

Belastung von Wäldern in Nordwest-Niedersachsen durch Ammoniak und Ammonium in der Umgebung von Tierhaltungsanlagen

Teil 1. Bestimmung und Bewertung von Dosis-Größen

Karsten Mohr* und Ulrich Dämmgen**

Zusammenfassung

Intensive Tierhaltung führt zu Emissionen von NH_3 , die unerwünschte Wirkungen auf Böden und Vegetation haben. Genehmigungsverfahren für den Bau von Stallanlagen sehen daher die Überprüfung bestehender Belastungen und die Schätzung zusätzlicher Belastungen vor. Aus Kostengründen geschieht dies durch Modellierung. In dieser Arbeit werden die zur Genehmigung von Stallbauvorhaben eingesetzten Modelle zur NH_3 -Belastung mit Messungen verglichen. Die festgestellten Unterschiede sind teilweise erheblich.

- In Quellnähe gemessene NH_3 -Konzentrationen und die daraus abgeleiteten Zusatzkonzentrationen unterschreiten die nach TA Luft modellierten Zusatzkonzentrationen.
- Die aus den modellierten NH_3 -Konzentrationen mit Hilfe des TA-Luft-Ansatzes ermittelten zusätzlichen N-Depositionen stimmten gut mit den aus gemessenen Bestandesniederschlägen ermittelten Zusatzbelastungen überein. Die nach dem LAI-Verfahren berechneten Zusatzdepositionen erscheinen dagegen unrealistisch hoch.
- Die vom UBA bereitgestellten MAPESI-Daten zur Vorbelastung (Deposition) übertreffen die Messwerte aus den Bestandesniederschlägen in dieser Region erheblich. Die Unterschiede lassen sich neben den gängigen Unsicherheiten auf Mängel beider Ansätze zurückführen.
- Den modellierten Depositionen liegen Annahmen zu Depositionsgeschwindigkeiten zugrunde. Der Vergleich von gemessenen und modellierten Zusatzbelastungen legt nahe, dass der in TA Luft vorgeschlagene Wert von $1,0 \text{ cm s}^{-1}$ im Messgebiet die N-Einträge leicht unterschätzt, der von LAI angenommene Wert von $2,0 \text{ cm s}^{-1}$ jedoch die Einträge sicherlich überschätzt.

Schlüsselwörter: *Ammoniak, Ammonium, Dosis, Forst*

Abstract

Ammonia and ammonium loads to forests in Northwest Niedersachsen in the vicinity of animal houses **Part 1. Assessment and validation of doses**

Intensive animal production implies NH_3 emissions that result in unwanted effects on soils and vegetation. Hence, any authorization of erection or extension of animal houses presupposes an assessment of existing N loads and an estimate of potential future loads. Due to the costs involved, this is achieved by application of models. This work compares measured and modelled nitrogen loads in a region with high animal densities. In parts, the results differ considerably.

- NH_3 concentrations measured in the proximity of sources and the additional loads derived deviate from those obtained from model calculations using the German standard procedure (TA Luft).
- The additional N depositions derived from the modelled concentrations using TA Luft agree quite well with the measured additional N throughfall fluxes. Additional depositions modelled using the LAI procedure are apparently far too large.
- The German Federal Environment Agency (UBA) provides data for background N depositions (MAPESI). These data exceed measured throughfall N by far. The differences cannot be explained, even if one considers the uncertainties involved.
- Modelled depositions are based on assumed deposition velocities. The comparison between measured additional throughfall N and modelled additional depositions suggests that the deposition velocity proposed in TA Luft (1.0 cm s^{-1}) slightly underestimates the N input in the region considered, whereas the values assumed by LAI (2.0 cm s^{-1}) definitely overestimates those inputs.

Keywords: *ammonia, ammonium, dose, forest*

* Landwirtschaftskammer Niedersachsen, Mars-la-Tour-Str. 1-13, 26121 Oldenburg

** Johann Heinrich von Thünen-Institut, Institut für Agrarklimaschutz, Bundesallee 50, 38116 Braunschweig

Kontakt: Karsten.Mohr@LWK-Niedersachsen.de

1 Einleitung

Tierhaltungsanlagen setzen Ammoniak (NH_3) frei. Dies kann ebenso wie sein Reaktionsprodukt Ammonium (NH_4) und andere reaktive Stickstoff-Spezies (N-Spezies: gasförmig: Stickstoffdioxid, NO_2 , und Salpetersäure, HNO_3 ; in Partikeln Nitrat, NO_3 , und gelöster organischer Stickstoff, dissolved organic nitrogen, DON) empfindliche Pflanzen und Ökosysteme in der Umgebung solcher Anlagen schädigen (Garber und Schürmann, 1971; Heinsdorf und Krauss, 1991; Fangmeier et al., 1994; Adaros und Dämmgen, 1994; Krupa, 2003; Stevens et al., 2011). Sichtbare Gewebeschädigungen wurden erst bei NH_3 -Konzentrationen über $50 \mu\text{g m}^{-3}$ festgestellt (van Dijk et al., 2001). Schon deutlich niedrigere NH_3 -Konzentrationen ($\beta_{\text{NH}_3} < 10 \mu\text{g m}^{-3}$) führen als Folge der hiermit verbundenen N-Depositionen bei von Natur aus N-limitierten Ökosystemen wie Wäldern, Heiden und Magerrasen zu Veränderungen der Artenzusammensetzung, Nährstoffdysbalancen, Bodenversauerung und NO_3 -Austragen ins Grundwasser. Keine negativen Effekte sind (definitionsgemäß) bei Einhaltung und Unterschreitung der critical loads (CL) für N zu erwarten. Für die in Deutschland häufigsten Waldökosysteme bewegen sich die CL zwischen 10 und $20 \text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1} \text{N}$ (Bobbink et al., 2011). Sie werden jedoch in weiten Teilen Deutschlands bereits von der Hintergrund-Deposition (Vorbelastung, D_v) deutlich überschritten.

Die Wirkungen sind an NH_3 -Konzentrationen und N-Depositionen als Dosis-Größen gekoppelt, wobei die Dosis auch von meteorologischen Größen (Windgeschwindigkeit, Temperatur) und Eigenschaften des Rezeptors abhängt, insbesondere von der Rauigkeit des Bestandes, jedoch auch zusätzlich von der NH_4 -Konzentration im Apoplasten und dem daraus resultierenden NH_3 -Kompensationspunkt (Sutton et al., 1993).

Es ist erklärtes politisches Ziel, die Zahl der Ökosysteme, in denen CL überschritten werden, zu verringern (EU, 2001). Dabei kommt der Verringerung der Emissionen eine besondere Bedeutung zu. NH_3 -Konzentrationen und N-Depositionen werden insbesondere durch NH_3 -Quellen in der Nähe des Wirkortes beeinflusst. Deshalb ist beim Bau oder der Erweiterung von Stallanlagen zu prüfen, ob als Folge zusätzliche Emissionen mit nachteiligen Wirkungen auftreten können. Das hierzu dienende Regelwerk in Genehmigungsverfahren ist die „Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft“ (TA Luft) (BMU, 2002). Diese schreibt die getrennte Betrachtung der NH_3 -Konzentrationen β_{NH_3} und der daraus resultierenden Deposition D_N von reaktivem N vor. Die Ermittlung der Zusatzbelastung erfolgt im Genehmigungsverfahren aus Kostengründen über eine Modellierung. Hierzu ist gemäß BMU (2002) das Lagrange-Modell AUSTAL2000 zu verwenden. Zur Beurteilung der NH_3 -Wirkungen auf empfindliche Pflanzen und Ökosysteme werden nur allgemeine Hinweise zur Vorbelastung und zum Standort gemacht (TA Luft, Sonderfallprüfung).

Der von der Länderarbeitsgemeinschaft für Immissionschutz erarbeitete „Leitfaden zur Ermittlung und Bewertung von Stickstoffeinträgen“ (LAI, 2012) ergänzt und modifiziert diese Vorgehensweise. Gegenüber der bisherigen Praxis ergeben sich dabei folgende wesentliche Neuerungen:

- die Heraufsetzung der Depositionsgeschwindigkeit v_{d, NH_3}

von $1,0 \text{cm s}^{-1}$ auf $2,0 \text{cm s}^{-1}$ für die Berechnung der N-Depositionen auf Grundlage von VDI 3782, Bl. 5, und VDI 3783, Bl.13,

- die Einbeziehung der vom Umweltbundesamt bereitgestellten bundesweiten Daten der Hintergrundbelastung (UBA, 2012) und
- die Berücksichtigung der CL zur Beurteilung der N-Empfindlichkeit von Ökosystemen.

Vergleichende Messungen zu den mit AUSTAL2000 berechneten NH_3 -Konzentrationen und N-Depositionen sind sehr selten und lückenhaft. Für Verfahren, die – wie LAI (2012) – andere Depositionsgeschwindigkeiten v_{d, NH_3} als die von in der BMU (2002) genannten ($v_{d, \text{NH}_3, \text{TAL}} = 1,0 \text{cm}^{-1}$) verwenden, fehlen publizierte Überprüfungen durch Messungen.

Ziel dieser Arbeit ist, in einer landwirtschaftlich intensiv genutzten Region mit hoher Vorbelastung (Konzentration β_{v, NH_3} , Deposition $D_{v, \text{N}}$), die in der Umgebung von Tierhaltungsbetrieben modellierte NH_3 -Konzentrationen $\beta_{\text{NH}_3, \text{LAI}}$ und Depositionen $D_{z, \text{N}, \text{TAL}}$ und $D_{z, \text{N}, \text{LAI}}$ mit Messdaten zu vergleichen. Dabei werden statt der Zusatzdepositionen die leichter zu messenden Zusatzbestandesniederschläge $B_{z, \text{N}}$ herangezogen.

Im Teil 2 der Untersuchungen (Mohr und Dämmgen, 2013) werden die Auswirkungen langfristiger NH_3 -Zusatzdepositionen auf den Böden und Vegetation hoch belasteter Wälder ermittelt und modellierten Zusatzbelastungen gegenübergestellt.

2 Experimentelles Design

Im Rahmen einer 1½-jährigen Messkampagne (Oktober 2009 bis April 2011) sollten Datensätze gewonnen werden, die zu Klärung folgender Fragen dienen:

1. Ist die insbesondere in Regionen mit hohen Viehdichten relativ hohe regionale Hintergrundbelastung (Vorbelastung) sachgerecht angesetzt?

In immissionschutzrechtlichen Genehmigungsverfahren ist gemäß BMU (2002) die Gesamtbelastung, d. h. die Summe aus Vorbelastung (D_v) und Zusatzbelastung (D_z) bei der Bewertung von Schadstoffemissionen zu berücksichtigen. Weil Messungen zur Ermittlung von D_v und D_z unverhältnismäßig langwierig und aufwändig sind, werden sie in der Praxis berechnet. Daten zu D_v (MAPESI-Daten) werden vom Umweltbundesamt (UBA, 2012) zur Verfügung gestellt und basieren auf Modellierungen mit einer räumlichen Auflösung von 1km^2 .

Zur Validierung dieser modellierten Daten wurden Kronentraufmessungen an fünf Orten **außerhalb des Einflussbereiches von Stallanlagen** durchgeführt. Diese Methode erfasst nicht sämtliche N-Flüsse in das betrachtete Ökosystem (siehe unten), ist aber standardisiert und im europäischen forstlichen Monitoring üblich.¹

¹ Der mithilfe von Kronentraufmessungen ermittelte $B_{G, \text{N}}$ wird europaweit neben modellierten Daten zur Quantifizierung der N-Belastung von Wäldern herangezogen (z. B. Gehrmann et al., 2001; Lorenz et al., 2008; Verhagen und van Diggelen, 2006).

Der nur durch den **Waldrand** bedingte Einfluss auf die Verteilung der N-Bestandesniederschläge wurde durch Transektmessungen außerhalb des Einflussbereiches von Stallanlagen quantifiziert.

2. *Ist die mit Hilfe von Ausbreitungsrechnungen mit AUSTAL2000 ermittelte Zusatzbelastung (Konzentration, Deposition) in der Umgebung von Stallanlagen plausibel?*

Die im Genehmigungsverfahren geforderten Angaben zur Zusatzbelastung der NH_3 -Konzentrationen und N-Depositionen sind gemäß BMU (2002) mithilfe des Ausbreitungsmodells AUSTAL2000 zu berechnen.

Zur Validierung dieser Modelldaten wurden hierzu **in der Umgebung von jeweils zwei Stallanlagen** Messungen der NH_3 -Konzentrationen und N-Bestandesniederschläge entlang von Belastungsgradienten mit vier bzw. fünf Messorten durchgeführt. Die über den gesamten Messzeitraum gemittelten NH_3 -Konzentrationen ($\beta_{Z, \text{NH}_3, \text{mess}}$) und jährlichen N-Bestandesniederschläge ($B_{Z, \text{N}}$) wurden den modellierten Daten ($\beta_{Z, \text{NH}_3, \text{TAL}}$ und $D_{Z, \text{N}}$) gegenübergestellt.

3. *Wie sind die Auswirkungen der NH_3 -Konzentrationen- bzw. N-Depositionen auf Wälder, insbesondere in Regionen mit hoher Vorbelastung einzuschätzen?*

Da die Einflüsse von atmosphärischem reaktivem N sowohl über die Blätter als auch über den Boden wirksam werden können, sollten entsprechende Indikatorwerte gewonnen werden, die den Dosisgrößen gegenübergestellt werden. Wesentliche Indikatoren sind die Vitalität des Baumbestandes, die chemischen Bodeneigenschaften und die Biodiversität. Diese Arbeiten werden im Teil 2 dieser Arbeit (Mohr und Dämmgen, 2013) vorgestellt.

3 Depositionen, Bestandesniederschläge, Konzentrationen – Begriffe und Zusammenhänge

3.1 Wirkgrößen

Die eigentliche Wirkgröße ist die vom Bestand aufgenommene, verstoffwechselte und am Wirkort verfügbare N-Menge (Dämmgen und Grünhage, 1998). Diese Menge ist auf ökosystemarer Ebene experimentell nicht fassbar.

Als eine sinnvoll messbare Wirkgröße wird die N-Gesamtdeposition $D_{G, \text{N}}$ in den Bestand angenommen, die sich als Summe der nassen und trockenen Deposition von NH_4 , NO_3 und organischem N (ON) mit sedimentierenden Partikeln und der trockenen Deposition von NH_3 , NO_2 , gasförmiger HNO_3 und gasförmigem ON sowie von NH_4 , NO_3 und gelöstem organischem N (DON) in nichtsedimentierenden Partikeln ergibt.

Dabei lässt sich die Deposition sedimentierender Partikel direkt mit Sammlern erfassen, die der nichtsedimentierenden Spezies erfordert die Anwendung aufwändiger mikrometeorologischer Verfahren (VDI 4320, Bl. 1).

Für akute, auf die Einwirkung von gasförmigem NH_3 zurückzuführende Schäden ist die in der Nähe des Wirkortes bestimmte NH_3 -Konzentration in der Umgebungsluft β_{NH_3} eine gut messbare Dosisgröße.

3.2 Deposition und Bestandesniederschlag – Definitionen und Symbolik

Die Differenz der N-Deposition (Gesamtdeposition) $D_{G, \text{N}}$ an einem Messpunkt entlang eines Transektes und eines Messpunktes, der so weit von der Quelle entfernt ist, dass mit zunehmender Entfernung keine weiteren Änderungen mehr beobachtbar sind, wird als Zusatzdeposition $D_{Z, \text{N}}$ angesehen. $D_{Z, \text{N}}$ ist das Maß für den jeweils zusätzlichen, auf die betrachtete Quelle zurückführbaren Anteil der Dosis. Die nicht von dieser Quelle herrührende Belastung wird als Hintergrunddeposition bzw. Vorbelastung $D_{V, \text{N}}$ bezeichnet. Es gilt:

$$D_{G, \text{N}} = D_{V, \text{N}} + D_{Z, \text{N}}$$

Ebenso gilt für die NH_3 -Konzentrationen (Gesamt-, Vor- und Zusatzbelastung)

$$\beta_{G, \text{NH}_3} = \beta_{V, \text{NH}_3} + \beta_{Z, \text{NH}_3}$$

In der Praxis ist es üblich, statt der komplexen Messungen der Gesamtdeposition $D_{G, \text{N}}$ den sog. Bestandesniederschlag (Gesamtbestandesniederschlag) von N, $B_{G, \text{N}}$ zu bestimmen. $B_{G, \text{N}}$ ist definitionsgemäß keine Deposition², sondern der auf den Boden des Bestandes gelangende Massenstrom von N. Er wird als Massenstromdichte mit der gleichen Einheit wie die Deposition angegeben (Dämmgen et al., 1997; VDI 4320, Bl. 1).

Im Rahmen dieser Arbeit werden die Unterschiede, die sog. Zusatzbestandesniederschläge, $B_{Z, \text{N}}$ zwischen der $B_{G, \text{N}}$ und Vorbelastung $B_{V, \text{N}}$ entlang eines Transektes als experimentell zugängliches Maß für die Zusatzdeposition $D_{Z, \text{N}}$ angesehen, wobei sinngemäß angenommen wird:

$$D_{Z, \text{N}} \approx B_{Z, \text{N}} = B_{G, \text{N}} - B_{V, \text{N}}$$

4 Messorte, Messmethoden und Modelle

4.1 Das Untersuchungsgebiet

Das Untersuchungsgebiet liegt im westniedersächsischen Tiefland (atlantisch bis subatlantisch geprägtes Klima, durchschnittliche Jahresmitteltemperatur 9 °C, vornehmlich südwestliche Winde; Landwirtschaftskammer Niedersachsen, unveröffentlichte Daten aus dem Zeitraum 1989 bis 2009, Station Lingen). Die Untersuchungsstandorte befinden sich

² Die in der Kronentraufe der Waldbäume mit Bulksammlern gemessenen N-Flüsse berücksichtigen nicht den Anteil, der direkt im Kronenraum von den Pflanzen aufgenommen wird (Dämmgen et al., 1997; VDI 4320, Bl. 1).

Tabelle 1

Kurzbeschreibung der Messorte, Entfernungen zu den Stallanlagen siehe Tabellen 3 bis 7

Messort	Tierart/Lage	Quellstärke $\text{Mg a}^{-1} \text{NH}_3$	Messgrößen	Vegetation	Anordnung und Anzahl der Messpunkte	Messperiode	
						von	bis
En	Legehennen	3,42	N-Flüsse	Fichtenforst	Transekt, 5	10/2009	4/2011
Ma	Legehennen	3,83	NH_3 -Konzentrationen	Grünland	Transekt, 4	12/2010	4/2011
Ne	Mastschweine	1,58	NH_3 -Konzentrationen	Rasen	Transekt, 4	12/2009	4/2011
Ne	Mastschweine	1,58	N-Flüsse	Lärchenforst	Transekt, 4	10/2008	4/2011
Ho	emittentfernen		N-Flüsse	Kiefernforst	Einzelmesspunkt	1/1996	4/2011
Sa	emittentfernen		N-Flüsse	Kiefernforst	Einzelmesspunkt	1/1996	4/2011
Tw	emittentfernen		N-Flüsse	Lärchenforst	Einzelmesspunkt	10/2009	9/2010

schwerpunktmäßig in den Landkreisen Emsland und Vechta mit sehr intensiver Tierproduktion. ³ Hier wurden größere Stallanlagen bereits in den 1960er Jahren aus Gründen des Seuchen- und Immissionsschutzes in Waldgebieten errichtet.

Messorte. Bei der Auswahl der Messorte wurde auf eine hohe Reproduzierbarkeit der Bedingungen für den Vergleich der Messwerte mit den berechneten Modelldaten Wert gelegt. Dazu zählten insbesondere:

- Einzellage der Stallanlagen
- Beschränkung auf jeweils eine Tierart pro Messort
- kontinuierlicher Tierbesatz während der Messkampagne
- praxisübliche Haltungsverfahren
- keine emissionsmindernden Maßnahmen (z. B. Abluftreinigung, N-reduzierte Fütterung)
- Ventilation durch Zwangsentlüftung in mindestens 4 m Höhe

Einzelheiten gehen aus Tabelle 1 hervor.

Messpunkte. Abbildung 1 veranschaulicht beispielhaft die Lage der Messpunkte an einem Messort.

Messungen der NH_3 -Konzentrationen in der Nähe der Stallanlagen berücksichtigten zunächst die gute Anströmbarkeit und Erreichbarkeit der Sammler (sie befinden sich deshalb über Grünland bzw. Rasen). Wegen der Einbeziehung aktueller Winddaten bei der Datenauswertung war eine Ausrichtung der Messpunkte für die Konzentrationsmessungen in Hauptwindrichtung nicht erforderlich.

Die Messungen der Bestandesniederschläge in der Umgebung der Stallanlagen erfolgten an vier bzw. fünf Messpunkten entlang von Transekten in Hauptwindrichtung. Diese Messanordnung erlaubte schon während der Messkampagne eine entfernungsbezogene Plausibilitätsprüfung der Einzelwerte. Die durch lokale, standortspezifische Turbulenzen mitunter heterogene Verteilung der Belastung wie am Messort En (s. u.) kann ebenso abgebildet werden.

Die Messpunkte für Bestandesniederschläge zeichneten sich durch folgende Eigenschaften aus:

- geschlossener Waldrand zur Vermeidung von Unterströmungen der Baumkronen
- einschichtiger, mittelalter Bestand ohne Unterstand und

- einheitliche Baumart pro Messort, homogene Bestandesstruktur ohne größere Bestandeslücken, Kronenschlussgrad über 80 %.



Abbildung 1

Messort Ne mit Stallanlage (dunkles Rechteck) und je vier Messpunkten zur Ermittlung der NH_3 -Konzentrationen (β) über Rasen und der Bestandesniederschläge im Wald (B)

Zur Ermittlung der Zusatzbelastungen an den Messorten En, Ma und Ne erfolgten Messungen des Bestandesniederschlag $B_{G,N}$ und NH_3 -Konzentrationen β_{NH_3} über einen Zeitraum von 16 bis 19 Monaten entlang von Transekten (s. Tabellen 3 bis 6). Bei der Auswahl der Messpunkte standen optimale Standortbedingungen im Vordergrund. Ihre Lage zur Hauptwindrichtung

³ Genaue Ortsangaben werden aus Datenschutzgründen nicht vorgelegt.

tung war aufgrund der Berücksichtigung der aktuellen Winddaten bei der Modellierung weniger entscheidend. Der Wahl optimaler Entfernungsstufen im Nahbereich der Stallanlagen ging eine vorläufige Modellierung der NH_3 -Belastung voraus. In größerer Entfernung befindliche Stallanlagen spielten auch aufgrund ihrer geringen NH_3 -Emission keine Rolle.

An den seit 1996 betriebenen Messorten **Sa** und **Ho** wurde die Vorbelastung ($B_{G,N}$) in emittentenferner Lage, d. h. 2000 m bzw. 300 m von der nächstgelegenen Stallanlage, erfasst.

Am Messort **Tw** wurden über ein Jahr Depositionsmessungen zur Ermittlung von Waldrandeffekten auf den N-Eintrag ($B_{G,N}$) durchgeführt. Der Messtransect erstreckte sich über eine Entfernung, bei der nach den Ergebnissen von Messungen die Belastung durch „Auskämmung“ gegenüber der Vorbelastung nicht mehr feststellbar war.

4.2 Bestimmung der Ammoniak-Quellstärke (Emissionsrate)

Die Kenntnis der Emissionsmassenströme aus den Ställen ist eine Voraussetzung für Ausbreitungsrechnungen. Bei der Vorgehensweise nach BMU (2002) ist es üblich, die Emissionsmassenströme aus Tierplatzzahlen und Standardwerten für Emissionen je Tierplatz und Jahr (Emissionsfaktoren) zu berechnen. Die in der niederländischen Richtlinie (Staatscourant, 2007) genannten Werte weichen von den später in VDI 3894, Bl. 1, erschienenen Emissionsfaktoren nur unwesentlich ab (Tabelle 2).⁴ Am Messort **Ne** wurde der Trockenkot in einem gesonderten Gebäude gelagert. Die Emissionen aus dem Lager gingen in die Ausbreitungsrechnungen ebenfalls ein.

Parallel zu den Konzentrationsmessungen erfolgten zur Überprüfung und ggf. Anpassungen der Emissionsfaktoren für die Legehennenhaltung an **Ma** diskontinuierliche Messungen der Emissionsmassenströme. Die Ergebnisse bestätigten die Standardannahmen zu NH_3 -Emissionsfaktoren; im (gewichteten) Mittel deckten sich die gemessenen NH_3 -Emissionen der gesamten Anlage mit den aus Literaturdaten ermittelten Werten.

Tabelle 2

In Ausbreitungsrechnungen verwendete NH_3 -Emissionsraten pro Tierplatz (TP)

	NH_3 -Emissionsrate	Quelle
NT Sauen	4,2 kg TP ⁻¹ a ⁻¹	Staatscourant (2007)
Sauen mit Ferkel	8,3 kg TP ⁻¹ a ⁻¹	Staatscourant (2007)
Ferkel	0,6 kg TP ⁻¹ a ⁻¹	Staatscourant (2007)
Eber	5,5 kg TP ⁻¹ a ⁻¹	Staatscourant (2007)
Legehennen, Bodenhaltung	0,3157 kg TP ⁻¹ a ⁻¹	BMU (2002)
Legehennen, Kleingruppe	0,0389 kg TP ⁻¹ a ⁻¹	BMU (2002)
Kotlager	3,3 kg m ⁻² a ⁻¹	Brewer und Costello (1999)

⁴ Für die in den Emissionsinventaren verwendeten Emissionsfaktoren werden Unsicherheiten von 30 % gerechnet (Haenel et al., 2012; EMEP, 2009).

4.3 Messung von Ammoniak-Konzentrationen

Die NH_3 -Konzentrationsmessungen im Freiland wurden an den Messorten **Ma** und **Ne**⁵ an jeweils vier Messpunkten pro Transect gemäß VDI 4280, Bl. 3, und VDI 3869, Bl. 4, mit frei anströmbaren Passivsammlern des Typs „Zürcher“ durchgeführt. Das in Blatter und Nefel (1990) beschriebene Verfahren zur Messung der NH_3 -Konzentrationen in der Luft erwies sich in mehreren Untersuchungen als für Dauermessungen geeignet (Kirchner et al. 1999; Thöni et al., 2003; Schmitt et al., 2005) (je Messpunkt 2 Schutzgehäuse mit je 2 Sammlern; Exposition 1,5 m über Grund).

Zum Abstand der Messpunkte von den Quellen siehe Tabellen 3 und 4.

4.4 Messungen der Bestandesniederschläge

Die Erfassung der Bestandesniederschläge $B_{G,N}$ erfolgte durch Kronentraufmessungen. An den Hintergrundmessorten **Sa** und **Ho** wird seit 1996 der Sammlertyp „Mülden“ (NLÖ, 1993) eingesetzt (jeweils 16 Sammler auf einer Fläche von ca. 300 m² gleichmäßig verteilt).

In der Umgebung der Stallanlagen wurden je drei Sammler-Systeme vom Typ „Osnabrück“ (NLÖ, 1993) pro Entfernungsstufe installiert. Jedes System besteht aus sechs Trichter-Flasche-Einheiten, mit einer Auffangfläche jeweils 200 cm², sodass die von Bleeker et al. (2005) geforderte Mindestauffangfläche von 3140 cm² deutlich überschritten wurde. Die Installation erfolgte ausschließlich unter dem Schirm der Baumkronen.⁶

Der Ermittlung der Vorbelastung $B_{V,N}$ an den Stallstandorten dienten Sammler, die mehr als 400 m entfernt von den Stallanlagen aufgestellt waren; in dieser Entfernung lagen die stallbürtigen Zusatzbelastungen nach den Modellrechnungen auf sehr niedrigem Niveau, sodass diese Messdaten der Vorbelastung zugeordnet werden konnten.

Messungen von $B_{G,N}$ an einem Transect in Entfernungen von 0, 10, 30 und 1000 m vom Waldrand hin zum Bestandesinneren sollten am emittentenfernen Messort **Tw** Aufschluss über die Auswirkungen der „Auskämmung“ von gas- und partikelgebundenem N geben (Waldrandeffekt).

Die Probenahmeintervalle betragen bei mittleren Außentemperaturen von über 10 °C maximal zwei Wochen, bei niedrigeren Temperaturen vier Wochen. Die Vierwochen-Mischproben wurden auf NH_4^+ und NO_3^- sowie DON mit dem Continuous Flow Analyser analysiert (DIN EN ISO 11732; DIN EN ISO 13395).⁷

⁵ Aus datenschutzrechtlichen Gründen werden von diesem Messort keine Einzelwerte zu den Emissionsfaktoren der unterschiedlichen Haltungsformen (Bodenhaltung, Kleingruppenhaltung) genannt.

⁶ Aus einer einjährigen Vergleichsmessung am Messort (Sa) lässt sich schließen, dass fehlende Berücksichtigung der Bestandeslücken zu einer Überschätzung der N-Flüsse für den gesamten Bestand um 30 % führen kann.

⁷ Andere Inhaltsstoffe (Al, Ca, Fe, K, Mg, Mn, Na, S) wurden mittels ICP-OES analysiert DIN EN ISO 11885. Sie wurden zur Qualitätsüberprüfung herangezogen, jedoch nicht detailliert ausgewertet.

4.5 Wetterdaten

Für die Ausbreitungsrechnung wurden – nach vorausgegangener Überprüfung ihrer Übertragbarkeit – die meteorologischen Daten des Deutschen Wetterdienstes (DWD) von repräsentativen Stationen verwendet. Es handelte sich um stündliche Daten für Windrichtung, Windgeschwindigkeit und zur atmosphärischen Stabilität.

An **Ma** wurden Vergleichsmessungen in 100 m Entfernung vom Stall durchgeführt. Sie bestätigten, dass die Daten des DWD zutreffend und damit für Ausbreitungsrechnungen anwendbar waren.

4.6 Modellerte Vorbelastung (Deposition)

Daten zur Vorbelastung (Deposition) $D_{v,N}$ werden für ganz Deutschland vom Umweltbundesamt (UBA, 2012) zur Verfügung gestellt (MAPESI). Diese Daten werden aus Messungen der Nass-Deposition und aus modellierten Emissionen unter Verwendung von LOTOS-EUROS (Bultjes et al., 2011) modelliert. Die räumlich hoch aufgelösten Datensätze (1 km x 1 km) werden in mehrjährigen Abständen aktualisiert. Die in dieser Arbeit herangezogenen Daten beschreiben die Situation im Jahr 2007.

4.7 Modellierung der Zusatzbelastung

Die Berechnungen der NH_3 -Konzentrationen und N-Depositionen in der Umgebung der Stallanlagen erfolgten gemäß BMU (2002) mit dem Programm AUSTAL2000⁸ unter Beachtung der Rechenvorschriften, die sich aus VDI 3783, Bl. 13, Janicke (2009) und LAI (2012) ergeben. Die Ergebnisse der Rechnungen beziehen sich vorschriftsgemäß auf Durchtrittsflächen (Hüllflächen) in einer Höhe zwischen 0 und 3 m⁹. Für die emittentenbezogenen Messungen wurden für die Ausbreitungsrechnungen aktuelle Klimadaten von benachbarten für die Messorte repräsentativen Wetterstationen des Deutschen Wetterdienstes verwendet.

Die Berechnung der Zusatzdepositionen $D_{z,N}$ erfolgte nach zwei unterschiedlichen Verfahrensweisen: Zum einen wurde $D_{z,N}$ nach TA Luft (BMU, 2002) bestimmt. Diese als Zusatzdeposition $D_{z, \text{mod, TAL}}$ bezeichnete (modellerte) Deposition wurde dabei direkt mit Hilfe von AUSTAL2000 unter Verwendung einer Depositionsgeschwindigkeit $v_d = 1,0 \text{ cm s}^{-1}$ berechnet. Zum anderen wurde gemäß LAI-Leitfaden (LAI, 2012) ein weiteres Rechenverfahren verwendet, in dem für den betrachteten Waldstandort mit dem Ausbreitungsmodell AUSTAL2000 gemäß TA Luft ($v_{d, \text{NH}_3, \text{TAL}} = 1,0 \text{ cm s}^{-1}$) die NH_3 -Konzentrationen bestimmt und dann nach VDI 3782, Bl. 5, unter Verwendung von $v_{d, \text{NH}_3, \text{LAI}} = 2,0 \text{ cm s}^{-1}$ die Zusatzdeposition $D_{z, \text{mod, LAI}}$ berechnet wurde:

$$D_{z, \text{mod, LAI}} = \beta_{\text{NH}_3} \cdot \frac{M_{\text{N}}}{M_{\text{NH}_3}} \cdot v_{\text{D, NH}_3, \text{LAI}}$$

mit

$D_{z, \text{mod, LAI}}$	modellerte N-Zusatzdeposition nach LAI (2012) (in $\text{kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$)
β_{NH_3}	NH_3 -Konzentration (in $\mu\text{g m}^{-3}$)
M	Molmasse (in g mol^{-1})
$v_{d, \text{NH}_3, \text{LAI}}$	Depositionsgeschwindigkeit von NH_3 nach LAI (in cm s^{-1})

5 Ergebnisse

Die Messungen der NH_3 -Konzentrationen (Januar 2010 bis April 2011) erfolgten an Transekten an den Messorten **Ma** und **Ne**, die von Bestandesniederschlägen (August 2009 bis April 2011) an den Messorten **Ne** und **En**. Die Ergebnisse der Messungen wurden den berechneten Daten gegenübergestellt.

5.1 Gemessene NH_3 -Konzentrationen

In der Nachbarschaft der Stallanlagen von **Ma** und **Ne** wurden die NH_3 -Konzentrationen kontinuierlich in vier Entfernungsstufen gemessen. Die hochwüchsige Vegetation (Wald, Mais) bei **En** ließ keine Messungen der bodennahen NH_3 -Konzentrationen zu. Die Ergebnisse der vierwöchigen Messintervalle sind in Abbildung 2 dargestellt.

Die quellnächsten Messpunkte weisen die höchsten Konzentrationen auf (ausgezogene Linien). Die dritte und die vierte Entfernungsstufe sind voneinander kaum noch unterscheidbar; die Konzentration an der jeweiligen vierten Entfernungsstufe wird deshalb als Vorbelastung (Hintergrundkonzentration β_{v, NH_3}) angesehen. Die höchste Vorbelastung von $8 \mu\text{g m}^{-3}$ (Jahresmittel) wurde an dem im Landkreis Vechta gelegenen Messort **Ne** festgestellt. Dieses Niveau liegt deutlich über den Langzeitwerten anderer Messungen in Deutschland (Dämmgen et al., 2013) und erreicht den von der UN-ECE genannten critical level von $8 \mu\text{g m}^{-3}$ (Jahresmittelwert) (siehe hierzu Cape et al., 2009). Auch an dem ca. 80 km weiter nördlich gelegenen Messort **Ma** wurde mit $6 \mu\text{g m}^{-3}$ eine hohe mittlere Konzentration beobachtet. Sie entspricht den von Köster et al. (2012) in agrarisch intensiv genutzten Regionen Niedersachsens festgestellten hohen NH_3 -Konzentrationen.

Die Messwerte zeigen den typischen Jahresgang mit Maxima zur Zeit der Düngerausbringung. Der drastische Anstieg der NH_3 -Konzentrationen bei dem stallnächsten Messpunkt von **Ma** in der letzten Messperiode wurde durch die Leerung einer (sonst geschlossenen) Kotlagerhalle verursacht. Die Emissionen dieser NH_3 -Quelle wurden bei der Ausbreitungsrechnung einbezogen.

⁸ Benutzeroberfläche der Fa. Argusoft GmbH, Brühl

⁹ Als Hüllfläche wird die (fiktive) Durchtrittsfläche in der Höhe $d + z_0$ (d : Verschiebungshöhe, z_0 : Rauigkeitslänge)

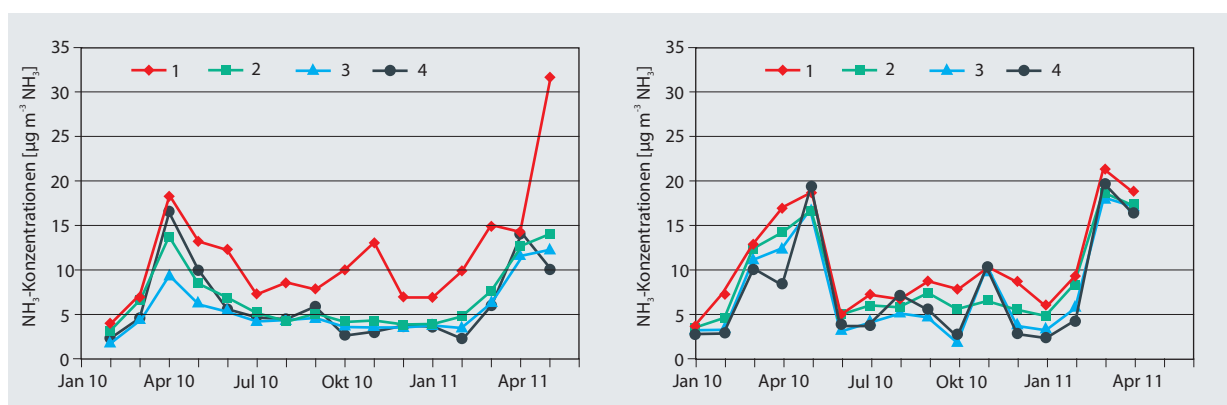


Abbildung 2

NH₃-Konzentrationen an den Messorten Ma (links) und Ne (rechts) für unterschiedliche Entfernungen zum Stall. Zu den Abständen der Messpunkte 1 bis 4 zum Stall siehe Tabellen 3 und 4.

5.2 Modellierte NH₃-Konzentrationen

Die für Ma und Ne gemessenen und modellierten Zusatzbelastungen (Konzentrationen $\beta_{Z, NH_3, ber}$ und $\beta_{Z, NH_3, TAL}$) und die gemessenen Konzentrationen $\beta_{G, NH_3, mess}$ sind in den Tabellen 3 und 4 einander gegenübergestellt.

Tabelle 3

Mittlere NH₃-Konzentrationen in µg m⁻³ an Ma

($\beta_{G, NH_3, mess}$: gemessene Gesamtkonzentration;

$\beta_{Z, NH_3, ber}$: Aus Messwerten berechnete Zusatzkonzentration;

$\beta_{Z, NH_3, TAL}$: nach TA Luft modellierte Zusatzkonzentration).

Negative Werte bedingt durch höhere Werte an der Hintergrundmessstelle.

	Entfernung von Stallanlage [m]			
	43	150	260	520
$\beta_{G, NH_3, mess}$	12	6,9	5,7	6,4
$\beta_{Z, NH_3, ber}$	5,6	0,5	-0,7	0,0
$\beta_{Z, NH_3, TAL}$	12,8	4,1	1,7	0,5

Tabelle 4

Mittlere NH₃-Konzentrationen in µg m⁻³ am Messort Ne (Symbole wie in Tabelle 3).

	Entfernung von Stallanlage [m]			
	44	150	225	470
$\beta_{G, NH_3, mess}$	10,5	8,8	7,9	7,6
$\beta_{Z, NH_3, ber}$	3,0	1,2	0,3	0,0
$\beta_{Z, NH_3, TAL}$	9,9	1,6	0,5	0,1

Die Zusatzbelastung $\beta_{Z, NH_3, ber}$ errechnet sich aus der Differenz der mittleren NH₃-Konzentrationen am stallfernen vierten Messpunkt und denen der stallnäheren Messpunkte. Gegenüber den modellierten NH₃-Konzentrationen sind die Unter-

schiede zum Teil erheblich. An den stallnahen Messpunkten betragen die mittels AUSTAL2000 berechneten NH₃-Konzentrationen an Ma mehr als das Doppelte und an Ne über das Dreifache der gemessenen NH₃-Konzentrationen. Mit der Abnahme der NH₃-Konzentrationen im weiteren Verlauf der Transmissionsstrecke näherten sich die aus Messwerten berechneten und die modellierten Konzentrationen $\beta_{Z, ber}$ und $\beta_{Z, TAL}$ einander an. 150 m von der Stallanlage an Ma entfernt betrug $\beta_{Z, NH_3, TAL}$ noch etwa 4 µg m⁻³, während sie nach den Messungen fast bei 0 µg m⁻³ lag. An Ne waren in diesem Entfernungsbereich die Unterschiede bereits vernachlässigbar. An Ma sanken die modellierten Konzentrationen hingegen erst bei Entfernungen über 260 m auf das Niveau von β_{V, NH_3} .

5.3 Gemessene N-Flüsse in der Kronentraufe

Die in Abbildung 3 für En und Ne dargestellten $B_{G, N}$ veranschaulichen deren räumlichen Gradienten. Im Unterschied zu den NH₃-Konzentrationen beziehen sich die Angaben zu $B_{G, N}$ ausschließlich auf hoch gerechnete Jahressummen, da die gemessenen 4-Wochen-Werte witterungsbedingt (insbesondere durch die Verteilung der Niederschlagsmengen) nur geringe Aussagekraft haben.

Am Messort En dagegen wurde der höchste N-Eintrag $B_{G, N}$ nicht am Waldrand (15 m vom Betrieb entfernt), sondern erst im Abstand von 45 m gemessen. Dies wird auf die geringe Höhe des Fichtenbestandes (ca. 15 m) und seine geringe Entfernung zum Stallgebäude zurückgeführt, wodurch der Waldrand von der Abluftfahne teilweise überströmt wird und der Auskämmungseffekt teilweise erst in der zweiten Entfernungsstufe wirksam wird. Weitere 45 m vom Stall entfernt sanken die $B_{G, N}$ auf 69 kg ha⁻¹ a⁻¹; in 170 m Entfernung wurden nur noch 32 kg ha⁻¹ a⁻¹ eingetragen. 290 m vom Stall entfernt wurden jedoch wieder 42 kg ha⁻¹ a⁻¹ gemessen. Dieser Messpunkt lag allerdings oberhalb einer kleinen Bodensenke. Als $B_{V, N}$ wurde deshalb das Mittel (37 kg ha⁻¹ a⁻¹) der letztgenannten Messwerte angenommen.

An Ne zeigte sich der zu erwartende Verlauf der N-Flüsse in der Kronentraufe mit einer maximalen Belastung von

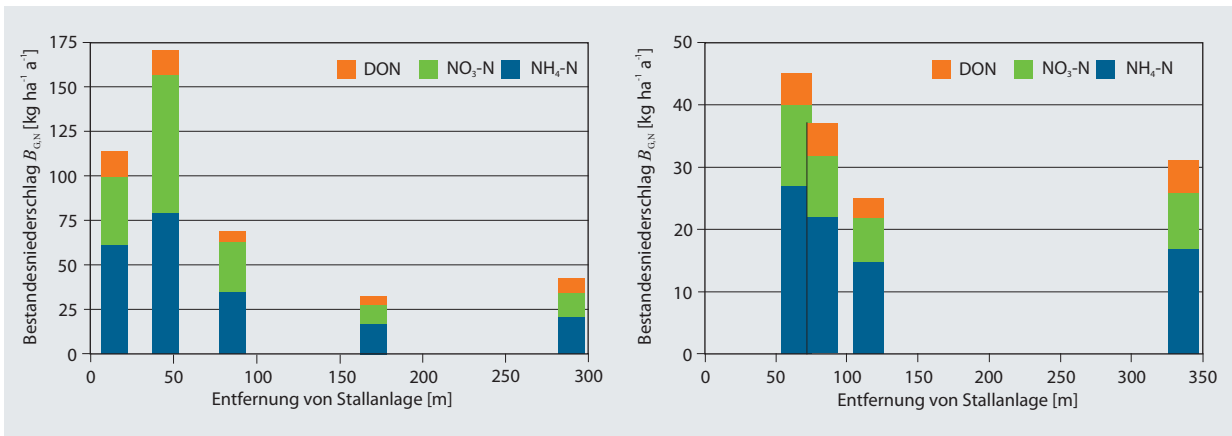


Abbildung 3

N-Bestandesniederschläge $B_{G,N}$ in der Nachbarschaft eines Legehennenbetriebes am Messort **En** (links) und eines Mast Schweinebetriebes am Messort **Ne** (rechts)

46 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ am Waldrand, die zum Bestandesinneren stetig abnahm. Das Niveau der $B_{V,N}$ wurde bereits bei 115 m vom Stall festgestellt. Die $B_{G,N}$ lagen am entferntesten Messpunkt mit 30 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ etwas über denen des stallnäheren Messpunktes (24 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$). Für $B_{V,N}$ wurde hieraus wiederum der Mittelwert gebildet (27 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$).

$\text{NH}_4\text{-N}$ nimmt den größten Anteil unter den in B_N enthaltenen N-Spezies ein. Allerdings nimmt der $\text{NH}_4\text{-N}$ -Anteil mit Annäherung zu den Stallanlagen an beiden Orten ab. Dies ist wahrscheinlich auf Umsetzungsprozesse im Kronenraum zurückzuführen (siehe unten).

Ein geringerer, jedoch nicht zu vernachlässigender N-Eintrag in den Boden erfolgt über lösliche organische N-Verbindungen (DON), die aus dem Kronenraum ausgewaschen oder durch mikrobielle Umsetzung gebildet werden (zur Herkunft von DON vgl. Cape et al., 2011; zur Bildung und Aufnahme von DON im Kronenraum siehe Cape et al., 2010). An **Ne** lag der N-Eintrag über DON an allen Messpunkten zwischen 3 und 6 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$, mit dem höchsten Wert ebenfalls am Waldrand. Bei **En** in der Nähe zum Waldrand wurden weitere 13 bis 14 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ DON eingetragen, in größerer Entfernung immer noch zwischen 4 und 8 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$.

5.4 Modellierte N-Depositionsraten

Die an **En** und **Ne** gemessenen und modellierten Depositionen sind in den Tabellen 5 und 6 einander gegenübergestellt. Die $D_{Z,ber}$ wurde aus Differenz von D_B und D_V berechnet (**En**: 37 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$; **Ne**: 27 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$; siehe oben). Hierdurch ergeben sich lokal negative Werte. Berücksichtigt wurde die Summe der analysierten N-Fractionen ($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$, DON). $\text{NO}_3\text{-N}$ und DON werden nicht oder nur in geringem Umfang direkt aus Stallanlagen emittiert, gelangen aber nach Ferntransport oder durch Umsetzung zu DON im Kronenraum in die Kronentraufenwässer.

Aus den Tabellen 5 und 6 ist ersichtlich, dass die berechneten Zusatzeinträge $B_{Z,N,ber}$ und die modellierten Zusatzdepositionen $D_{Z,N,TAL}$ und $D_{Z,N,LAI}$ zum Teil so große Unterschiede aufweisen, dass sie nicht allein auf kleinräumige Standortanomalien oder Messunsicherheiten zurückzuführen sind.

Aufgrund der erwähnten Überströmungs- und Auskämmeffekte erreichten die Messwerte an **En** erst in der zweiten Entfernungsstufe ihr Maximum. Derartige Überströmungseffekte im Stallnahbereich sind mit dem verwendeten Ausbreitungsmodell nicht darstellbar. Unter Berücksichtigung der beiden stallnahen Messpunkte zeigt sich jedoch eine hohe Übereinstimmung der Messwerte ($B_{G,N}$ von 77 und 134 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$) mit den Ergebnissen nach BMU (2002) ($D_{Z,N,TAL}$ von 133 und 72 $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$). In größerer Entfernung lagen die Ergebnisse beider Ansätze, mit Ausnahme der vierten Entfernungsstufe, ebenfalls auf gleichem Niveau. Die Unterschiede der nach beiden Ansätzen ermittelten Daten sind insgesamt gering.

Tabelle 5

Am Messort **En** gemessene N-Bestandesniederschläge ($B_{G,N}$) und die berechneten Zusatzbestandesniederschläge ($B_{Z,N,ber}$) sowie die nach TA Luft ($D_{Z,mod,TAL}$) und LAI ($D_{Z,mod,LAI}$) ermittelte Zusatzdeposition (alle Angaben in $\text{kg ha}^{-1} \text{a}^{-1}$ N).

	Entfernung von Stallanlage [m]					$B_{V,N}$
	15	45	85	170	290	
$B_{G,N}$	114	171	69	32	42	47
$B_{Z,N,ber}$	77	134	32	-4,9	4,9	
$D_{Z,N,TAL}$	133	72	28	10	5,6	
$D_{Z,N,LAI}$	279	140	51	17	9,8	

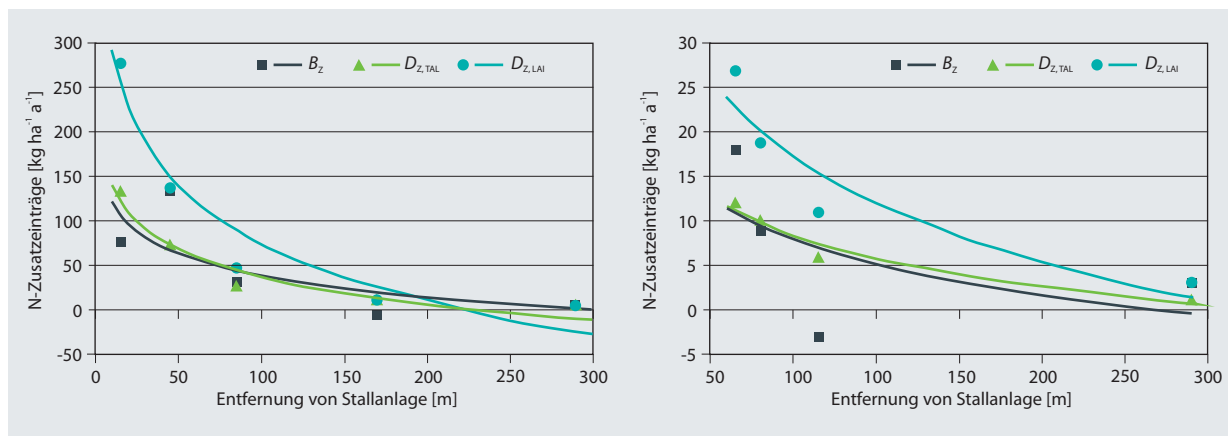


Abbildung 4 N-Zusatzeinträge als Bestandesniederschläge B_N und Depositionen D_N . Links: Messort **En**, rechts: Messort **Ne**.

Tabelle 6

Am Messort **Ne** bestimmte N-Einträge und Zusatzeinträge, Symbole und Einheiten wie in Tabelle 5.

	Entfernung von Stallanlage [m]				$B_{V,N}$
	65	80	115	340	
$B_{G,N}$	46	37	24	30	27
$B_{Z,N,ber}$	18	9	-3,0	3,0	
$D_{Z,N,TAL}$	12	10	5,9	1,2	
$D_{Z,N,LAI}$	27	19	11	3,1	

An **Ne** sind die Verhältnisse - auf niedrigerem Belastungsniveau - mit denen am Messort **En** vergleichbar. $B_{Z,N,ber}$ liegt hier am Waldrand mit $18 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1} \text{ N}$ über den nach TA Luft bestimmten Werten $D_{Z,mod,TAL}$, in größerer Entfernung kehren sich die Verhältnisse jedoch um.

Glättet man die Beziehungen zwischen $B_{Z,N,ber}$, $D_{Z,N,TAL}$ und $D_{Z,N,LAI}$ unter Verwendung einer logarithmischen Funktion gemäß

$$B_{Z,N,ber} = a_B + b_B \cdot \ln x$$

$$D_{Z,N,TAL} = a_{TAL} + b_{TAL} \cdot \ln x$$

$$D_{Z,N,LAI} = a_{LAI} + b_{LAI} \cdot \ln x$$

mit Konstanten a und b und der Entfernung x von der Quelle, so ergeben sich für $B_{Z,N,ber}$ und $D_{Z,N,TAL}$ Kurven, die nahezu deckungsgleich sind. Die Ausgleichskurve für $D_{Z,N,LAI}$ liegt deutlich höher als beide genannten: Nach dem LAI-Verfahren betragen die Depositionsraten $D_{Z,N,LAI}$ an der Mehrzahl der Messstellen etwa das Doppelte der nach TA Luft modellierten und der gemessenen N-Flüsse.

5.5 Messungen zu Waldrandeffekten

Am emittentenernen Messort **Tw** wurden Messungen durchgeführt, mit denen der Einfluss eines Waldrandes auf den Bestandesniederschlag quantifiziert werden sollte. Abbildung 5 zeigt deutlich den Mehreintrag, der auf die Abscheidung von N („Auskämmung“) aus der in den Bestand einströmenden Luft zurückgeführt wird. Es wird auch deutlich, dass dieser Einfluss auf die ersten Dekameter begrenzt ist und nicht zur Erklärung der Zusatzbelastungen an den Messorten **En** und **Ne** beiträgt.

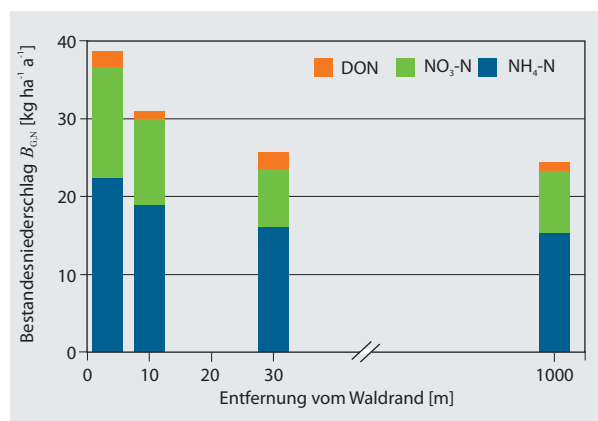


Abbildung 5 N-Bestandesniederschläge $B_{G,N}$ am Waldrandtransekt des Standortes **Tw**

5.6 Einordnung der Vorbelastung, zeitliche Repräsentativität

An den emittentenernen Messpunkten der Messorte **En** und **Ne** sowie an **Tw**, **Ho** und **Sa** wurden über einen Zeitraum von mindestens 12 Monaten Messungen von $B_{G,N}$ in Nadelwäldern durchgeführt. Sie wurden als gemessene Vorbelastungen $B_{V,N}$ angesehen (Tabelle 7). An den Messorten **Ho** und **Sa** wurden bereits mehr als zehn Jahre entsprechende Messun-

gen durchgeführt, die zur Bewertung der zeitlichen Repräsentativität dienen können. Im zehnjährigen Mittel wurden an **Ho** 23 kg ha⁻¹ a⁻¹ und an **Sa** 24 kg ha⁻¹ a⁻¹ gemessen, im Untersuchungszeitraum waren dies nur jeweils 20 kg ha⁻¹ a⁻¹. Die Differenz von ca. 15 % entspricht etwa der Differenz zu den Niederschlagsmengen im Projektzeitraum.

In Tabelle 7 werden die entsprechend korrigierten Langzeitwerte den vom Umweltbundesamt (UBA) bereitgestellten Daten (MAPESI) zur Vorbelastung (UBA, 2007) gegenübergestellt.

Tabelle 7

Bestandesniederschläge zur Vorbelastung ($B_{V,N}$) (für **Ho** und **Sa** Langzeitmittel, für **En**, **Ne** und **Tw** unkorrigierte Messwerte) und die UBA-Vorbelastungsdaten zur N-Deposition $D_{V,N,UBA}$ (UBA, 2012). Angaben in kg ha⁻¹ a⁻¹ N.

	Standort				
	En	Ne	Ho	Sa	Tw
$B_{V,N}$	37	27	23	24	25
$D_{V,N,UBA}$	56	56	61	41	43

Die Unterschiede zwischen den vom UBA veröffentlichten MAPESI-Daten zur N-Gesamtdeposition und den aus Bestandesniederschlägen ermittelten Vorbelastungen sind erheblich. Dabei übersteigen die modellierten Depositionen die Bestandesniederschläge erwartungsgemäß in jedem Fall. Auch die räumliche Verteilung dieser Daten und ihrer jeweiligen Differenzen unterscheidet sich sehr. Die höchste $D_{V,N,UBA}$ wurde am Messort **Ho** (61 kg ha⁻¹ a⁻¹), die höchste $B_{V,N}$ am Messort **En** (37 kg ha⁻¹ a⁻¹) ermittelt. Unter den etwa 1,5 km hiervon entfernten Japanlärchen des Messortes **Ne** wurden 27 kg ha⁻¹ a⁻¹ gemessen. Die in einer Auflösung von 1 km² kartierten MAPESI-Daten weisen für diesen Bereich denselben Wert des benachbarten Rasters vom Messort **En** auf. Die Differenz der Messdaten beider Messorte von 10 kg ha⁻¹ a⁻¹ resultiert vermutlich aus den unterschiedlichen Oberflächeneigenschaften der nur halbjährig benadelten Lärchen bei **Ne**. Hiervon unterscheiden sich die Ergebnisse der Kronentraufemessungen $B_{G,N}$ an dem ca. 90 km entfernt liegenden Lärchenbestand **Tw** mit 25 kg ha⁻¹ a⁻¹ kaum. An diesem Messort wurden durch Transektmessungen auch bei fehlendem Stalleinfluss maximale Einträge von 38 kg ha⁻¹ a⁻¹ am Waldrand festgestellt (Abbildung 5). Die Differenz von 13 kg ha⁻¹ a⁻¹ beschränkte sich allerdings auf einen schmalen Saum und hatte bereits nach 30 Metern das Niveau der Vorbelastung $B_{V,N}$ erreicht.

6 Diskussion

Durch Messungen und Modellierungen wurden im nordwestdeutschen Raum deutliche Belastungen der Wälder durch hohe NH₃-Konzentrationen und N-Einträge festgestellt. Die Untersuchungen zeigen, dass die für Waldökosys-

teme unbedenklichen N-Depositionen (critical loads) – unabhängig vom Bestimmungsverfahren – stets, zum Teil aber erheblich überschritten wurden. Die daraus resultierenden ökologischen Konsequenzen kommen in den Kompartimenten Baumbestand, Bodenvegetation, Boden und Wasser mehr oder minder deutlich zum Ausdruck. Auf Dosis-Wirkungs-Beziehungen an den benachbarten Stallstandorten wird in Mohr und Dämmgen (2013) gesondert eingegangen.

Die vergleichenden Bestimmungen der NH₃-Konzentrationen (gemessene und modellierte Zusatzkonzentrationen) und N-Flüsse (gemessene Zusatzbestandesniederschläge und modellierte Zusatzdepositionen) zeigen große Unterschiede. Bei den Flüssen lagen die Unterschiede sowohl gegenüber der mit AUSTAL2000 berechneten Zusatzbelastung ($D_{Z,N,TAL}$) als auch der vom UBA berechneten Daten zur Vorbelastung ($D_{V,N,UBA}$) in einer Größenordnung von 100 % (Tabellen 5 und 6). Die Gründe hierfür ließen sich im Rahmen dieser Studie nur teilweise erklären:

6.1 Ammoniak-Konzentrationen

NH₃ führt erst bei mittleren Konzentrationen von über 50 µg m⁻³ bei Gefäßpflanzen zu (direkten) Gewebeschädigungen (Krupa, 2003; van Dijk et al., 2001), die von den Messergebnissen auch in der Nähe der Stallanlagen selbst an den nächstgelegenen Messpunkten nicht erreicht wurden.

Die NH₃-Konzentration hat jedoch eine große Bedeutung für die Höhe der Dosisgröße der N-Deposition. Hier ist die trockene Deposition von NH₃ abhängig von der Konzentrationsdifferenz zwischen Umgebungsluft und Blattoberfläche und wird nach der Inferentialmethode durch Multiplikation von β_{Z,NH_3} mit der Depositionsgeschwindigkeit ermittelt.

Zur Modellierung der NH₃-Konzentrationen in der Umgebung von Stallanlagen ($\beta_{Z,NH_3,TAL}$) wurde in dieser Studie gemäß BMU (2002) das Programm AUSTAL2000 verwendet. Die erhaltenen Werte lagen deutlich über den Ergebnissen, die anhand von Vergleichsmessungen mit Passivsammlern ermittelt wurden ($\beta_{Z,NH_3,ber}$). Die festgestellten Unterschiede von 100 bis 200 % (Tabelle 3) ließen sich durch Änderung der Rauigkeitswerte im Modell nicht erklären. Ähnlich vergleichende Untersuchungen, die Hartmann et al. (2004) im Zuge einer Validierung von AUSTAL vornahm, ergaben ebenfalls höhere Messdaten.

6.2 N-Depositionen und -Bestandesniederschläge

Systematische Unterschiede. Es ist davon auszugehen, dass mit Messungen der Kronentraufe nicht der gesamte N-Eintrag in den Wald erfasst wird (Dämmgen et al., 1997; Dämmgen, 2005). Pflanzen sind in der Lage, oberirdisch, d. h. überwiegend über das Blatt, reaktive N-Spezies aufzunehmen und zu assimilieren (z. B. Lorenz et al., 2008). Dieser Anteil ist bei Wäldern nicht direkt messbar, sondern nur in Kombination mit mikrometeorologischen Verfahren erfassbar. Die von Ulrich (1991) und Draajers und Erisman (1995) beschriebenen Verfahrensweisen zur Erfassung der Aufnahme partikulärer N-Verbindungen im Kronenraum (Kronenraumbilanzierungsansatz) ergeben unter norddeutschen Verhältnissen

keine nennenswerten Unterschiede zu den gemessenen N-Flüssen im Kronenraum (Dämmgen, 2005).¹⁰

Zusatzbelastung. Für die Ermittlung der Zusatzbelastung ($D_{z,N}$) wurden die Ergebnisse zweier Rechenverfahren den Messergebnissen von Kronentraufmessungen einander gegenübergestellt. Gegenüber den nach TA Luft (BMU, 2002) berechneten Werten waren die Unterschiede der Ergebnisse zu den Kronentraufmessungen gering. Dies bedeutet, dass mit diesem Verfahren oberirdische N-Aufnahmeraten im Wald offenbar nicht berücksichtigt und somit die wirklichen N-Einträge unterschätzt werden. Inwieweit diese Feststellung für andere N-empfindliche Ökosysteme zutrifft, bleibt offen.

Deutlich unterschiedliche N-Flüsse ergaben sich zwischen den Messwerten und den nach LAI (2012) ermittelten Modellwerten. Die Differenz von durchschnittlich 100 % ist zumindest teilweise auf die o.g. systematischen Fehler zurückzuführen. Inwieweit die N-Massenflüsse von etwa 20 bis 100 kg ha⁻¹ a⁻¹ über den Kronenraum, der Bodenvegetation und/oder der Humusaufgabe aufgenommen werden, lässt sich in dieser Studie nicht beantworten. Aufgrund der ungünstigen Bedingungen für mikrometeorologische Untersuchungen an emittentennahen Standorten ließe sich dieser Sachverhalt möglicherweise durch vertiefende Untersuchungen klären (z. B. ¹⁵N-Messungen, N-Bilanzierungen, Kompensationspunkt). Bei Waldökosystemen wird von oberirdischen Aufnahmeraten ausgegangen, die in einer Größenordnung zwischen 20 und 30 % der über Bestandesniederschlag eingetragenen N-Flüsse liegen (BMELF, 1997; Gehrman et al., 2001; Papen, 2005; Zimmermann et al., 2006; Verhagen und van Diggelen, 2006; Loubet et al., 2009).

Die über Pflanzenoberflächen aufgenommenen N-Massenströme müssen assimiliert werden (Speicherung als Aminosäuren oder anderen organischen Substanzen), was bei einer bereits hohen N-Versorgung pflanzenphysiologisch limitiert ist. Bei hohen N-Aufnahmeraten über Blätter oder Nadeln kommt es zu einer Anreicherung von NH₄ im Zellsaft. Dieser Prozess steht in einer dynamischen Beziehung zu den NH₃-Konzentrationen in der Außenluft und steuert direkt über Austauschprozesse im Blatt oder über den Boden indirekt den Kompensationspunkt, der eine bedeutende Eingangsgröße zur Berechnung der Depositionsgeschwindigkeit (v_{d,NH_3}) darstellt (Nielsen et al., 2002; Loubet et al., 2009; BMELF, 1997). Sutton et al. (1993) postulieren daher einen negativen Zusammenhang zwischen den gemessenen NH_x-Konzentrationen und v_{d,NH_3} .

Durch saure Vegetationsoberflächen erhöht sich der Abscheidegrad des alkalischen NH₃. Aus Stickstoffoxiden und NH₃ gebildetes NH₄NO₃ bleibt bei niedrigem pH chemisch stabil. Bei pH-Werten der Vegetationsoberflächen, die nach

den Ergebnissen dieser Studie und Dämmgen (2005) auch in größerer Entfernung von NH₃-Quellen um 6 liegen, können bereits Umgebungstemperaturen von über 13 °C zu einer Thermolyse unter Freisetzung von NH₃ und HNO₃ führen (Huebert, 1988; Mohr, 2012). Diese bidirektionalen Flüsse bleiben von einem Partikelmodell wie AUSTAL2000 unberücksichtigt.

Die Inferentialmethode stellt generell einen konservativen Ansatz dar (VDI 3783, Bl. 13); zusammen mit einer unter konservativen Gesichtspunkten gewählten v_{d,NH_3} erklärt sich die deutliche Überschätzung der nach LAI (2012) modellierten $D_{z,N}$. Dies wird auch von Straub et al. (2013) bei einer vergleichenden Modellierung heraus gestellt. Jedoch ergab der von diesen Autoren präferierte Rechenansatz (Methode 3) bei einer nachträglich vorgenommenen Vergleichsrechnung nahezu keine Unterschiede zu der nach LAI (2012) modellierten $D_{z,N}$. Der bei Straub et al. (2013) nicht näher erläuterten Verfahrensweise liegen möglicherweise Standortverhältnisse zugrunde, die – anders als in dieser Studie – durch größere Entfernungen zu Stallanlagen oder Waldflächen geringere Rauigkeiten voraussetzen

Auch unter Berücksichtigung einer oberirdischen N-Aufnahme durch Addition von weiteren 30 % zu $B_{z,N}$ verbleibt eine Diskrepanz von ca. 70 % zur der nach LAI (2012) modellierten $D_{z,N}$. Unter der Annahme, dass die verwendete v_d von 2,0 cm s⁻¹ zutreffender ist als der bei BMU (2002) genannte Wert, lässt sich diese Diskrepanz nur durch die Überschätzung der modellierten NH₃-Konzentrationen erklären. Dies wird anhand der Vergleichsmessung in 1,5 m Höhe bestätigt, nach denen die modellierten NH₃-Konzentrationen über den Transekt gemittelt um etwa den Faktor 3 über den Messwerten liegen.

Vorbelastung. Größere Unterschiede von $B_{V,N}$ der einzelnen Messorte sind im Wesentlichen in einer abweichenden Struktur der Waldbestände (Höhe, Baumart, Waldrand) begründet, wie sie auch bei Dämmgen (2005) dokumentiert wurden. Die am Waldrand des Messortes **Tw** festgestellte Flussrate $B_{V,N}$ von 38 kg ha⁻¹ a⁻¹ liegt auf dem Niveau der für dieses Gebiet modellierten Vorbelastung $D_{V,N}$ von 43 kg ha⁻¹ a⁻¹ (UBA, 2012), allerdings deutlich über der im Bestandesinneren gemessenen $B_{G,N} = B_{V,N}$ von 25 kg ha⁻¹ a⁻¹. Der gemessene Anstieg um ca. 50 % gegenüber der $B_{V,N}$ unmittelbar am Waldrand beschränkt sich auf einen schmalen Saum. Innerhalb von weniger als 30 m wird das Niveau der Vorbelastung erreicht. Vergleichbare Entfernungen zum Waldrand werden bei Verhagen und Diggelen (2006) sowie Wuyts et al. (2008) genannt; allerdings gehen Spangenberg und Kölling (2004) von lokal deutlich breiteren Waldsäumen aus. Bei Depositionsmodellen mit einer räumlichen Auflösung von 1 km x 1 km (z. B. UBA, 2012) sind derartige Waldrandsituationen nicht darstellbar und unter konservativen Gesichtspunkten mit einem interpolierten Wert für die $D_{V,N}$ zu berücksichtigen. Kleinere Waldflächen mit einem relativen großen Waldrandanteil wie an den Standorten **En** und **Tw** sind hierdurch höheren N-Depositionen ausgesetzt, sodass bei einer angenommen maximalen oberirdischen N-Aufnahmerate von 30 % die modellierte $D_{V,N}$ plausibel erscheint. Bei den größeren Wäldern der anderen Messorte liegt die Differenz zu den Vorbelastungsdaten jedoch auf einem Niveau, das anhand der Messdaten zur $B_{V,N}$ auch bei konservativer Betrachtung nicht nachvollziehbar ist.

¹⁰ Die eingesetzten Methoden erfassen bzw. errechnen jeweils unterschiedliche Depositionen. Die Transektmessungen von $B_{G,N}$ als Funktion des Abstandes erlauben eine experimentelle Bestimmung sämtlicher relevanter reaktiver N-Spezies (NH₃, NH₄⁺, NO₂, NO₃⁻, DON) in der Atmosphäre. Ihre im Kronenraum stattfindenden Interaktionen und Depositionen können den benachbarten Stallanlagen in ihrer Summe ($B_{z,N}$) zugeschrieben werden, sodass eine weitergehende differenzierte Betrachtung der N-Spezies nicht erforderlich ist.

Depositionsgeschwindigkeiten. Für die Modellierung von N-Einträgen lassen sich lokale Modifikationen der Bestandesstruktur mit einer entsprechenden Anpassung der Depositionsgeschwindigkeit berücksichtigen (Sutton et al., 2008).

Die Ermittlung von Zusatzdepositionen ($D_{z,N}$) erfolgt nach dem LAI-Leitfaden durch Multiplikation der mit dem Ausbreitungsmodell AUSTAL2000 modellierten NH_3 -Konzentration mit einer v_d für Wald von $2,0 \text{ cm s}^{-1}$ (Inferentialmodellierung). AUSTAL2000 erlaubt eine Modellierung von $D_{z,N}$, die ausschließlich durch trockene Deposition von NH_3 zustande kommt. Da es sich um ein Partikelmodell handelt, berücksichtigt es keine chemischen Reaktionen im Verlauf der Transmission (insbesondere nicht die chemische Senke der Reaktion von NH_3 zu NH_4^+). Diese Vereinfachung erscheint gerechtfertigt, da die Transportzeiten klein sind gegenüber den Halbwertszeiten möglicher Reaktionen. Außerdem fehlen in Regionen mit hohen β_{NH_3} die notwendigen atmosphärischen Säuren. Eine verminderte NH_3 -Aufnahme sowie Interaktionen auf den Rezeptoroberflächen können jedoch zu einem deutlichen Anstieg des Kompensationspunktes bzw. einer Abnahme von v_{d,NH_3} führen. Derartige Bedingungen gewinnen bei höherer NH_3 -Belastung an Bedeutung und sind bei Modellierungen zu berücksichtigen (Loubet et al., 2009; Wichink Kruit et al., 2007).

Der nach TA Luft für Ausbreitungsrechnungen genannte Wert der Depositionsgeschwindigkeit $v_{d,NH_3,TAL} = 1,0 \text{ cm s}^{-1}$ stellt einen für verschiedene Landnutzungsformen generalisierenden Wert dar, der in der Literatur für Wald häufig höher angesetzt ist. Diesem Defizit kommt die später erschienene Richtlinie VDI 3782, Bl. 5, mit der Nennung einer ebenfalls pauschalen v_d für Wald von $2,0 \text{ cm s}^{-1}$ nach, auf die sich der LAI-Leitfaden stützt ($v_{d,NH_3,LAI}$). Dieser Wert basiert auf einer konventionellen Festlegung aus einem breiten Spektrum von Literaturwerten mit z. T. deutlich niedrigeren und höheren Werten. Ihnen gemeinsam sind Untersuchungen, die zu Zeiten höherer Niederschlagsacidität und außerhalb des unmittelbaren Einflussbereiches von Stallanlagen durchgeführt wurden. Durch diese Faktorenkonstellation ist generell von höheren v_{d,NH_3} als in der Umgebung von NH_3 -Quellen auszugehen. Die in Douglasienbeständen der Niederlande ermittelte mittlere v_{d,NH_3} von $2,5 \text{ cm s}^{-1}$ basiert fast ausschließlich auf Messungen am Tage (Erisman et al., 2001). Aufgrund der Assimilationsleistung der Pflanzenbestände können die Tageswerte deutlich über den Nachtwerten liegen (Duyzer et al., 1993; Dennis et al., 2010). Die $v_{d,NH_3,LAI}$ von $2,0 \text{ cm s}^{-1}$ für Wald stellt somit unter Einbeziehung ungünstigerer Verhältnisse (z. B. Waldrandsituation, Nadelwald) eine für mitteleuropäische Verhältnisse konservative Abschätzung der Depositionsgeschwindigkeit dar. Aus einer jüngeren, ebenfalls in landwirtschaftlich intensiv genutzten Gebieten durchgeführten Untersuchung in Nordwest-Deutschland (Dämmgen, 2005) wurde in einem Nadelwald ein mittleres v_{d,NH_3} von $1,6 \text{ cm s}^{-1}$ festgestellt.¹¹ Die hieraus resultierende mikrometeorologisch ermittelte N-Deposition (einschließlich oxidierter

N-Spezies) $D_{G,N}$ liegt mit $57 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ über den im aktuellen MAPESI-Datensatz genannten N-Eintrag $D_{G,N}$ von $46 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$. Derartige Abweichungen sind unter Berücksichtigung des unterschiedlichen Bezugszeitraumes sowie Mess- und Modellgenauigkeiten von $\pm 30 \%$ akzeptabel. Die MAPESI-Daten wurden u. a. über ein Widerstandsmodell zur Ermittlung der trockenen N-Deposition berechnet (Bultjes et al., 2011). Die v_{d,NH_3} liegen bei Nadelwald zwischen $1,6 \text{ cm s}^{-1}$ (Referenzhöhe 1 m) und $2,2 \text{ cm s}^{-1}$ (Referenzhöhe 25 m) und bei Laubwald zwischen $1,5 \text{ cm s}^{-1}$ (Referenzhöhe 1 m) und $2,1 \text{ cm s}^{-1}$ (Referenzhöhe 25 m). Die über Kronentraufmessungen ermittelte $B_{V,N}$ betrug an diesem Standort $30 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$. Dies setzt eine oberirdische N-Aufnahme von 27 bzw. $16 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$ voraus, die deutlich über den in der Literatur genannten Aufnahmeraten von bis zu 30 % des N-Bestandesniederschlags liegt. Die um diesen Anteil erhöhte $B_{V,N}$ ($39 \text{ kg ha}^{-1} \text{ a}^{-1}$) wäre – unter ungünstigsten Bedingungen (Waldrandeffekt, hohe Rauigkeit, kleinflächige Waldbestände, niedriger Kompensationspunkt) – vergleichbar mit einer konservativ (Überschätzung von 20 bis 30 %) mikrometeorologisch ermittelten und modellierten $D_{V,N}$.

6.3 Fazit

- Die Frage „Ist die insbesondere in Regionen mit hohen Viehdichten relativ hohe regionale Hintergrundbelastung (Vorbelastung) sachgerecht angesetzt?“ kann nicht eindeutig beantwortet werden:

Die Modellierungen zur Ermittlung der N-Depositionen in der Umgebung von Stallanlagen sowie zur Vorbelastung atmosphärischer Stickstoffeinträge weisen gegenüber Messungen der Bestandesniederschläge erhebliche Unterschiede auf. Dies resultiert u. a. aus der systematisch bedingten Unterschätzung der N-Depositionen durch Kronentraufmessungen. Aber auch Modellierungen und mikrometeorologische Untersuchungen bergen Unsicherheiten, die möglicherweise zu konservativen Schätzungen führen. Die MAPESI-Daten (UBA, 2012) zur $D_{V,N}$ liegen dadurch im Untersuchungsgebiet vermutlich im oberen Bereich der tatsächlichen atmosphärischen Netto-Einträge. Zumindest bei größeren, emittentenfernen Waldbeständen im Nordwesten Niedersachsens ist von einer Überschätzung in einer Größenordnung von 10 bis 20 % auszugehen.

- Ebenso kann die Frage „Ist die mit Hilfe von Ausbreitungsrechnungen mit AUSTAL2000 ermittelte Zusatzbelastung (Konzentration, Deposition) in der Umgebung von Stallanlagen plausibel?“ nicht eindeutig beantwortet werden: Die Tabellen 5 und 6 machen deutlich, dass in diesen beiden Fällen die beobachtete Zusatzbelastung ($B_{z,N,ber}$) und die nach BMU (2002) berechnete Zusatzdeposition ($D_{z,N,TAL}$) gut übereinstimmen.

Der LAI-Leitfaden (LAI, 2012) enthält mit der Kombination unterschiedlicher konservativer Verfahren (Modellierung nach TA Luft, VDI 2006 und VDI 2010) einen Ansatz, der offen-

¹¹ Bei den Gegenüberstellungen von Mess- und Modelldaten ist zu berücksichtigen, dass die Messungen in **einem** Jahr an **einem** Messpunkt über **einem** Bestand gewonnen wurden.

bar zumindest in unserem Untersuchungsgebiet zu einer erheblichen Überschätzung der N-Zusatzbelastung führt. Mit dem Verfahren nach BMU (2002) kommt es dagegen wahrscheinlich zu einer Unterschätzung der N-Einträge in den Wald, was auf ein zu niedriges v_{d, NH_3} zurückzuführen ist.

Zur Depositionsgeschwindigkeit für Wälder in Nordwestdeutschland existiert lediglich der von Dämmgen (2005) genannte Wert von $1,6 \text{ cm s}^{-1}$. Die Verwendung dieser v_{d, NH_3} könnte zu treffenderen Ergebnissen führen; sie würde zu Depositionen führen, die zwischen denen nach BMU (2002) und LAI (2012) liegen. Inwieweit diese Depositionsgeschwindigkeit für andere Regionen gilt, ist allerdings offen.

Eindeutig erscheint allenfalls, dass die Gradienten der Zusatzbelastungen, die aus Messungen der Kronentraufe und Modellen resultieren, nicht übereinstimmen.

Die Ursache hierfür ist in den Konzentrationen zu suchen; auch hier ist der mit wachsender Entfernung vom Stall beobachtete Gradient bei den modellierten Werten deutlicher ausgeprägt als bei den gemessenen. Dies wird als Hinweis darauf gewertet, dass die Modellierung der Zusatzbelastung unter Verwendung von AUSTAL2000 zu überarbeiten ist.

Literatur

- Adaros G, Dämmgen U (1994) Phytotoxische Wirkungen der aktuellen NH_3 -Immissionen. Braunschweig : FAL, 124 p, Landbauforsch Völknerode SH 146
- Blatter A, Neftel A (1990) Vergleich dreier Messtechniken zur Bestimmung von Ammoniakemissionen und -immissionen. *KTBL-Schr* 341:18.1-18.21
- Bleeker A, Draaijers G, Veeb D van der, Erisman JW, Möls H, Fonteijn P, Geusenbroek M (2005) Field intercomparison of throughfall measurements performed within the framework of the Pan European intensive monitoring program of EU/ICP Forest. *Environ Pollut* 125:123-138
- BMELF-Bundesministerium für Ernährung, Landwirtschaft und Forsten (1997) Waldzustandsbericht der Bundesregierung 1997. Bonn : BMELF, 210 p
- BMU-Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (2002) Erste allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Bundes-Immissionsschutzgesetz (Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft - TA Luft) v. 24. Juli 2002 [online]. Zu finden in <<http://www.bmu.de/fileadmin/bmu-import/files/pdfs/allgemein/application/pdf/taluft.pdf>> [zitiert am 06.05.2013]
- Bobbink K, Braun S, Nordin A, Power S, Schütz K, Strengborn J, Weijters M, Tomassen H (2011) Review and revision of empirical critical loads and dose-response relationships [online]. Zu finden in <<http://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/680359002.pdf>> [zitiert am 17.04.2013]
- Brewer SK, Costello TA (1999) In situ measurement of ammonia volatilization from broiler litter using an enclosed air chamber. *Transact ASAE* 42:1415-1422
- Builtjes P, 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 Stickstoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland : zusammenfassender Abschlussbericht [online]. Zu finden in <<http://www.uba.de/uba-info-medien/4137.html>> [zitiert am 17.04.2013]
- Cape JN, Cornell SE, Jickells TD, Nemitz E (2011) Organic nitrogen in the atmosphere - where does it come from? : A review of sources and methods. *Atmos Res* 102:30-48
- Cape JN, Sheppard LJ, Crossley A, Dijk N van, Tang YS (2010) Experimental field estimation of organic nitrogen formation in tree canopies. *Environ Pollut* 158:2926-2933
- Cape JN, Eerden LJ van der, Sheppard LJ, Leith ID, Sutton MA (2009) Evidence of changing the critical level for ammonia. *Environ Pollut* 157:1033-1037
- Dämmgen U (Hrsg) (2005) Bestimmung von Ammoniak-Einträgen aus der Luft und deren Wirkung auf Waldökosysteme (ANSWER-Projekt) : Schlussbericht im Auftrag des Umweltbundesamtes. Braunschweig : FAL, 128 p, Landbauforsch Völknerode SH 279
- Dämmgen U, Grünhage L (1998) Response of a grassland ecosystem to air pollutants : 5. A toxicological model for the assessment of dose-response relationships for air pollutants and ecosystems. *Environ Pollut* 101(3):375-380
- Dämmgen U, Grünhage L, Jäger H-J (1997) The description, assessment and meaning of vertical fluxes of matter within ecotopes – a systematic consideration. *Environ Pollut* 96(2):249-260
- Dämmgen U, Matschullat J, Zimmermann F, Strogies M, Grünhage L, Scheler B, Conrad J (2013) Emission reduction effects on bulk and wet-only deposition in Germany – evidence from long-term observations - Part 3: Sulphur and nitrogen compounds. *Gefahrstoffe Reinhaltung Luft* 73:330-339
- Dennis RL, Mathur R, Pleim JE, Walker JT (2010) Fate of ammonia emissions at the local and regional scale as simulated by the Community Multiscale Air Quality Model (CMAQ). *Atmos Pollut Res* 1(4):207-214
- DIN EN ISO 11732 (2005) Wasserbeschaffenheit : Bestimmung von Ammoniumstickstoff ; Verfahren mittels Fließanalytik (CFA und FIA) und spektrometrischer Detektion. Berlin : Beuth
- DIN EN ISO 11885 (2009) Wasserbeschaffenheit : Bestimmung von ausgewählten Elementen durch induktiv gekoppelte Plasma-Atom-Emissionsspektrometrie (ICP-OES). Berlin : Beuth
- DIN EN ISO 13395 (1996) Wasserbeschaffenheit : Bestimmung von Nitritstickstoff, Nitratstickstoff und der Summe von beiden mit der Fließanalytik (CFA und FIA) und spektrometrischer Detektion. Berlin : Beuth
- Draaijers GPJ, Erisman JW (1995) A canopy budget model to assess atmospheric deposition from throughfall measurements. *Water Air Soil Pollut* 85:2253-2258
- Duyzer JH, Verhagen HLM, Westrate JH (1993) The dry deposition of ammonia onto a Douglas forest in the Netherlands. *Atmos Environ* 28:1241-1253
- Erisman JW, Hensen A, Fowler D, Flechard CR, Grüner A, Spindler G, Duyzer JH, Westrate H, Römer F, Vonk AW, Jaarsveld JV (2001) Dry deposition monitoring in Europe. *Water Air Soil Pollut Focus* 1:17-27
- EMEP CORINAIR (2009) Emission inventory guidebook [online]. Zu finden in <<http://www.eea.europa.eu/publications/EMEPCORINAIR4>> [zitiert am 19.04.2013]
- EU-Europäische Union (2001) Richtlinie 2001/81/EG des Europäischen Parlaments und des Rates vom 23. Oktober 2001 über nationale Emissionshöchstmengen für bestimmte Luftschadstoffe (NEC-Richtlinie), Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften : L, Rechtsvorschriften L 309:22-30
- Fangmeier A, Hadwiger-Fangmeier A, Eerden L Van der, Jäger H-J (1994) Effects of atmospheric ammonia on vegetation : a review. *Environ Pollut* 86:43-82
- Garber K, Schürmann B (1971) Wirkung und Nachweis von Ammoniak-Immissionen in der Nähe von Großstallungen. *Landwirtsch Forsch* 26/1:36-40
- Gehrmann J, Andreae H, Fischer U, Lux W, Spranger T (2001) Luftqualität und atmosphärische Stoffeinträge an Level II - Dauerbeobachtungsflächen in Deutschland. Berlin, 94 p
- Hartmann G, Gärtner A, Hölscher M, Köllner B, Janicke L (2004) Untersuchungen zum Verhalten von Abluftfahnen landwirtschaftlicher Anlagen in der Atmosphäre [online]. Zu finden in <http://www.lanuv.nrw.de/veroeffentlichungen/jahresberichte/2003/igtxt/L_Hartm_38.pdf> [zitiert am 17.04.2013]
- Haenel H-D, Rösemann C, Dämmgen U, Poddey E, Freibauer A, Döhler H, Eurich-Menden B, Wulf S, Dieterle M, Osterburg B (2012) Calculations of gaseous and particulate emissions from German agriculture 1990 – 2010 : report on methods and data (RMD) Submission 2012. Braunschweig ; vTI, 394 p, Landbauforsch SH 356
- Heinsdorf D, Krauss HH (1991) Massentierhaltung und Waldschäden auf dem Gebiet der ehemaligen DDR. *Forst Holz* 13:356-361
- Janicke L (2009) AUSTAL2000 : Programmbeschreibung zu Version 2.4 ; Stand 2009-01-31 [online]. Zu finden in <http://www.webblakes.com/products/austal/resources/docs/austal2000_de.pdf> [zitiert am 17.04.2013]
- Huebert B jun (1988) Measurements of concentrations and dry surface fluxes of atmospheric nitrates in the presence of ammonia. *J Geophys Res* D 93(6):7127-7136

- Kirchner M, Braeutigam S, Ferm M, Haas M, Hangartner M, Hofschreuder P, Kasper-Giebl A, Römmelt H, Striedner J, Terzer W, Thöni L, Werner H, Zimmerling R (1999) Field intercomparison of diffusive samplers for measuring ammonia. *J Environ Monit* 1:259-265
- Köster M, Lohrengel B, Hainsch A, Klasmeier E, Dämmgen U, Mohr K, Wallasch M (2012) PASSAMMONI : Passivsammler-Messungen zur Erfassung der Ammoniak-Belastung in Niedersachsen ; Abschlussbericht ; Beurteilung der Ammoniak-Hintergrundbelastung in Niedersachsen 2009 bis 2011. Hildesheim : Staatliches Gewerbeaufsichtsamt, Zentrale Unterstützungsstelle Luftreinhaltung, Lärm und Gefahrstoffe, 93 p
- Krupa SV (2003) Effects of atmospheric ammonia on terrestrial vegetation : a review. *Environ Pollut* 124:179-221
- KTBL (2006) Handhabung der TA Luft bei Tierhaltungsanlagen : ein Wegweiser für die Praxis. Darmstadt : KTBL, 244 p, KTBL-Schr 447
- LAI-Länderarbeitsgemeinschaft für Immissionsschutz (2012) Leitfaden zur Ermittlung und Bewertung von Stickstoffeinträgen der Bund/Länderarbeitsgemeinschaft für Immissionsschutz : Langfassung ; Stand 1. März 2012 [online]. Zu finden in <<http://www.umweltbundesamt.de/luft/downloads/lai-n-leitfaden.pdf>> [zitiert am 17.04.2013]
- Lorenz M, Nagel HD, Granke O, Kraft P (2008) Critical loads and their exceedance in intensive monitoring sites in Europe. *Environ Pollut* 155:426-435
- Loubet B, Asman WAH, Theobald MR, Hertel O, Tang YS, Robin P, Hassouna M, Dämmgen U, Genermont S, Cellier P, Sutton MA (2009) Ammonia deposition near hot spots : processes, models and monitoring methods. In: Sutton MA, Reis S, Baker S (eds) *Atmospheric ammonia : detecting emission changes and environmental impacts ; results of an expert workshop under the Convention on Long-range Transboundary Air Pollution ; The "Edinburgh Workshop"*, 4-6 December 2006. Dordrecht : Springer, pp 205-267
- Mohr K (2011) Untersuchungen zur Bewertung der Auswirkungen von Ammoniak- und Stickstoff-Depositionen auf Pflanzen und Ökosysteme im Nahbereich von Stallanlagen (BESTAND) : Endbericht ; EH-Vorhaben 2809HS015 für die Bundesanstalt für Landwirtschaft und Ernährung (BLE) [online]. Zu finden in <<http://download.ble.de/09HS015.pdf>> [zitiert am 17.04.2013]
- Mohr K (2012) Messung, Modellierung und Wirkungsermittlung von Ammoniak aus Tierhaltungsanlagen. *KRdL-SchrR* 45:65-83
- Mohr K, Dämmgen U (2013) Immissionsbelastung durch Ammoniak auf Wälder in der Umgebung von Tierhaltungsanlagen : Teil 2: Wirkungen auf die Vegetation, Dosis-Wirkung-Beziehungen. *Landbauforsch* 63(2):129-142
- Nielsen KH, Schjörriing JK, Erisman JW, Pearson J (2002) Ammonia exchange at the tree-atmosphere interface. In: Gasche R, Papen H, Rennenberg H (eds) *Trace gas exchange in forest ecosystems*. Boston : Kluwer, pp 159-173, *Tree Physiol* 3
- Niedersächsisches Landesamt für Ökologie (1993) Depositionsmessnetz Niedersachsen : Belastung von Wasser und Boden durch Schadstoffe in Luft und Niederschlägen. Hildesheim : Niedersächsisches Landesamt Ökologie, 40 p
- Papen H (2005) Waldboden-Mikrobiologie in Abhängigkeit von erhöhten Stickstoffeinträgen : Stickstoffdynamik und biologische Prozesse in Ökosystemen ; Abschlussbericht (FuE 202 63 224). Dessau : Umweltbundesamt
- Schmitt M, Thöni L, Waldner P, Thimonier A (2005) Total deposition of nitrogen in Swiss long-term forest ecosystem research (LWF) plots : comparison of the throughfall and the inferential methods. *Atmos Environ* 39:1079-1091
- Spangenberg A, Kölling C (2004) Nitrogen deposition and nitrate leaching at forest edges exposed to high ammonia emissions in Southern Bavaria. *Water Air Soil Pollut* 152:233-255
- Staatscourant (2007) Wijziging regeling ammoniak en veehouderij. *BWL/2007037533* vom 24. April 2007
- Stevens CJ, Manning P, Berg LJJ van den, Graaf MCC de, Wamelink GJ, Boxman AW, Bleeker A, Vergeer P, Arroniz-Crespo M, Limpens J, Lamers LPM, Bobbink R, Dorland E (2011) Ecosystem responses to reduced and oxidised nitrogen inputs in European terrestrial habitats. *Environ Pollut* 159:665-667
- Straub W, Hebbinghaus H, Sowa A, Wurzler S (2013) Ermittlung von Stickstoff- und Säureeinträgen in Wäldern mit Lagrange'schen Ausbreitungsmodellen : Vergleich unterschiedlicher Berechnungsmethoden. *Immissionschutz* (1):16-20
- Sutton MA, Pitcairn CER, Fowler D (1993) The exchange of ammonia between the atmosphere and plant communities. *Adv Ecological Res* 24:301-390
- Sutton MA, Erisman JW, Dentener F, Möller D (2008) Ammonia in the environment : from ancient times to the present. *Environ Pollut* 156:583-604
- Thöni L, Seidler E, Blatter A, Neftel A (2003) A passive sampling method to determine ammonia in ambient air. *J Environ Monit* 5:96-99
- UBA-Umweltbundesamt (2012) Vorbelastungsdaten N-Deposition [online]. Zu finden in <<http://gis.uba.de/website/depo1/>> [zitiert am 10.12.2012]
- Ulrich B (1991) Rechenweg zur Schätzung der Flüsse in Waldökosystemen : Identifizierung der sie bedingenden Prozesse. *Ber Forsch Waldökosysteme* 24:204-210
- VDI 3782 Blatt 5 (2006) *Umweltmeteorologie : atmosphärische Ausbreitungsmodelle ; Depositionsparameter*. Berlin : Beuth, 51 p
- VDI 3783 Blatt 13 (2010) *Umweltmeteorologie : Qualitätssicherung in der Immissionsprognose ; anlagenbezogener Immissionsschutz ; Ausbreitungsrechnung gemäß TA Luft*. Berlin : Beuth
- VDI 3869 Blatt 4 (2012) *Messen von Ammoniak in der Außenluft : Probenahme mit Passivsammlern ; fotometrische oder ionenchromatografische Analyse*. Berlin : Beuth, 38 p
- VDI 3894 Blatt1 (2011) *Emissionen und Immissionen aus Tierhaltungsanlagen : Haltungsverfahren und Emissionen ; Schweine, Rinder, Geflügel, Pferde*. Berlin : Beuth
- VDI 3945 Blatt 3 (2000) *Umweltmeteorologie : atmosphärische Ausbreitungsmodelle ; Partikelmodell*. Berlin : Beuth
- VDI 4280 Blatt 3 (2003) *Planung von Immissionsmessungen : Messstrategien zur Ermittlung von Luftqualitätsmerkmalen in der Umgebung ortsfester Emissionsquellen*. Berlin : Beuth
- VDI 4320 Blatt 1 (2010) *Messung atmosphärischer Depositionen : Probenahme mit Bulk- und Wet-only-Sammlern ; Grundlagen*. Berlin : Beuth, 18 p
- Van Dijk H, Franzaring J, van Alfen AJ (2001) Invloed van ammoniak op boomkwekerijgewassen en fruitbomen. *Plant Res Internat* 57:1-26
- Verhagen R, van Diggelen R (2006) Spatial variation in atmospheric nitrogen deposition on low canopy vegetation. *Environ Pollut* 144:826-832
- Wichink Kruit RJ, Pul RJ van, Otjes RP, Hofschreuder P, Jacobs AFG, Holtslag AAM (2007) Ammonia fluxes and derived canopy compensation points over non fertilized agricultural grassland in The Netherland using the new gradient ammonia-high-accuracy monitor (GRAHAM). *Atmos Environ* 41:1275-1287
- Wuyts K, de Schrijver A, Staelens J, Gielis L, Vandenbruwane J (2008) Comparison of forest edge effects on throughfall deposition in different forest types. *Environ Pollut* 156:854-861
- Zimmermann F, Plessow K, Queck R, Bernhofer C, Matschullat J (2006) Atmospheric N and S-fluxes to a spruce forest M Comparison of inferential modelling and the throughfall method. *Atmospheric Environment* 40:4782-4796