überlagern: ein zurückgehender Ausstoß durch direkte Kohleverbrennung einerseits, und andererseits eine Zunahme durch die gestiegene Anzahl von Kraftfahrzeugen. Deutlich zu erkennen sind in Abbildung 15 die Wintersmogsituationen an einem merklichen Anstieg der Konzentrationen von NO₂ und NO. Die mittleren Konzentrationen von 5-7 ppb für NO₂ und 1-2 ppb für NO sind in Melpitz im Vergleich zu den westlichen Bundesländern eher gering. Das mittlere Verhältnis der Konzentrationen von NO₂ zu NO beträgt ca. 4,2 und ist im Winter oft deutlich erhöht, dies ist ein Hinweis auf den primären Ausstoß von NO₂ aus Feuerungsanlagen bzw. geringere Photolyseraten.

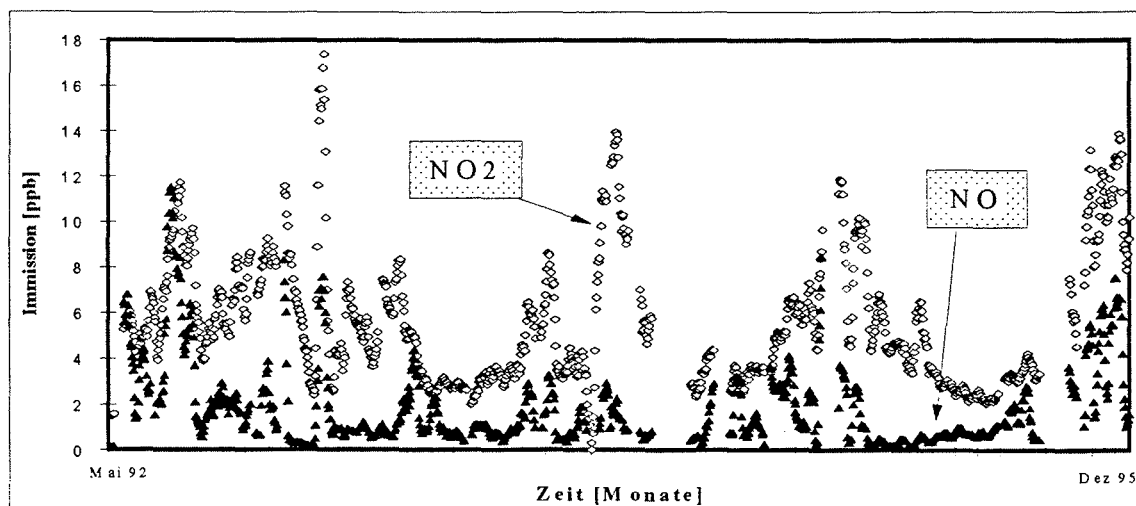


Abbildung 10 Immission von NO₂ und NO (NO_x) in Melpitz (2,42 m über Grund, gleitende 10-Tagesmittel, zentriert)

1) Umweltbundesamt (UBA) 1996, R. Lacombe (persönliche Mitteilung)

In den Abbildungen 11 und 12 sind jeweils für SO_2 und Ozon und für NO_2 und NO die relativen Verteilungen der maximalen Stundenkonzentrationen über die Tageszeit für den gesamten Meßzeitraum aufgetragen. Für SO_2 und O_3 (Abbildung 11) bildet sich eine relative Normalverteilung um die Stunden mit den höchsten Immissionskonzentrationen aus. Es zeigt sich, daß SO_2 als primär emittiertes und reaktionsträges Gas seine höchsten Konzentrationen mit einsetzender stärkerer Turbulenz im Mittel gegen 10:00 Uhr erreicht. Ozon als nicht primär emittiertes Spurengas erreicht seine höchsten Konzentrationen meist erst gegen 15:00 Uhr, dies ist ein deutliches Indiz für die Bildung von Ozon auf photochemischem Wege. Für NO_2 und NO ist die Verteilung nicht so ausgeprägt (Abbildung 12). Dies hat zum einen seine Ursache in den absolut geringeren Konzentrationen und kleineren Konzentrationsschwankungsbreiten, zum anderen kann NO_2 sowohl primär emittiert als auch photochemisch gebildet werden. Für NO gilt, daß es primär emittiert werden kann und danach zu NO_2 oxidiert wird. In der Verteilung ist zu erkennen, daß NO und NO_2 in den Morgenstunden zur Zeit der ersten Kfz-Verkehrsspitze und mit einsetzender Durchmischung eine relative Maximalkonzentration erreichen. NO_2 allein erreicht am Nachmittag nochmals ein Maximum, was wie beim Ozon auf eine zumindest teilweise photochemische Bildung hindeutet.

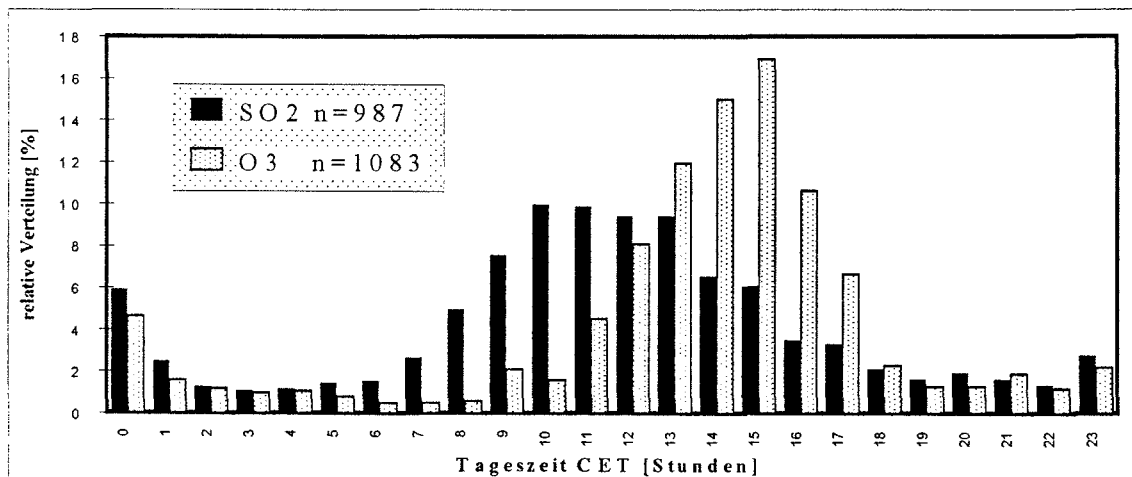


Abbildung 11 Relative Verteilung der Tagesmaxima der Konzentrationen von SO_2 und O_3

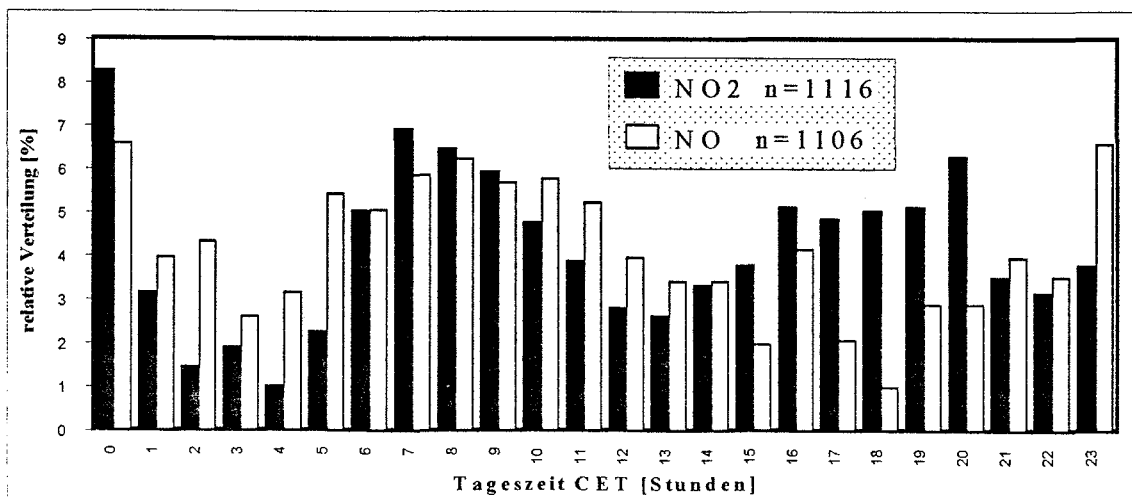


Abbildung 12 Relative Verteilung der Tagesmaxima der Konzentrationen von NO_2 und NO

3.3. Trockener Eintrag von SO₂ und Ozon

Alle angegebenen Berechnungen erfolgten nach einer *constant flux Approximation* (Angabe der Depositionsgeschwindigkeit v_d für $z=5,32$ m über Grund).

$$v_{d(z)} = \frac{F}{c_{(z)}} \quad (11)$$

Für SO₂, einem reaktionsträgen Spurengas, dürfte diese Annahme voll erfüllt sein, für Ozon stellt sie eine Näherung dar, da die Stickoxidkonzentrationen (NO_x) meist viel geringer als die Ozonkonzentrationen sind, und es damit möglich wurde, in erster Näherung chemische Reaktionen zu vernachlässigen. Alle Berechnungen der Flüsse und Depositionsgeschwindigkeiten erfolgten jeweils für einen Monat auf der Basis von Stundenmitteln unter der Berücksichtigung folgender Ausschlußkriterien:

- Ergebnis einer manuellen Sichtung der Immissionsverläufe in den unterschiedlichen Meßniveaus mit Ausschluß nicht plausibler Verläufe auf Grund von Defekten am Analysator oder/und im Ansaugsystem. Zeitweise wurden einzelne Meßniveaus ausgeschlossen, die durch den Verschluß der Ansaugfritten, u.a. Vereisungen, beeinflusst waren,
- keine Berechnung bei Windgeschwindigkeiten unter 0,5 m/s,
- keine Berücksichtigung von Daten mit gestörtem "fetch" (Anströmung über Datenerfassungscontainer, Windrichtungen innerhalb 85° bis 95°)
- Selektion von Stunden mit offensichtlich unrealistischem v_d (> 5 cm/s und < -5 cm/s)
- abschließende manuelle Sichtung der berechneten v_d , Entfernung und Dokumentation innerhalb der Zeitreihe nicht plausibel erscheinender Werte (Datenmenge $< 2\%$).

Zu allen stündlichen Flüssen und Depositionsgeschwindigkeiten ist es möglich, die Rauigkeitslänge z_0 und die Schubspannungsgeschwindigkeit u^* mit anzugeben. In jedem Fall wurde vor der Rechnung für einen Monat aus allen Stunden mit neutraler Schichtung der monatliche Mittelwert der Verdrängungshöhe d aus den Profilmessungen für Windgeschwindigkeit und Temperatur berechnet und in der anschließenden Berechnung des Monatsmittels der Depositionsgeschwindigkeit und des Flusses berücksichtigt. In Abbildung 13 sind die so ermittelten Monatsmittel der Verdrängungshöhe d dargestellt. Es ist jeweils das Wachsen des Grases im Frühjahr zu erkennen. Das sehr feuchte und warme Frühjahr 1995 ließ das Gras auf die größte Höhe innerhalb des Beobachtungszeitraumes anwachsen. Der Winter 1992/93 zeigt ein nicht so gut ausgeprägtes Minimum, die Ursache liegt hier darin, daß einzelne Pflanzen noch im Herbst aufwachsen konnten und nicht von einer Schneedecke bedeckt wurden.

Es ist in diesem Rahmen nicht möglich, alle berechneten Stundenmittel für Depositionsgeschwindigkeit und Fluß zu zeigen. Abbildung 14 veranschaulicht als Beispiel den stündlichen Ozonfluß für einen ausgewählten Monat; deutlich zu erkennen ist oft die Zunahme des Flusses zur Mittags- und Nachmittagszeit (Zunahme der Turbulenz bei steigenden Immissionskonzentrationen). Die stündlich berechneten Flüsse und Depositionsgeschwindigkeiten bilden die Berechnungsgrundlage für die weiter zu diskutierenden Monatsmittel. Dabei wird hier ein Monatsmittel immer nur dann ausgewiesen, wenn wenigstens zu 20 % der monatlichen Zeit (in Stunden) Daten für den Fluß und die Depositionsgeschwindigkeit verfügbar sind.

Die Abbildungen 15 und 16 zeigen den Verlauf der monatlichen Einträge und Depositionsgeschwindigkeiten für Ozon und Schwefeldioxid. Für Ozon werden mittlere Flüsse von 1,5 bis 9 kg pro Hektar und Monat errechnet, diese unterliegen jahreszeitlichen

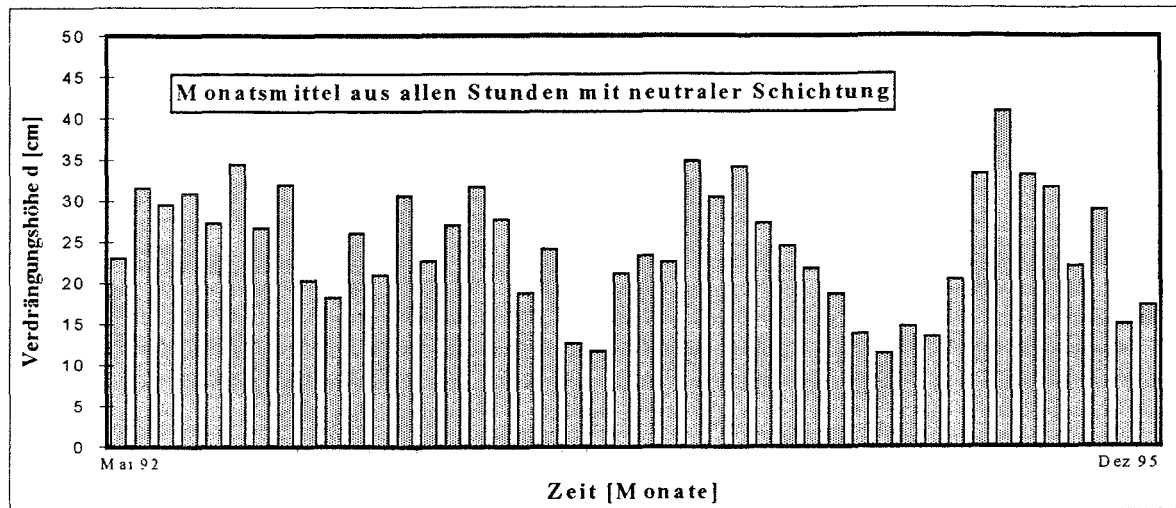


Abbildung 13 Verlauf der Monatsmittel der Verdrängungshöhe d über den Meßzeitraum

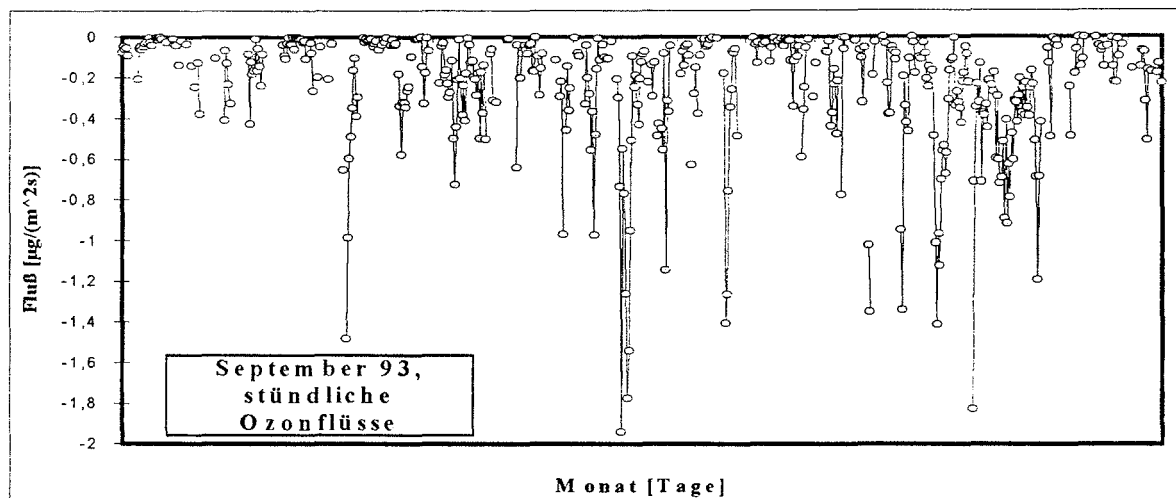


Abbildung 14 Beispiel stündlicher Ozonflüsse im September 1993 (Datenverfügbarkeit 62%)

Schwankungen und erreichen ihre höchsten Werte im Spätsommer und Herbst bei erhöhter Turbulenz. Die warmen Sommer 1994 und 1995 bedingen höhere Einträge, allerdings korrelieren diese Maxima nicht mit hohen Ozonkonzentrationen, wie sie z.B. Anfang August 94 auftraten, dies ist in Anbetracht der durch große Hitze und Trockenheit zu dieser Zeit abgestorbenen Pflanzen auch verständlich. Die Depositionsgeschwindigkeit für Ozon wird zwischen 0,2 und 1,2 cm/s bestimmt. Der mittlere Wert für die Ozondepositionsgeschwindigkeit erscheint mit ca. 0,6 bis 0,7 cm/s real (Padro 1996).

Für SO_2 -Schwefel werden mittlere Flüsse von 0,1 bis über 3 kg pro Hektar und Monat registriert, die Depositionsgeschwindigkeiten schwanken zwischen 0,1 und 0,7 cm/s und liegen damit auch in einem realistischen Bereich (Walcek et.al. 1986). Es werden hohe Einträge in Verbindung mit hohen Depositionsgeschwindigkeiten im Winter bei höheren Immissionskonzentrationen gefunden. In den Sommern liegen die Einträge bei niedrigeren Werten. Auffallend ist, daß im Jahre 1995 bei relativ niedrigen Immissionskonzentrationen (ausgenommen der Dezember 95) relativ hohe Einträge bedingt durch höhere Depositionsgeschwindigkeiten gefunden werden. Dies könnte ein Hinweis für das Überwinden einer Oberflächensättigung nach einer Übergangszeit (Sommer 93 bis 94) durch langjährig

hohe SO_2 -Immissions sein. Dafür spricht, daß mit Einbruch des strengen Winters 1995/96 - und damit erneut ansteigenden SO_2 -Konzentrationen - die Depositionsgeschwindigkeiten wieder sinken (Gleichung 11). Die hohe Depositionsgeschwindigkeit vom Februar 93 wurde während einer Totalüberschwemmung der Weide gemessen und ist nicht repräsentativ für den Standort. Die höheren v_d in Februar und März 1993 rühren teilweise von einer schmelzenden Schneedecke.

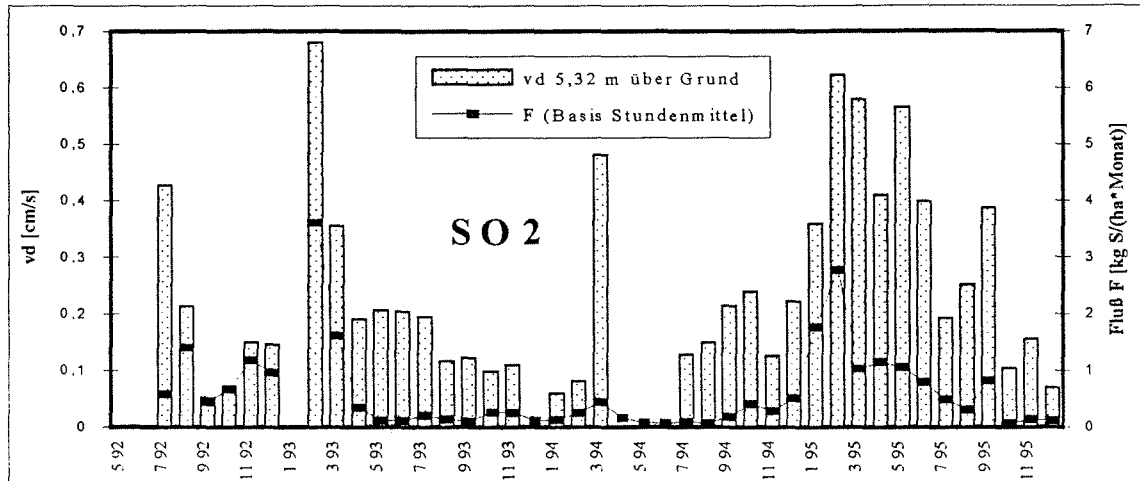


Abbildung 15 Eintrag und Depositionsgeschwindigkeit für SO_2 (Monatsmittel)

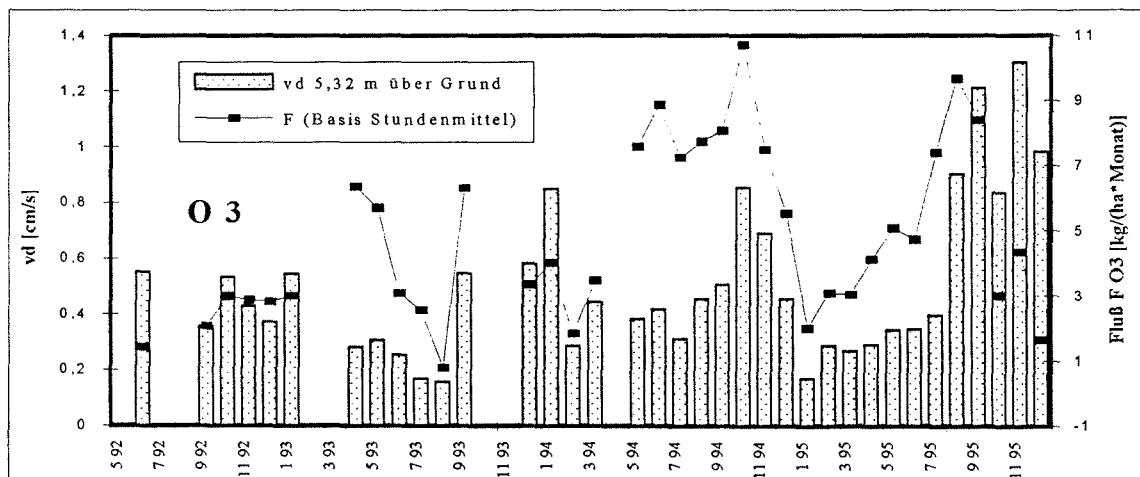


Abbildung 16 Eintrag und Depositionsgeschwindigkeit für Ozon (Monatsmittel)¹⁾

3.4.. Verhältnis von trockenem zu nassem Eintrag für Schwefel

Das Verhältnis trockener zu nasser Eintrag für eine Spezies in ein Ökosystem ist abhängig von der Quellferne, der Höhenlage, der atmosphärischen Stabilitätsverhältnisse und dem Bewuchs. Weiterhin hängt es von Zeitabschnitt zu Zeitabschnitt von der Niederschlagsmenge und der Art ihrer Verteilung ab. Es wurden zahlreiche Angaben zu diesem Verhältnis gemacht (u.a. Downing et al. 1995, Ro 1988), wobei der Anteil trockener Deposition oft nicht mit Hilfe mikrometeorologischer Methoden bestimmt wurde (Peters 1995, Winkler 1985, Dlugi et al. 1991). Für den Standort Melpitz ist eine solche Angabe möglich, da dort auch die nasse Deposition vermessen wurde (Brüggemann 1996).

1) Berechnung des Ozonflusses aus Höhen 3-8

Abbildung 17 zeigt den monatlichen prozentualen Anteil des trockenen Schwefeleintrages im Vergleich zur gefallenen monatlichen Niederschlagsmenge für Melpitz.

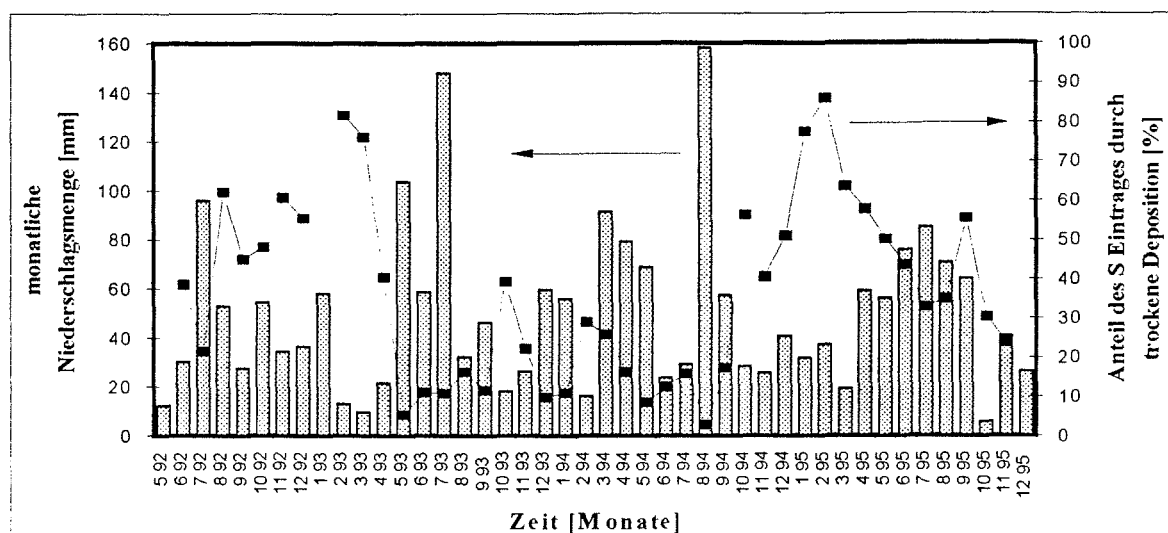


Abbildung 17 Prozentualer Anteil der trockenen Schwefelposition

Es zeigt sich eine Korrelation zwischen geringer Niederschlagsmenge und hohem Anteil des Eintrages durch trockene Deposition. Der mittlere Wert der nassen Deposition für Schwefel beträgt $(0,80 \pm 0,44)$, der der trockenen Deposition $(0,62 \pm 0,75) \text{ kg ha}^{-1} \text{ monat}^{-1}$.

Erwartungsgemäß ist die Steuerung für die trockene Deposition größer. Der mittlere Anteil der trockenen Deposition für Schwefel an der Gesamtdeposition (Aerosoleintrag und Monate mit weniger als 20 und mehr als 80 mm Niederschlag unberücksichtigt) beträgt $(54 \pm 14)\%$. Er unterliegt sehr starken jahreszeitlichen Schwankungen und hängt auch von der absoluten SO_2 -Immission ab.

4. Schlußfolgerungen

Die Registrierung der trockenen Deposition mit Hilfe der mikrometeorologischen Gradientenmethode war im Dauerbetrieb für SO_2 und O_3 möglich. Zu 75 bis 78% der Meßzeit lassen sich Datensätze für die Berechnung von Flüssen und Depositionsgeschwindigkeiten bereitstellen. Im Mittel konnten für 43 % (SO_2) und 41 % (O_3) der Stunden des Jahres Flüsse berechnet werden. Vergleichende Immissionsmessungen konnten beweisen, daß das Gradientensystem die Spurengasimmissionen für SO_2 , O_3 und NO_x gut quasikontinuierlich wiedergibt. Im Zeitraum Mai 92 bis Dezember 95 zeigt sich ein starker Rückgang der SO_2 -Immission. Die sommerliche Ozonkonzentration schien von Meßbeginn bis zum Sommer 1994 leicht anzusteigen, dies setzt sich 1995 nicht fort. Die NO_x Konzentration läßt innerhalb des Meßzeitraumes keine Veränderungen erkennen. In Melpitz prägt sich für SO_2 der typische mittlere Tagesgang eines Standortes im "industriellen Background" aus. Ozon wird als photochemisch gebildete Spezies ausgewiesen. Für die Ozondeposition ergibt sich keine auffallende Veränderung über den Meßzeitraum. Die höchsten Einträge werden im Spätsommer und Herbst registriert.

Für SO_2 gibt es hingegen Hinweise auf eine zeitweilige Verminderung der Depositionsgeschwindigkeit nach einem längerfristigen Einwirken hoher Immissionen. Es soll deshalb darauf hingewiesen werden, daß der vorhandene Datensatz zwar die Anwendung der sogenannten Inferentialmethode zuläßt, aber mit hoher Wahrscheinlichkeit für SO_2 unterschiedlich gute Übereinstimmungen zwischen der hier berechneten und einer modellierten

Depositionsgeschwindigkeit zu erwarten sind. Bei der Inferentialmethode wird die Depositionsgeschwindigkeit lediglich nach einem mathematischen Modell berechnet. In dieses Modell gehen Kenngrößen zur Vegetation und zur Mikrometeorologie ein. Die Depositionsgeschwindigkeit läßt sich letztlich berechnen als das Reziproke einer Summe von Einzelwiderständen, die in Analogie zu einem elektrischen Stromkreis parallel oder seriell verknüpft sind

$$\frac{1}{v_d} = R_a + R_b + R_c \quad (12)$$

Die wesentlichen Einzelwiderstände sind R_a , der aerodynamische Widerstand, R_b , der Boundary-Layer-Widerstand und R_c , der Canopy-Widerstand. Der Widerstand R_c wird weiter unterteilt in den Stomata- und Mesophyllwiderstand r_s bzw. r_{mes} , damit läßt sich die Aufnahme durch die Pflanzenstomata beschreiben. Der Widerstand r_{cut} beschreibt die Deposition auf der Kutikula.

$$R_c = \frac{1}{1/(r_s + r_{mes}) + 1/r_{cut}} \quad (13)$$

Durch einen Restwiderstand r_{res} kann die Abscheidung an der unbedeckten Bodenfläche berücksichtigt werden. Ein verbreitetes Berechnungsverfahren, das auf der Widerstandsanalogie beruht, ist das Big-Leaf-Modell (Hicks et al., 1987). Ein weiterer Ansatz ist das RADM Modell nach Walcek et al. 1986, modifiziert durch Wesely, 1989. Letzlich limitiert ein Canopy-Widerstand von 0 die maximal mögliche Depositionsgeschwindigkeit, die sich dann nur aus den beiden Widerständen R_a und R_b rekrutiert. Diese Überschreitung, die ein Hinweis auf fehlerhafte Berechnung wäre tritt bei den hier beschriebenen Ergebnissen nicht auf.

Das Verhältnis trockener zu nassem Deposition für SO_2 -Schwefel zu Sulfat-Schwefel wurde für Melpitz für den beschriebenen Zeitraum zu etwa 50 % abgeschätzt und schwankt stark von Monat zu Monat.

5. Literatur

- Atkins, D.H.F., Garland, J.A. (1974) *The measurement of deposition velocities for SO_2 and particulate material by the gradient method*. WMO Special Environment Report No. 3, Observation and Measurement of atmospheric pollutants. WMO 368, 579-594
- Beier, N., Schneewind, R. (1991) *Chemical reactions of gases in tubes of probing system and their influence on measured concentrations*, Ann. Geophysicae 9, 701-707
- Brüggemann, E. (1996) *Betrieb eines Meßnetzes zur Bestimmung des flächenhaften Eintrages und der zeitlichen Trends von Schadstoffen durch Niederschläge*, SANA-Abschlußbericht, Teilprojekt C 3.1.
- Businger, J.A., Wyngaard, J.-C., Izumi, J., Bradley, E.F. (1971) *Flux profile relationships in the atmospheric surface layer*, J. Atmos. Sci. 28, 181-189
- Businger, J.A. (1973) *Turbulent Transfer in the atmospheric surface layer*, in: Haugen, D.A. (Ed.), Workshop on micrometeorology. Amer. Meteor. Soc., Boston, 67-100
- Dlugi, R., Foken, Th., Kramm, G., Nestlen, M. und G. Spindler (1991) *Wissenschaftliches Begleitprogramm zur Bestimmung der Deposition im Rahmen des Verbundforschungsprojektes SANA*

- Downing, C.E.H., Vincent, K.J., Campbell, G.W., Fowler, D., Smith, R.I. (1995), *Trends in wet and dry deposition of Sulphur in the united Kingdom*, Water, air and Soil Pollution **85**, 659-664
- Erisman, J.W., Beier, C., Draaijers, G., Lindberg, S. (1994), Review of deposition monitoring methods, *Tellus* **46B**, 79-93
- Foken, Th. (1990) *Turbulenter Energieaustausch zwischen Atmosphäre und Unterlage*, in "Berichte des Deutschen Wetterdienstes", **180**, Offenbach
- Foken, Th., Dlugi, R., Kramm, G. (1995) *On the determination of dry deposition and emission of gaseous compounds at the biosphere-atmosphere interface*, *Meteorol. Zeitschrift*, N.F. **4**, 91-118
- Fowler, D. (1978) *Dry Deposition of SO₂ on agricultural crops*. *Atmos. Environ.* **12**, 369-373
- Gnauk, Th, Rolle, W. (1996) *A 3-year study of nonmethane hydrocarbons in surface air over Saxonia, Germany*, eingereicht für *J.Atmos.Chem.*
- Herbert, F., Kramm, G. (1981) *A discussion of approximate relations for transfer and deposition of trace constituents in the ABL*, In Herbert, F. (Editor) *Atmospheric trace constituents*. Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig/Wiesbaden, 27-40
- Hicks, B.B., Baldocchi, D.D., Meyers T.P., Hosker Jr., R.P., Matt, D.R. (1987) *A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities*, *Wat.Air Soil Poll.* **36**, 311-330
- Monin, A.S., Obuchov, A.M. (1954) *Osnovnye zakonomernosti turbulentnogo peremesivaniya v prizemnom sloe atmosfery*, *Trudy geofiz. inst. ANSSST.* **24** (151), 163-187. Übersetzung in: Goering, H. (Hrsg.) *Sammelband zur statistischen Theorie der Turbulenz*. Akademie-Verlag, Berlin, 1958, 199-226
- Oke, T.R. (1987) *Boundary Layer Climates*, Methuen Press, London, 2. Auflg.
- Padro, J. (1996) *Summary of Ozone dry Deposition Velocity Measurements and Model Estimates over Vineyard, Cotton, Grass and Deciduous Forest in Summer*, *Atmos. Environ.* **30**, 2363-2369
- Panofsky, H.A., Dutton, J.A. (1984) *Atmospheric Turbulence*, New York, John Wiley & Sons. 397 pp
- Peters, K. (1995) *Methoden zur Bestimmung der trockenen Deposition auf Pflanzenoberflächen*, *UWSF-Z. Umweltchem. Ökotox.* **7**, 337-352
- Raabe, A. (1991) *Die Höhe der internen Grenzschicht* - *Z. Meteorol.* **41**, 251-261
- Ro, C.U., Tang, A.J.S., Chan, W.H., Kirk, R.W., Reid, N.W., Lusi, M.A. (1988), *Wet and Dry Deposition of Sulfur and Nitrogen Compounds in Ontario*, *Atmos. Environ.* **22**, 2763-2772
- Rojas, C.M., Van Grieken, R.E., Laane, R.W. (1993), *Comparison of three dry Deposition models applied to field measurements in the southern bight of the north sea*, *Atmos. Environ.* **27** 363-370
- Smith, F.B. (1991) *Deposition processes for airborne pollutants*, *Meteorological Magazine* **120**, 173-182

- Spindler, G., Gnauk, Th., Rolle, W. (1989) *Ein einfaches naßchemisches Verfahren zur Charakterisierung von Immissionen*, Z. Chem. **29** 257-258
- Spindler, G., Mölders, N., Beier, N., Hansz, J., Kramm, G. (1996) *Determining the Dry Deposition of SO₂, O₃, NO, and NO₂ at the SANA Core Station Melpitz*, Meteorol.Z., N.F. (im Druck)
- Thom, A.S. (1975) *Momentum, Mass and Heat Exchange of Plant Communities*, in: *Vegetation and the Atmosphere*, Vol 1, Monteith, J.L. (Ed.), Academic Press, New York, London, San Francisco
- Walcek, C.J., Brost, R.A., Chang, J.S., Wesely, M.L. (1986) *SO₂, Sulfate and HNO₃ Deposition Velocities computed using regional Landuse and Meteorological Data*, Atmos. Environ. **20**, 949-964
- Wesely, M. L. (1989) *Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models*, Atmos. Environ. **23**, 1293-1304
- Winkler, P. (1985) *Verfahren der Depositionsmessung*, Staub Reinhaltung der Luft **45**, 256-260

Danksagung:

Die Autoren danken dem BMBF für die großzügige Förderung des Verbundforschungsvorhabens SANA (12/103551). Weiterhin danken Sie Herrn Akad.Dir. N. Beier und seinen Mitarbeitern vom Meteorologischen Institut der Ludwig-Maximilians-Universität München für die tatkräftige Unterstützung beim Aufbau der Melpitzer Station. Den Herren F.X. Meixner, G. Kramm, Th. Foken und R. Dlugi sei für viele Anregungen und Diskussionen im Zusammenhang mit Aufbau und Betrieb der Station gedankt. Nicht zuletzt gilt unser Dank unserem Mitarbeiter Herrn Dipl.Ing. J. Hanß für den zuverlässigen Betrieb der Forschungsstation.

Adresse der Autoren:

Dr. Gerald Spindler, Dr. Ulrich Teichmann, Dr. Detlef Theiss, Dr. Erika Brüggemann
Institut für Troposphärenforschung e.V. (IfT)
 Permoserstraße 15
04303 Leipzig

Der Artikel gibt Teilergebnisse aus dem Abschlußbericht zum Subprojekt B 3.1.
 "Langzeitmessungen des Schadstoffeintrages an der Intensivmeßstation Melpitz"
 des Forschungsverbundvorhabens SANA des BMBF wieder.