

Auswirkungen luftgetragener Stoffe auf Vegetation und Boden von Grünlandökosystemen

III. Die Ermittlung vertikaler Flüsse von Gasen und Schwebstäuben in der bodennahen Atmosphäre mit Hilfe von Gradientenmodellen

ULRICH DÄMMGEN, LUDGER GRÜNHAGE, BRIGITTA HARTWIG-HANITZ und HANS-JÜRGEN JÄGER

SFB 179 "Wasser- und Stoffdynamik in Agrar-Ökosystemen"

Institut für Produktions- und Ökotoxikologie

Einleitung

Es gilt als erwiesen, daß luftgetragene Stoffe terrestrische und aquatische Ökosysteme beeinflussen bzw. gefährden (vgl. z.B. M a t h y 1988). In der Landwirtschaft werden erhebliche Ertragseinbußen auf Luftverschmutzungen zurückgeführt. So geben v a n d e r E e r d e n et al. (1988) an, daß die in den Niederlanden herrschende Luftbelastung zu Ernteaufällen in der Größenordnung von 5 % führt: 3,4% durch O₃, 1,2 % durch SO₂ und 0,4 % durch HF. Die Autoren führen an, daß sich bei einer Verminderung der Schadstofflast auf die natürliche Hintergrundbelastung (O₃: 60 µg/m³ Luft, SO₂: 6 µg/m³ Luft, jeweils saisonales 7-Stundenmittel; HF: 0,05 µg/m³ Luft, Jahresmittel) in den Niederlanden ein Mehrertrag im Werte von rund 700 Millionen DM erwirtschaften ließe. Eine überschlägige Schätzung der Ertragseinbußen durch luftgetragene Schadstoffe für die BR Deutschland beläuft sich auf 1 Milliarde DM (W i c k e 1986). Der Versuch, die Einflüsse luftgetragener Stoffe auf die Entwicklung von Ökosystemen und ihre Produktivität zu untersuchen, setzt voraus, daß man die tatsächliche stoffliche Belastung aus der Atmosphäre ermittelt.

Die quantitative Ermittlung der Einträge luftgetragener Stoffe in Agrarökosystemen erfordert die Erfassung von Stoffeinträgen aus unterschiedlichen Depositionsformen an unterschiedlichen Depositionsorten unter Berücksichtigung der Stoffarten und Stoffartenkombinationen sowie ihrer Teilchengröße. Dabei ist zwischen sedimentierenden Luftinhaltsstoffen (Bulk-Deposition), der Aerosol-Deposition bzw. der Depositionen aus der Gasphase zu unterscheiden. Jede Eintragsart (Depositionsart) hat im Bestand ihre bevorzugten Eintragsorte (Depositionsorte), an die die Stoffe durch Sedimentation, Advektion, Brownsche Bewegung, Diffusion und Konvektion gelangen. Bulk-Depositionen sind vergleichsweise einfach zu bestimmen und relativ zuverlässig und repräsentativ, sofern die Sammler den Washout eindeutig erfassen, Schwebstäube und Gase nur in vernachlässigbaren Mengen abscheiden und der Anteil der Resuspension aus dem Sammler selbst vernachlässigbar klein ist.

Die Bilanzierung von Stoffflüssen in terrestrischen Ökosystemen zeigt aber, daß bei einer Reihe von Elementen die Stoffeinträge aus der Luft wesentlich aus der Gasphase bzw. dem Schwebstaub erfolgen. Es existiert kein Meßverfahren, das diese Einträge direkt erfaßt. Man ist vielmehr gezwungen, jenen Anteil der trockenen Deposition zu berechnen.

Es ist üblich, die in der Umgebungsluft gemessenen Konzentrationen mit einer sog. Depositionsgeschwindigkeit v_D (deposition velocity) zu multiplizieren, die nach G r e g o r y (1945) bzw. C h a m b e r l a i n (1953) als Proportionalitäts-

faktor zwischen dem senkrechten Stofffluß F und einer Konzentration c in der bodennahen Atmosphäre definiert ist. Dabei wird der senkrechte Stofffluß F wie folgt definiert:

$$F = \frac{1}{A} \cdot \frac{dm}{dt} \quad (\text{Gl. 1})$$

A Fläche
m Stoffmenge
t Zeit

Es wird angenommen, daß der Fluß eine Funktion der Stoffkonzentration c in der Umgebungsluft ist.

$$F = f(c) \quad (\text{Gl. 2})$$

Weiterhin wird angenommen, daß die Deposition einem Geschwindigkeitsgesetz 1. Ordnung folgt.

$$\frac{1}{A} \cdot \frac{dm}{dt} = - \text{const} \cdot c \quad (\text{Gl. 3})$$

Damit wird v_D durch folgenden Zusammenhang beschrieben:

$$|F| = v_D \cdot c \quad (\text{Gl. 4})$$

Da F im Fließgleichgewicht höhenunabhängig ist, muß sich ein Konzentrationsgefälle über der Senke ausbilden. c ist demnach eine Funktion der Höhe z . Damit ist auch die Depositionsgeschwindigkeit höhenabhängig. v_D ist keine wirkliche Geschwindigkeit; sie hat lediglich die Dimension einer Geschwindigkeit. v_D ist vielmehr ein Maß für die Qualität der betrachteten Senke. Da die Emission in bezug auf die Stoffkonzentration in der Umgebungsluft eine Reaktion 0. Ordnung ist, ist Gleichung 4 für Emissionssituationen nicht definiert; die in der Literatur zuweilen angegebenen negativen v_D -Werte sind gemäß den oben angeführten Bedingungen nicht sinnvoll.

Die Annahme, der vertikale Stofffluß sei höhenunabhängig, ist nur dann zutreffend, wenn man die dem betrachteten Ökosystem entsprechenden zeitlichen und räumlichen Maßstäbe (scales) einhält.

Werte für v_D sind für zahlreiche Gase und Ökosysteme tabelliert (J o n a s 1984; D a v i d s o n und W u 1988; M c M a h o n und D e n i s o n 1979; S e h m e l 1980). Die Werte streuen für jedes betrachtete System Stoff/Senke jeweils über sehr weite Bereiche. Das ist verständlich, da v_D von

Tabelle 1: **Wichtige Einflußgrößen für die trockene Deposition von Gasen und Stäuben**

physikalisches Klima	Bestandeseigenschaften	Gase	Eigenschaften der Schwebstäube
Strahlung Lufttemperatur Bodentemperatur Luftfeuchte Windgeschwindigkeit Niederschlagsmenge und -verteilung Turbulenz	Artenzusammensetzung Entwicklungszustand Ernährungszustand Bedeckungsgrad Bodentyp Bodenstruktur Albedo	Konzentration Diffusionskonstante Scheindiffusionskonstante Sorptionsverhalten Löslichkeit chemische Reaktivität	Konzentration Teilchengröße und -form Teilchendichte elektrostatische Aufladbarkeit Zusammensetzung
	Rauhigkeitslänge Nullebenenverschiebung Schubspannungsgeschwindigkeit		

einer Vielzahl von Einflußgrößen wie dem Entwicklungszustand des betrachteten Ökosystems, dem Ernährungszustand des Systems sowie insbesondere dem physikalischen Klima abhängt. In Tabelle 1 sind wichtige Einflußgrößen zusammengestellt.

Aufgrund der Vielzahl der Einflußgrößen ist die Übertragbarkeit der Literaturdaten auf ein betrachtetes System in der Regel nicht gegeben. Es ist vielmehr notwendig, die wirklichen Stoffflüsse in diesem System in sinnvollen Zeitintervallen räumlich repräsentativ auf Grund von Meßwerten zu ermitteln.

Die Berechnung von Stoffflüssen aus Konzentrationen und Depositionsgeschwindigkeiten erscheint in der Praxis nur dann möglich, wenn v_D keine Funktion der o.a. Bestandeseigenschaften ist. Dies ist nur gegeben, wenn der Bestand zu jeder Zeit eine vollständige Senke ist, d.h., daß die Konzentration c des betrachteten Stoffes an der Bestandesobergrenze Null wird.

In dieser Arbeit werden die zur Bestimmung der Stoffflüsse zwischen bodennaher Atmosphäre und Bestand üblichen Meß- und Rechenverfahren vorgestellt und hinsichtlich ihrer Einsatzmöglichkeit in Agrarökosystemen in der BR Deutschland bewertet. Das im Rahmen unserer Arbeiten verwendete Gradientenmodell wird detailliert behandelt.

1. Tracerverfahren zur Bestimmung von Depositionsgeschwindigkeiten

Bei dem Tracerverfahren bestimmt man Stoffeinträge anhand gut identifizierbarer, in dem betrachteten System sonst nicht vorkommender Modellstoffe, sog. Tracer (vgl. z.B. J o n a s 1984; H e i n e m a n n et al. 1976). Man benutzt meist Radioisotope, deren Deposition und Konzentration an einem Ort bestimmt werden. Dazu erzeugt man eine Fahne, die den radioaktiven Tracer enthält und die über das betrachtete System weht. Die Konzentration des Tracers wird über dem System (in der Regel in 1 m Höhe) während des Experimentes (ca. 30 min) kontinuierlich gemessen und integriert. Vor und nach der Exposition werden Ökosystemausschnitte entnommen, die Strahlung pro Flächeneinheit gemessen und daraus die Deposition berechnet:

$$v_D = K / I \quad (\text{Gl. 5})$$

K auf der Probenahmefläche pro Flächeneinheit abgelagerte Aerosol- oder Gasmenge (z.B. in $\text{Ci} \cdot \text{m}^{-2}$ oder $\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$)

I zeitintegrierte Stoffkonzentration in der Umgebungsluft (z.B. in $\text{Ci} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$ oder $\text{g} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$).

Es ist evident, daß dieses Verfahren nur kurzfristig einsetzbar ist. Es führt zu einer zusätzlichen Belastung der Umwelt. Für landwirtschaftlich genutzte Flächen ist dieses Verfahren ausgeschlossen.

2. Lysimeterexperimente zur Bestimmung von Stoffflüssen

Die Bestimmung von Depositionen gasförmiger Stoffe und Stäube in Pflanzenbeständen auf direktem Wege ist nur möglich, wenn man repräsentative Teile des Systems vor und nach der Exposition einer Totalanalyse unterwirft sowie alle übrigen Stoffeinträge und alle Stoffausträge bestimmt. Für die meisten Elemente gelingt dies nicht, weil der Gehalt des Systems an dem jeweils betrachteten Element sehr groß ist im Vergleich zu den während der Exposition deponierten Stoffmengen. Man verwendet daher spezielle Lysimeter mit Modellökosystemen (vgl. z.B. R o t h et al. 1988). Die Modellökosysteme sollen die für die Stoffabscheidung aus der Gasphase charakteristischen Eigenschaften eines wirklichen Agrarökosystems besitzen und darüber hinaus einen geringen Elementvorrat in den Pool-Größen aufweisen. Dabei müssen als Bilanzierungsgrößen die folgenden Stoffmengen erfaßt werden:

Einträge	- mit der Düngung - aus sedimentierenden Niederschlägen
Austräge	- mit der Ernte - mit dem Sickerwasser
Vorrats-Größen	Änderungen der Elementgehalte - der Stoppelmasse - der Wurzelmasse - im Substrat

Hieraus wird die folgende Beziehung zur Ermittlung der Einträge aus der Gasphase bzw. aus Schwebstäuben aufgestellt:

$$\begin{aligned} & \sum \text{Austräge} \\ & + \sum \text{Vorratsänderungen} \\ & - \sum \text{Einträge aus Düngung und sedimentierenden Niederschlägen} \\ & = \text{Nettoeinträge aus der Gasphase und aus Schwebstäuben.} \end{aligned}$$

Nettoeinträge sind die Differenzen zwischen den Einträgen aus und Austrägen in die Umgebungsluft. Derartige Bilanzierungen sind immer zeitlich integrierend; typische Meßzeiträume sind Vegetationsperioden. Realistische Messungen erfordern einen sehr hohen experimentiellen Aufwand. In der Literatur sind bisher nur wenige Beispiele mit vergleichsweise einfachen Systemen beschrieben (Bristow & Garwood 1984, Shock et al. 1984, Ender & Müller 1986). Wenngleich mit Hilfe von Lysimetern wichtige Einzelfragen geklärt werden können, sind die Ergebnisse für Originalbestände wenig repräsentativ.

3. Eddy-Korrelation zur Bestimmung von senkrechten Stoffflüssen

Das Verfahren der Eddy-Korrelation geht ebenso wie das Gradientenverfahren von der Gültigkeit der sog. Austauschkoefizientenhypothese aus (vgl. Kap. 5.2.1). Für den Stofffluß F durch eine gedachte waagerechte Fläche oberhalb des Bestandes ist die übertragbare Größe E der Stoffmengenanteil (Molenbruch) des betrachteten Stoffes:

$$F = - \text{const}_x \cdot \frac{dx}{dz} - \rho_x \cdot [x' \cdot w'] \quad (\text{Gl. 6})$$

x Stoffmengenanteil (Konzentration des betrachteten Stoffes bezogen auf die Gesamtkonzentration aller Stoffe ausgedrückt in mol/mol)

ρ_x Dichte des betreffenden Stoffes bei gegebenem Druck

$[x' \cdot w']$ zeitliches Mittel der Produkte der Fluktuationen des Molenbruches x und der vertikalen Windgeschwindigkeit w

Da die Höhe z und die Windgeschwindigkeit w die Geländeoberfläche zum Bezugspunkt haben, beschreiben negative Flüsse Depositionssituationen, positive Flüsse Emissionssituationen. Bei merklichen Windgeschwindigkeiten wird der erste Term klein gegenüber dem zweiten Term und kann vernachlässigt werden:

$$F = - \rho_x \cdot [x' \cdot w'] = - [c' \cdot w'] \quad (\text{Gl. 7})$$

$[c' \cdot w']$ zeitliches Mittel der Produkte der Fluktuationen der Stoffkonzentration c und der vertikalen Windgeschwindigkeit w

w' und c' werden bestimmt als die momentanen Abweichungen (im Sekundenmaßstab) vom jeweiligen Mittel (typische Meßintervalle: 10 - 30 Minuten). Die erforderliche zeitliche Auflösung der Meßinstrumente zur Erfassung der Fluktuationen ist eine Funktion der Meßhöhe, da die Wirbelgröße mit der Höhe zunimmt. So benötigt man bei einer Meßhöhe von etwa 15 m eine Ansprechzeit von höchstens 1 Sekunde, bei einer Meßhöhe von 1,5 m eine solche von höchstens 0,1 Sekunde. Nur wenige chemische Analysensysteme arbeiten mit derart kurzen Zeitkonstanten. Die Erfassung der Fluktuation der Windgeschwindigkeit gelingt in Bodennähe nur mit trägheitsfreien Windmessern.

Man weicht deshalb normalerweise auf große Meßhöhen aus und mißt z.B. von Türmen oder Flugzeugen. Voraussetzungen für sinnvolle Messungen sind darüber hinaus, daß die Ausdehnung des betrachteten Bestandes groß ist im Vergleich zur Meßhöhe und daß zwischen Meßhöhe und Bestandesoberfläche keine lateralen Flüsse auftreten. Diese wichtigen Voraussetzungen sind in der Agrarlandschaft der BR Deutschland oft nicht erfüllbar.

Detaillierte Beschreibungen und Ergebnisse finden sich z.B. bei Wesely et al. (1977, 1983), Hicks et al. (1982, 1983), Fairall (1984) und Sievering (1983, 1987).

4. Widerstandsmethode zur Bestimmung von Depositionsgeschwindigkeiten

Zur Beschreibung des Depositionsmechanismus und der Bewertung von Prozessen in der Atmosphäre und an Vegetationsoberflächen hat sich die Einführung von elektrischen Ersatzschaltbildern als hilfreich erwiesen.

Die Depositionsgeschwindigkeit ist definiert als Reziprokwert des Transferwiderstandes r_t

$$v_D = 1/r_t \quad (\text{Gl. 8})$$

Der Gesamtwiderstand r_t setzt sich aus hintereinander und parallel geschalteten Einzelwiderständen zusammen (Abb. 1).

Der **atmosphärische Widerstand** r_{at} wird aufgefaßt als komplexe Funktion der Schubspannungsgeschwindigkeit, der Bestandeskenngößen und der atmosphärischen Stabilität (vgl. Kap. 5.2.3). Er wird nach folgender Beziehung berechnet (Monteith 1978; Hicks et al. 1985), wobei man sich der vereinfachenden Ansätze des "klassischen" Gradientenverfahrens bedient:

$$r_{at} = \frac{1}{k \cdot u_*} \cdot \left(\ln \frac{(z-d)}{z_0} + \frac{n}{L} \cdot (z-d) \right) \quad (\text{Gl. 9})$$

k Karman-Konstante
 u_* Schubspannungsgeschwindigkeit
 z Höhe über Grund
 d Nullebenenverschiebung
 z_0 Rauigkeitslänge
 n empirisch zu bestimmende Konstante (wird in der Praxis gleich 5 gesetzt)
 L Monin-Obukhov-Länge

Für neutrale Schichtungen $[(z-d)/L = 0]$ vereinfacht sich Gleichung 9 zu:

$$r_{at} = \frac{1}{k \cdot u_*} \cdot \ln \frac{z-d}{z_0} = \frac{1}{k^2 \cdot u(z)} \cdot \ln^2 \frac{z-d}{z_0} \quad (\text{Gl. 10})$$

$u(z)$ mittlere horizontale Windgeschwindigkeit in der Höhe z .

Für annähernd neutrale Schichtungen kann nach Baldocchi et al. (1987) vereinfachend auch

$$r_{at} = u / u_*^2 \quad (\text{Gl. 11})$$

gesetzt werden.

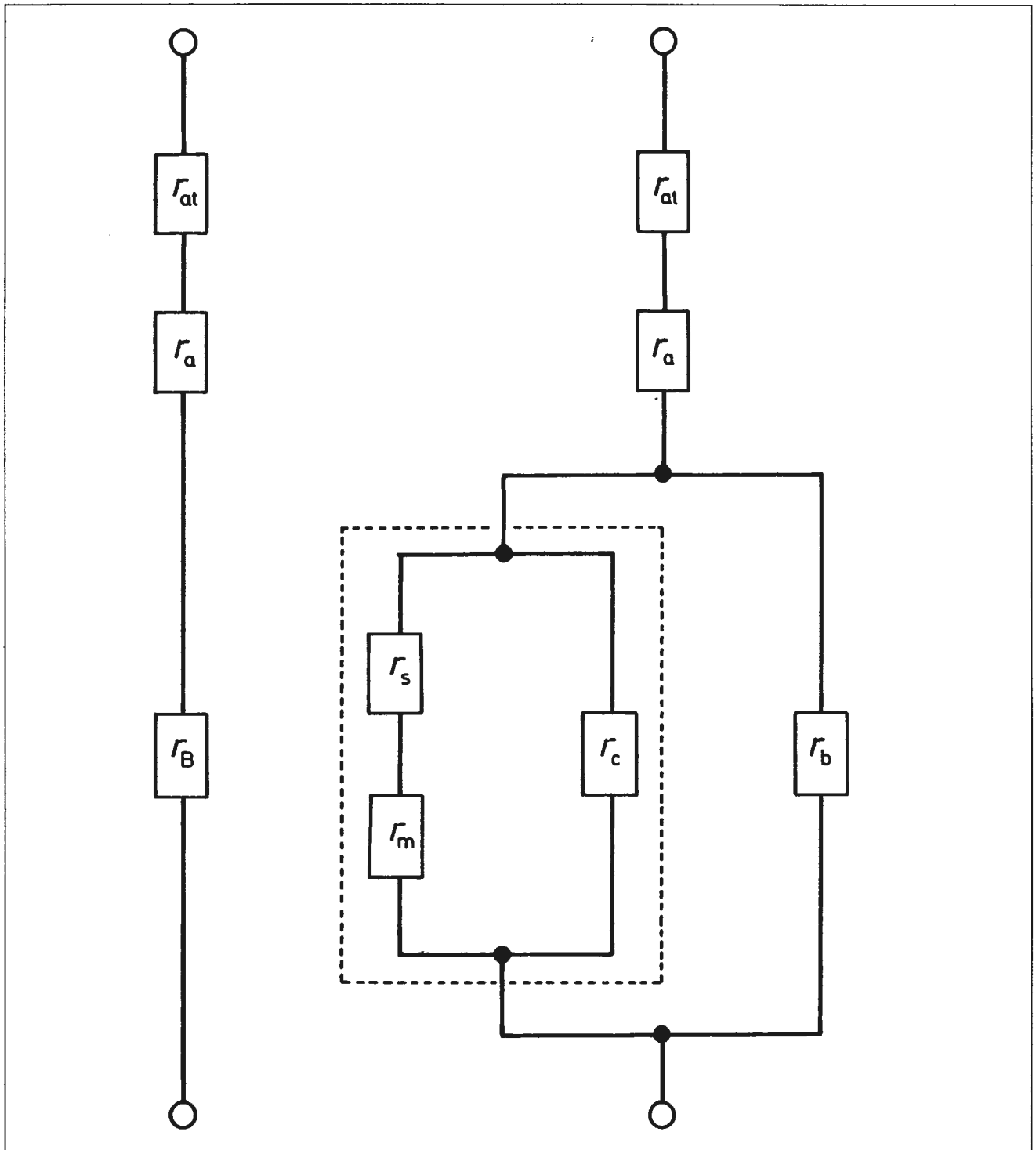


Abbildung 1: Ersatzschaltbild der Transportwiderstände im Ökosystem (nach Fowler und Unsworth 1979 bzw. bei Hicks et al. 1985)

- r_{at} : atmosphärischer Widerstand bzw. Widerstand der turbulenten Atmosphäre;
- r_a : aerodynamischer oder Grenzschichtwiderstand;
- r_B : Bestandeswiderstand;
- r_s : stomatärer Widerstand;
- r_c : cuticulärer Widerstand;
- r_m : Mesophyllwiderstand;
- r_b : Bodenwiderstand.

Hicks et al. (1985) schlagen vor, die hier benötigten Größen wie u_* und z_0 nicht aus dem Windgeschwindigkeitsprofil zu bestimmen, sondern die Standardabweichung der Windrichtungsänderung $\delta\theta$ als Maß einzuführen, von der man annimmt, daß sie praktisch gleich dem Quotienten aus der Standardabweichung der horizontalen Windgeschwindigkeit und der mittleren Windgeschwindigkeit ist. Danach ergeben sich zwei Gleichungen, die r_{at} für neutrale und stabile Schichtung bzw. für instabile Schichtung abschätzen:

$$r_{at} = 4 \cdot (u \cdot \delta\theta)^{-2} \quad (\text{Gl. 12})$$

für $z/L \geq 0$ (neutral und stabil)

$$r_{at} = 9 \cdot (u \cdot \delta\theta)^{-2} \quad (\text{Gl. 13})$$

für $z/L < -0,1$ (instabil).

Der **Grenzschichtwiderstand** r_a ist der Widerstand der quasilaminaren Schicht an der betrachteten Oberfläche. In dieser Schicht sind die Verhältnisse für Impulstransport und Stofftransport voneinander verschieden. r_a wird nach der Gleichung

$$r_a = \frac{1}{k \cdot u_*} \cdot \ln \frac{z_0}{z_{0c}} \quad (\text{Gl. 14})$$

z_{0c} Rauigkeitslänge für Stofftransport

berechnet. Der 2. Term in dieser Gleichung ist meßtechnisch nicht genau genug bestimmbar. Hicks et al. (1985) ersetzen diesen Term deshalb durch einen komplexen Ausdruck, der die Schmidt-Zahl Sc (Quotient aus der kinematischen Viskosität der Luft und dem Diffusionskoeffizienten eines Gases in Luft) und die Prandtl-Zahl Pr (Quotient aus der kinematischen Viskosität der Luft und dem thermischen Diffusionskoeffizienten der ruhenden Luft) enthält:

$$r_a = \frac{1}{k \cdot u_*} \cdot 2 \cdot \left(\frac{Sc}{Pr} \right)^{2/3} \quad (\text{Gl. 15})$$

u_* wird nach

$$u_* = (u/r_{at})^{0,5} \quad (\text{Gl. 16})$$

berechnet. Der hier mit 2/3 angesetzte Exponent ist im Prinzip nicht genau bekannt.

Der stomatäre, der cuticuläre, der Mesophyll- und der Bodenwiderstand werden zum **Bestandeswiderstand** r_B zusammengefaßt:

$$\frac{1}{r_B} = \frac{1}{r_s} + \frac{1}{r_m} + \frac{1}{r_c} + \frac{1}{r_b} \quad (\text{Gl. 17})$$

Der **stomatäre Widerstand** r_s wird nach Baldocchi et al. (1987) als komplexe Funktion der photosynthetischen Strahlung, der absoluten Lufttemperatur, dem Wasserpotential des Blattes und dem Wasserdampfdefizit aufgefaßt. Darüber hinaus ist r_s in geringerem Ausmaß auch von der CO_2 -Konzentration sowie von den Konzentrationen einer Reihe von Spurengasen in der Umgebungsluft abhängig.

Der **Mesophyllwiderstand** r_m ist wesentlich eine Funktion der Mesophylloberfläche, der Durchlässigkeit der Membranen und des Gradienten des chemischen Potentials des betreffenden Stoffes (vgl. z.B. Jäger et al. 1988).

Der **cuticuläre Widerstand** r_c des Bestandes ist z.B. abhängig von der Größe der Blattfläche, dem Alter der Blätter und der chemischen Beschaffenheit ihrer Oberfläche (Feuchtigkeitsfilm, Exsudate). Darüber hinaus ist dieser Widerstand abhängig von der chemischen Reaktivität des betrachteten Gases.

Die Widerstandsmethode setzt demnach die Kenntnis zahlreicher Randbedingungen mit ausreichender Genauigkeit voraus. Die experimentelle Ermittlung der benötigten Größen ist für Monokulturen sehr aufwendig, für komplexe Bestände fast unmöglich.

5. Gradientenverfahren zur Bestimmung von vertikalen Stoffflüssen

Grundlegende Annahme des sog. Gradientenverfahrens ist, daß sich Flüsse von einer Quelle zu einer Senke im stationären Zustand mit einer Gleichung des Typs

$$F = -\text{const} \cdot dc/dz \quad (\text{Gl. 18})$$

analog dem elektrischen Strom (Ohmsches Gesetz), dem Wärmestrom (Fouriersches Gesetz), dem Diffusionsstrom (Ficksches Gesetz) oder dem Grundwasserfluß (Darcysches Gesetz) beschreiben lassen. Dabei sollte die Konstante auf genau definierte Meßgrößen oder auf Naturkonstanten zurückgeführt werden können; der Gradient dc/dz muß sich für den betrachteten Stoff hinreichend genau bestimmen lassen.

Es erscheint sinnvoll, den Stofffluß F als Überlagerung dreier Teilflüsse aufzufassen, nämlich als Summe aus einem laminaren Flußteil (Diffusion), einem turbulenten und einem konvektiven Flußteil:

$$F = F_d + F_t + F_k \quad (\text{Gl. 19})$$

F_d Stofftransport durch Diffusion
 F_t Stofftransport in der turbulenten Atmosphäre
 F_k Stofftransport durch Konvektion

Für Windgeschwindigkeiten $u > 0$ versucht man den Stofffluß mit Hilfe der folgenden Gleichung zu beschreiben:

$$F = -(D + k_t) \cdot dc/dz \quad (\text{Gl. 20})$$

D molekularer Diffusionskoeffizient
 k_t turbulenter Diffusionskoeffizient (eddy diffusivity)

k_t enthält dabei auch konvektive Anteile. k_t ist eine Funktion der Windgeschwindigkeit und wird bei Windstille Null. Bei merklichen Windgeschwindigkeiten wird D vernachlässigbar klein gegenüber k_t .

Die existierenden Modelle zur Beschreibung des Stoffflusses in unbewegten Luftschichten bzw. senkrecht zur Fließrichtung laminar strömender Luftschichten (Diffusion) sowie Modelle für den Stofftransport in turbulenten Luftschichten mit und ohne Berücksichtigung von Konvektionseffekten werden im folgenden beschrieben. Ein Modell zur Beschreibung des Stofftransportes in der bodennahen Atmosphäre durch freie Konvektion bei Windstille existiert nicht.

5.1 Diffusion und Brownsche Bewegung

Der Stofftransport durch Diffusion gehorcht dem 1. Fick-schen Gesetz:

$$F_d = -D \cdot dc/dz \quad (\text{Gl. 21})$$

Mit Hilfe der kinetischen Theorie der Gase kann D wie folgt ausgedrückt werden:

$$D = \frac{R \cdot T}{M} \cdot \frac{1}{\sqrt{2} \cdot \pi \cdot \sigma^2 \cdot C} \quad (\text{Gl. 22})$$

- R allgemeine Gaskonstante
 T Temperatur
 M Molmasse
 σ effektiver Moleküldurchmesser
 C Gesamt-Konzentration **aller** Teilchen

Da effektive Moleküldurchmesser noch nicht berechenbar sind, beruhen alle Angaben für D auf experimentiellen Messungen, aus denen dann umgekehrt die effektiven Moleküldurchmesser bzw. Stoßquerschnitte bestimmt werden. Tabelle 2 gibt die molekularen Diffusionskoeffizienten D für einige wichtige Gase in Luft an. Die in der Literatur angegebenen Werte sind sehr spärlich und z.T. widersprüchlich.

Der Diffusion von Molekülen entspricht die Brownsche Bewegung von Teilchen. Für sie läßt sich D auf folgende Formel zurückführen:

$$D = \frac{R \cdot T}{N_A} \cdot \frac{1}{6 \cdot \pi \cdot r \cdot \nu_0} \quad (\text{Gl. 23})$$

- r Teilchenradius
 ν_0 kinematische Viskosität des umgebenden Mediums
 N_A Avogadro-Zahl

Tabelle 2: Molekulare Diffusionskoeffizienten einiger Spurengase in Luft bei 20°C (nach Spangenberg 1951 und Benner et al. 1988)

SO ₂ :	0,12 cm/s	HCl:	0,15 cm/s
NO:	0,17 cm/s	NO ₂ :	0,13 cm/s
N ₂ O:	0,13 cm/s	NH ₃ :	0,19 cm/s
HNO ₃ :	0,11 cm/s	HNO ₂ :	0,10 cm/s
CO ₂ :	0,14 cm/s		

Notwendig ist auch hier die Kenntnis des effektiven Teilchenradius bzw. der Korngröße oder des aerodynamischen Durchmessers.

Im stationären Zustand bildet sich durch Diffusion bzw. Brownsche Bewegung ein lineares Konzentrationsprofil aus.

Diffusionsprozesse begrenzen den Stofffluß in das Ökosystem, weil die Luft unmittelbar an den Oberflächen ruht (sub-laminare Schicht). Diese Schichten sind jedoch äußerst dünn (<1 mm).

Bei absoluter Windstille ohne freie Konvektion ist die Diffusion der einzige Transportmechanismus. Die transportierten

Stoffmengen sind sehr klein. So errechnet sich z.B. für Ammoniak bei einem Konzentrationsgradienten von 10 µg NH₃/m³ · m und einer Flußzeit von einem Jahr eine durch Diffusion deponierte Menge von 6 mg NH₃/m² · a.

5.2 Turbulenz

Normalerweise überströmt die Luft den Boden bzw. die Vegetation mit Geschwindigkeiten, die zu einem turbulenten Fluß führen. Nach Schlichting (1965) bzw. Ahmed (1979) wird die Strömung turbulent, wenn die Windgeschwindigkeit in unmittelbarer Nähe der Bestandesobergrenze wenige Zentimeter pro Sekunde übersteigt.

Zur Beschreibung des Stofftransportes mit der aus Gleichung 20 abgeleiteten Differentialgleichung

$$F_t = -k_t \cdot dc/dz \quad (\text{Gl. 24})$$

muß man den sog. turbulenten Diffusionskoeffizienten k_t (eddy diffusivity) bestimmen. Dazu betrachtet man den Stofftransport in der Atmosphäre als Analogon des Impulstransportes und wendet die Formalismen an, mit deren Hilfe der Impulsaustausch und seine Folgen, d.h. das Zustandekommen eines Windgeschwindigkeitsprofils, beschrieben werden.

5.2.1 Gewinnung von k_t

Die Beschreibung von Stoffflüssen in der turbulenten Atmosphäre geht von der folgenden zusätzlichen Annahme aus:

Annahme: Übertragbarkeit des Ansatzes der kinetischen Gastheorie bezüglich der Impulsübertragung, d.h., der Identität von k_t und Wirbelviskosität K_M

Viskosität, Diffusivität und Wärmeleitfähigkeit lassen sich dann mit Hilfe von sog. Austauschkoefizienten beschreiben. Dieser Austauschkoefizientenhypothese (Schmidt 1925) zufolge läßt sich der mittlere Fluß F_E einer austauschbaren konservativen Größe E (transferable conservative entity) durch eine Ebene parallel zu einer Oberfläche mit Gleichung 25 beschreiben:

$$F_E = -\text{const}_E \cdot \frac{dE}{dz} - \rho_E \cdot [E' \cdot w'] - E \cdot [\rho_E' \cdot w'] - [E' \cdot \rho_E' \cdot w']$$

ρ_E Dichte der übertragbaren Größe E bei gegebenem Druck

$[E' \cdot w']$ zeitliches Mittel der Produkte der Fluktuationen der austauschbaren konservativen Größe E und der vertikalen Windgeschwindigkeit w

$[\rho_E' \cdot w']$ zeitliches Mittel der Produkte der Fluktuationen der Dichte von E und der vertikalen Windgeschwindigkeit w

$[E' \cdot \rho_E' \cdot w']$ zeitliches Mittel der Produkte der Fluktuationen von E, ρ_E und w

Unter der Annahme, daß die beiden Terme $(E \cdot [\rho_E' \cdot w'])$ und $([E' \cdot \rho_E' \cdot w'])$ vernachlässigbar klein sind, da ρ_E' klein ist, vereinfacht sich Gleichung 25 zu:

$$F_E = -\text{const}_E \cdot \frac{dE}{dz} - \rho_E \cdot [E' \cdot w'] \quad (\text{Gl. 26})$$

Für die Übertragung von Impulsen ($m \cdot u$) ist die Übertragbare Größe $E = u$. Der mittlere Fluß des Impulses F_M berechnet sich dann zu:

$$F_M = - \text{const}_u \cdot \frac{du}{dz} - \rho_u \cdot [u' \cdot w'] \quad (\text{Gl. 27})$$

$[u' \cdot w']$ **zeitliches Mittel** der Produkte der Fluktuationen der horizontalen Windgeschwindigkeit u (in Windrichtung) und der vertikalen Windgeschwindigkeit w bzw. **zeitliches Mittel** der Produkte der horizontalen Komponente u' (in Windrichtung) und der vertikalen Komponente w' der Wirbelgeschwindigkeit

ρ_u Dichte des Impulsträgers

Die Konstante im ersten Term charakterisiert die Zähigkeit des Mediums. Sie ist eine Stoffkonstante und wird dynamische Viskosität μ genannt. Für die Impulsübertragung in Luft ist $\rho_{Luft} = \rho$, da alle Luftteilchen am Impulstransport beteiligt sind.

$$F_M = - \mu \cdot \frac{du}{dz} - \rho \cdot [u' \cdot w'] \quad (\text{Gl. 28})$$

Der Ausdruck $\rho \cdot [u' \cdot w']$ ist gleich der tangentialen Spannung und wird auch als Reynolds-Spannung bezeichnet. Der mittlere Impulsfluß F_M ist gleich der Scherkraft pro Flächeneinheit bzw. der Scherspannung τ .

Nach der Austauschkoefizientenhypothese läßt sich der mittlere Fluß des Impulses analog $F_i c k$ mit einer Gleichung des folgenden Typs beschreiben:

$$F_M = - \text{const} \cdot \frac{du}{dz} \quad (\text{Gl. 29})$$

Durch Vergleich mit Gleichung 28 gewinnt man die Konstante.

$$F_M = \tau = \left(- \mu - \rho \cdot [u' \cdot w'] \cdot \frac{dz}{du} \right) \cdot \frac{du}{dz} \quad (\text{Gl. 30})$$

In dieser Gleichung läßt sich wie in Gleichung 20 ein laminarer Flußteil ($w = 0$, d.h., Stofftransport durch Diffusion; $\tau_1 = \mu \cdot du/dz$, Gl. 30a) sowie ein turbulenter Flußteil ($\tau_2 = \rho \cdot [u' \cdot w']$, Gl. 30b) erkennen. Für den turbulenten Teil wird eine der molekularen Diffusionskonstante D analoge Konstante definiert. Dazu wird Gleichung 30 formal durch die Dichte der Luft ρ dividiert:

$$\frac{\tau}{\rho} = \left(- \frac{\mu}{\rho} - [u' \cdot w'] \cdot \frac{dz}{du} \right) \cdot \frac{du}{dz} \quad (\text{Gl. 31})$$

Als Wirbelviskosität (eddy viscosity) K_M wird der Ausdruck

$$K_M = [u' \cdot w'] \cdot \frac{dz}{du} = k_t \quad (\text{Gl. 32})$$

definiert, der gemäß der obigen Annahme gleich k_t sein soll.

Die Berechnung des Stoffflusses in der turbulenten Atmosphäre senkrecht zur Geländeoberfläche gelingt durch Kombination der Gleichungen 24 und 32:

$$F_t = - [u' \cdot w'] \cdot \frac{dc}{du} \quad (\text{Gl. 33})$$

5.2.2 Direkte Bestimmung von $[u' \cdot w']$

Die Messungen von u' und w' können nicht mit Schalenkreuzanemometern gelingen, da diese nur die mittlere resultierende horizontale Windgeschwindigkeit als Funktion von u_i und v_i (momentane horizontale Windgeschwindigkeit senkrecht zur Windrichtung; nur das mittlere v_i ist gleich Null) erfassen. Für die Bestimmung von u' und w' eignen sich nur absolut trägheitsfreie Meßgeräte, die z.B. unter Ausnutzung des Doppler-Effektes arbeiten.

Beim Ultraschall-Doppler-Verfahren bestimmt man die momentanen Windgeschwindigkeiten u_i und w_i und errechnet daraus die mittlere horizontale (u) und die mittlere vertikale (w) Windgeschwindigkeit:

$$u = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n u_i \quad (\text{Gl. 34})$$

Aus u , w , u_i und w_i berechnen sich u' und w' nach:

$$u' = u_i - u \quad (\text{Gl. 35})$$

bzw.

$$w' = w_i - w \quad (\text{Gl. 36})$$

Es ist evident, daß für hinreichend lange Meßzeiträume t die Mittelwerte von u' und w' Null sein müssen (Abb. 2). Umgekehrt benutzt man diesen Zusammenhang zur Festlegung des minimalen Mittelungszeitraumes t_{\min} .

Praktische Messungen von u' und w' in Bodennähe sind nicht kontinuierlich durchführbar, da man beim Ultraschall-Doppler-Verfahren auf Laufzeitmessungen diskreter Schallimpulse angewiesen ist. Bei derartigen diskontinuierlichen Bestimmungen ist das gemessene $[u' \cdot w']$ eine Funktion der Abtastfrequenz. Die Festlegung einer Mindestmeßfrequenz für die Bestimmung von u' und w' geht aus folgender Modellbetrachtung hervor.

In einem idealen isolierten Wirbel mit Zylindersymmetrie (Abb. 3) gelten folgende Beziehungen:

$$u' = u_0 \cdot \cos \alpha \quad (\text{Gl. 37})$$

bzw.

$$w' = u_0 \cdot \sin \alpha \quad (\text{Gl. 38})$$

u_0 sei die Tangentialgeschwindigkeit des idealen Wirbels. Bildet man das zeitliche Mittel der Produkte der Fluktuationen der Momentangeschwindigkeiten $[u' \cdot w']$ für beliebige Tangentialgeschwindigkeiten u_0 , so erhält man stets $[u' \cdot w'] = 0$.

Die retardierenden Effekte der Bodenoberfläche führen dazu, daß die Tangentialgeschwindigkeit eines Wirbels sich

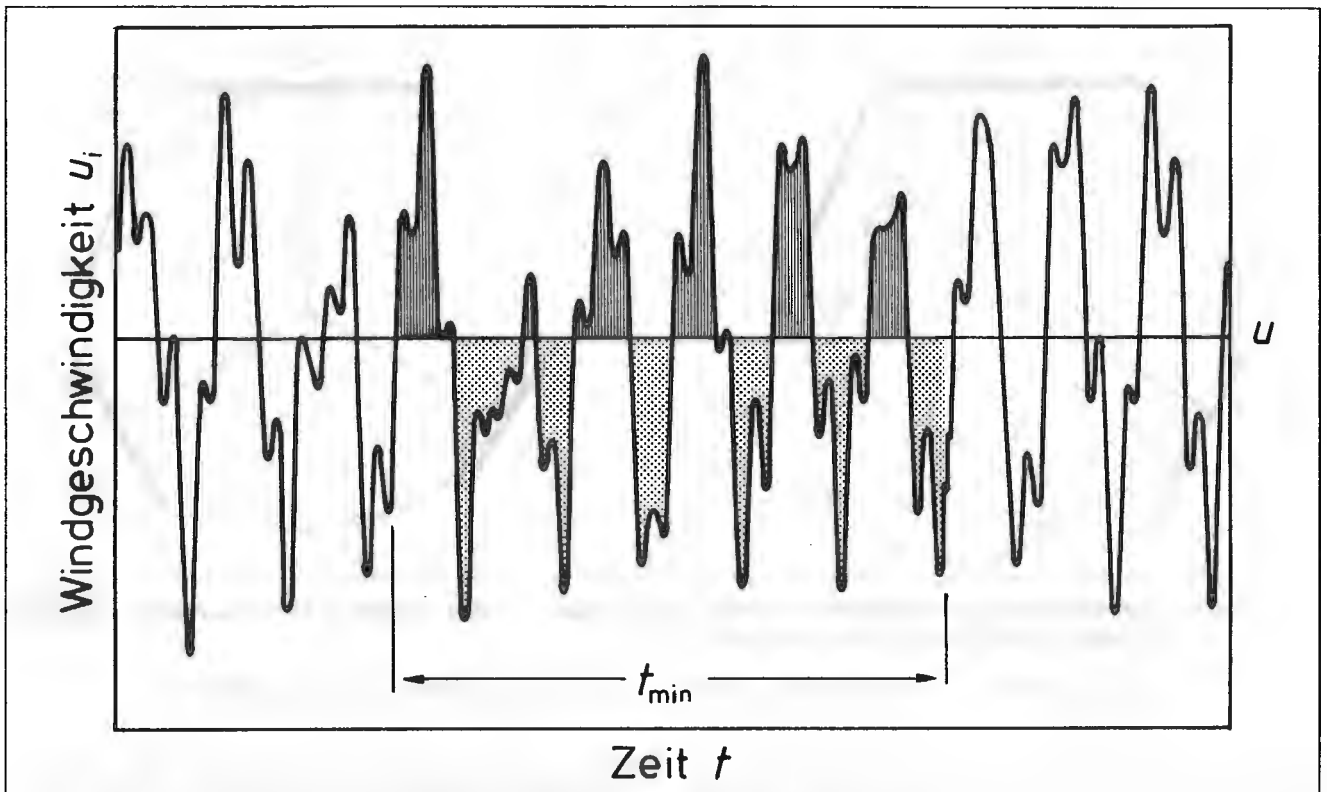


Abbildung 2: Zur Definition der mittleren horizontalen Windgeschwindigkeit u

Die mittlere Windgeschwindigkeit u ist dadurch gekennzeichnet, daß die schraffierten und die punktierten Integrale einander aufheben. t_{min} ist diejenige Mindestzeit, nach der die obige Bedingung mit der gewünschten Genauigkeit erfüllt ist.

während eines Umlaufes verringert. Der Wirbel ist ein dissipatives System (entropieerzeugendes System); der makroskopische Drehimpuls verringert sich dabei zugunsten des mikroskopischen, d.h. es entsteht Wärme. Berücksichtigt man in der Modellrechnung den "Bremseffekt", so erhält man Gleichungen des folgenden Typs:

$$u_i = b \cdot u_0 \cdot \cos \alpha \quad (\text{Gl. 39})$$

bzw.

$$w_i = b \cdot u_0 \cdot \sin \alpha \quad (\text{Gl. 40})$$

z.B. mit

$$b = 1 - \text{const} \cdot \alpha \quad (\text{Gl. 41})$$

Bei Wirbeln in Bodennähe mit Zylindersymmetrie ist $[u' \cdot w']$ immer größer als Null. Bildet man ein relatives $[u' \cdot w']$ als Funktion der Meßfrequenz bzw. Schrittzahl n pro Umlauf, so erhält man Tabelle 3. Dabei ist

$$[u' \cdot w'] = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n (u'_i \cdot w'_i) \quad (\text{Gl. 42})$$

Wenn die Meßfrequenz 40 mal so groß ist wie die Wirbelfrequenz, so erhält man für $[u' \cdot w']$ Werte mit Fehlern $< 0,4 \%$. Ist sie 30 mal so groß wie die Wirbelfrequenz, muß man mit Fehlern um 1% rechnen. D.h., bei einer Abtastfrequenz von etwa 200 Messungen pro Sekunde werden Wirbel bis zu 5 Hz hin-

reichend genau erfaßt. Für Wirbel mit Frequenzen im Bereich von 20 Hz und einer Abtastfrequenz von 200 Hz betrüge der Fehler ca. 12 %.

Nach Sutton (1977) ist bekannt, daß der größte Teil der Wirbelenergie in Bodennähe an Fluktuationen mit charakteristischen Frequenzen $> 0,2$ Hz gebunden ist und daß ein bedeutender Teil dieser Wirbel typische Frequenzen von 5 - 20

Tabelle 3: Zusammenhang zwischen Meßfrequenz und Meßgenauigkeit für die Bestimmung von $[u' \cdot w']$

Schrittzahl n	Schrittweite in Grad	$[u' \cdot w']$ in Prozent
360	1	100,0
180	2	100,0
90	4	100,0
45	8	99,8
40	9	99,7
36	10	99,5
30	12	99,2
24	15	98,6
20	18	97,7
12	30	92,5
10	36	88,7
8	45	81,3

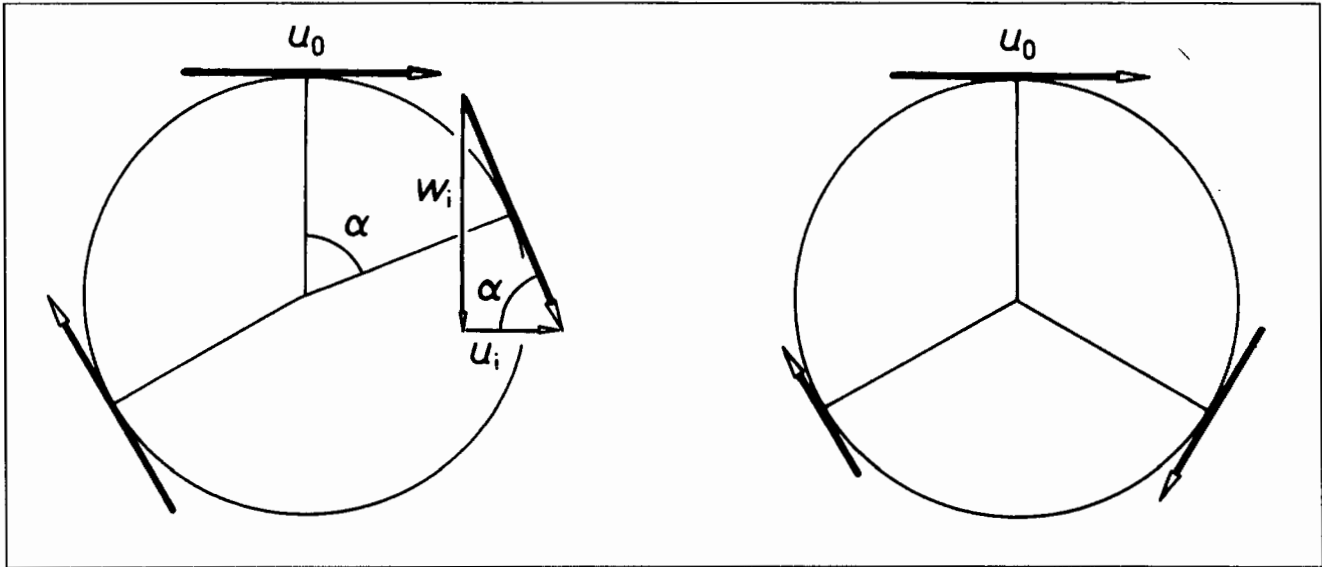


Abbildung 3: Zur Berechnung der Fluktuationen der horizontalen (u') und vertikalen (w') Windgeschwindigkeit für einen Wirbel mit Zylindersymmetrie

rechts: ohne retardierende Effekte der Bodenoberfläche; links: mit retardierenden Effekten der Bodenoberfläche

Hz aufweist. Vernachlässigt man den Anteil der Wirbel mit Frequenzen > 20 Hz und nimmt an, daß der Anteil der Wirbel mit Frequenzen von 5 - 20 Hz zum Gesamtfehler wenig beiträgt, so erscheint eine Meßfrequenz von 200 Hz angemessen. Das Ultraschall-Doppler-Verfahren erlaubt darüber hinaus, Zeiten freier Konvektion als solche zu erkennen. Während solcher Zeiten ist u gleich und w ungleich Null. Außerdem erlauben unmittelbar oberhalb des Bestandes montierte Ultraschall-Anemometer eine Aussage darüber, zu welchen Zeiten turbulenter Fluß an der Bestandesobergrenze herrscht.

5.2.3 Indirekte Bestimmung von $[u' \cdot w']$ bzw. von k_t

Im "klassischen" Gradientenverfahren erfolgt die Flußberechnung über die indirekte Bestimmung der sog. Schubspannungsgeschwindigkeit u_* . Sie ist definiert als die Wurzel aus dem Absolutbetrag des zeitlichen Mittels der Produkte der momentanen Windgeschwindigkeiten:

$$u_* = [u' \cdot w']^{0,5} \quad \text{(Gl. 43)}$$

u_* ist die Tangentialgeschwindigkeit eines zylindersymmetrischen Wirbels.

Damit läßt sich der Stofffluß in der turbulenten Atmosphäre auch ausdrücken als

$$F_t = -u_*^2 \cdot \frac{dc}{du} \quad \text{(Gl. 44)}$$

Man setzt voraus, daß in der bodennahen Atmosphäre u_* eine höhenunabhängige Größe ist, die nur von der Art und Ausbildung des Bestandes abhängt.

Annahme: Die Schubspannungsgeschwindigkeit u_* ist höhenunabhängig.

Diese Annahme ist jedoch eigentlich nur für reibungsfreie Systeme zulässig. Da beim Impulstransport Reibung auftritt (Umwandlung von Makroimpulsen in Mikroimpulse), ist F_M in

Gleichung 28 höhenabhängig. Daraus folgt, daß $[u' \cdot w']$ bzw. u_* ebenfalls höhenabhängig sein muß. Die experimentellen Befunde von Scrase und Best (Sutton 1977) belegen die gleichsinnige und beträchtliche Höhenabhängigkeit von u' und w' (vgl. Tab. 4).

Die Größe des turbulenten Diffusionskoeffizienten k_t hängt bei Verwendung der obigen Annahme davon ab, ob in der Atmosphäre außer der Turbulenz noch Auftriebskräfte wirksam werden, ob also eine neutrale, eine stabile oder eine instabile Schichtung der bodennahen Atmosphäre besteht (vgl. Abb. 4).

Tabelle 4: Variationen der Komponenten der Wirbelgeschwindigkeit (Absolutbeträge von u' , v' und w') bei neutraler Schichtung als Funktion der Meßhöhe über Grünland (aus Sutton 1977)

Höhe (m)	u (m/s)	u' (m/s)	w' (m/s)	u_* (m/s)
0,25	2,62	0,41	0,24	0,31
0,49	2,99	0,44	0,29	0,36
2,00	3,70	0,52	0,50	0,51

5.2.3.1 Turbulenz in einer neutralen Schichtung

Die Analogie zwischen Diffusion und Turbulenz führte zur Definition der sog. Mischungslänge bzw. des Mischungsweges l als Gegenstück zur mittleren freien Weglänge (Prandtl 1931),

$$u_* = l \cdot \frac{du}{dz} \quad \text{(Gl. 45)}$$

für die gelten soll:

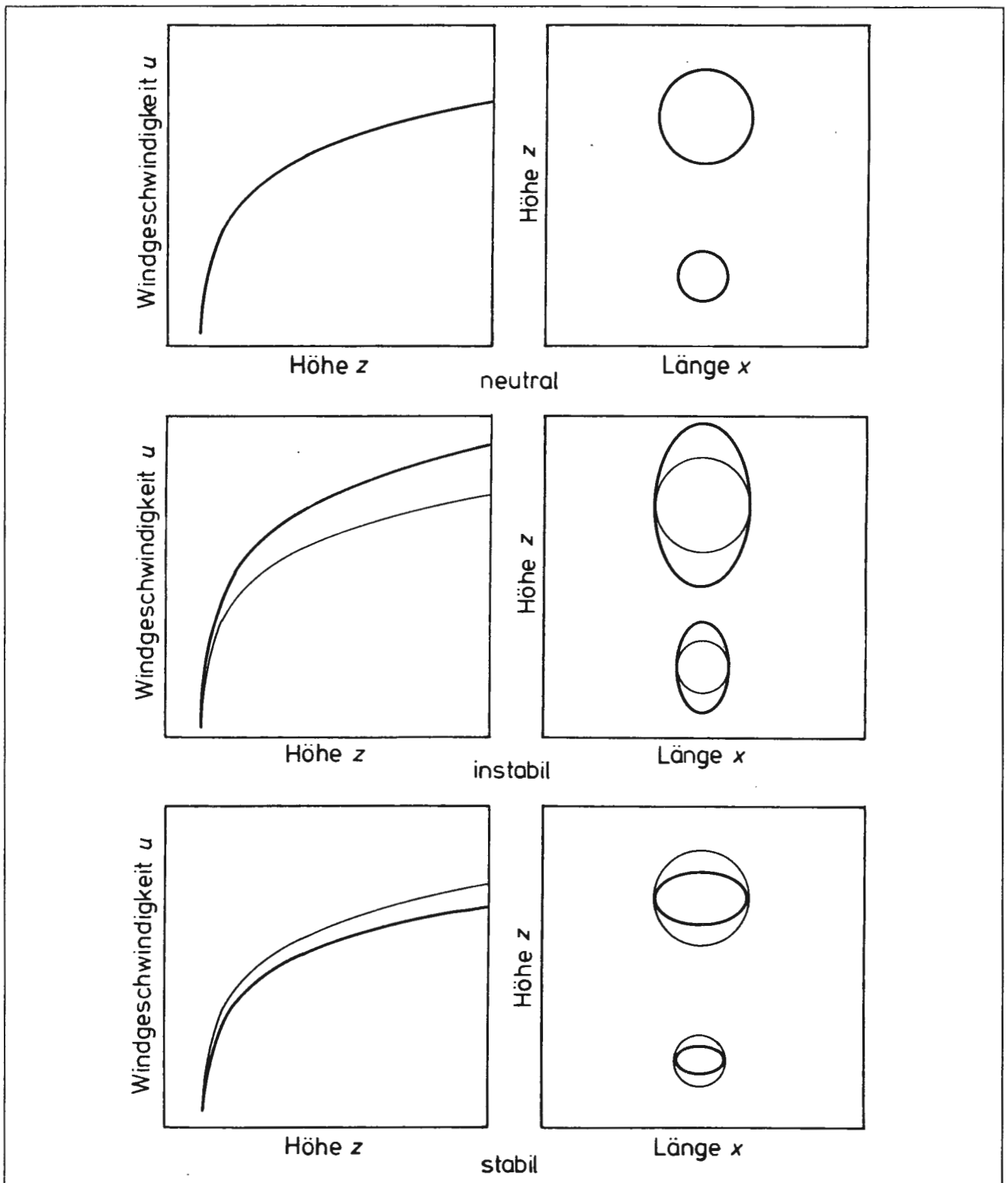


Abbildung 4: Neutrale, instabile und stabile Schichtung

neutrale Schichtung: Die Windgeschwindigkeit gehorcht einem logarithmischen Höhenprofil. Die Wirbel haben eine Kreiszyindersymmetrie.

instabile Schichtung: Die Windgeschwindigkeit (dicke Linie) ist in jeder Höhe größer als die Windgeschwindigkeit bei neutraler Schichtung. Die Wirbel haben die Symmetrie von elliptischen Zylindern, deren große Ellipsenachse vertikal ist.

stabile Schichtung: Die Windgeschwindigkeit (dicke Linie) ist in jeder Höhe kleiner als die Windgeschwindigkeit bei neutraler Schichtung. Die Wirbel haben die Symmetrie von elliptischen Zylindern, deren große Ellipsenachse horizontal ist.

Annahme: Die Mischungslänge l ist proportional zur Höhe z .

Es sei:

$$l = k \cdot z \quad (\text{Gl. 46})$$

k Karman-Konstante

Die Mischungslängenhypothese geht davon aus, daß es möglich ist, mit Hilfe der Mischungslänge als einziger Größe die mittlere örtliche Intensität der turbulenten Durchmischung der Atmosphäre zu charakterisieren. Diese Modellvorstellung erlaubt dann eine Beschreibung der Scherspannung τ_2 (Reynolds-Spannung; vgl. Gl.30b) mit Hilfe folgender Gleichung:

$$\tau_2 = \rho \cdot [u' \cdot w'] = \rho \cdot l^2 \cdot \frac{du}{dz} \cdot \left| \frac{du}{dz} \right| \quad (\text{Gl. 47})$$

Durch Kombination mit Gleichung 32 läßt sich folgender Zusammenhang zwischen k_t und l berechnen:

$$k_t = l^2 \cdot \frac{du}{dz} \quad (\text{Gl. 48})$$

Aus den Gleichungen 32, 43, 46 und 48 folgt für k_t :

$$\frac{1}{u_*} \cdot \frac{du}{dz} = \frac{1}{l} = \frac{1}{k \cdot z} \quad (\text{Gl. 49})$$

Berechnet man anhand dieser Annahmen durch Integration das Windgeschwindigkeitsprofil in einer turbulenten Atmosphäre, so ergibt sich

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \cdot \ln z + \text{const} \quad (\text{Gl. 50})$$

$u(z)$ mittlere horizontale Windgeschwindigkeit u in der Höhe z

Diese Gleichung beschreibt das Windprofil über glatten Flächen trotz der vereinfachenden Modellannahmen im wesentlichen zutreffend. Für rauhe Oberflächen läßt sich die Integrationskonstante auflösen in einen Term, der die Rauigkeit der Oberfläche beschreibt, die sog. Rauigkeitslänge z_0 (roughness height), und einen weiteren Term, der die Höhe z angibt, für die $u = 0$ ist, die sog. Nullebenenverschiebung d (displacement height):

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \cdot \ln \frac{z-d}{z_0} \quad (\text{Gl. 51})$$

Gleichung 51 stellt die beste allgemeingültige Approximation für die Beschreibung der Windprofile bei neutraler Schichtung dar. Die sog. Karman-Konstante ist aber keine eigentliche Konstante. Sie ist vielmehr eine Funktion der Rauigkeit der überströmten Oberfläche. Nach Pasquill (1974) zeigen Messungen, daß k über rauhen Oberflächen Werte zwischen 0,40 und 0,42 annimmt.

d und z_0 sowie u_* lassen sich mit Gleichung 51 aus Windgeschwindigkeitsmessungen in wenigstens drei Höhen berechnen.

Unter der Annahme der praktischen Gültigkeit der Mischungslängenhypothese und der praktischen Konstanz von k läßt sich der Stofffluß F_t in der turbulenten neutralen Luftschicht nach Gleichungen 24, 32 und 43 wie folgt berechnen:

Das Differential du/dz gewinnt man nach Gleichung 49:

$$\frac{du}{dz} = \frac{u_*}{k \cdot z} \quad (\text{Gl. 52})$$

Durch Substitution des Differentials in Gleichung 32 durch Gleichung 52 ergibt sich dann für glatte Oberflächen:

$$k_t = u_* \cdot k \cdot z \quad (\text{Gl. 53})$$

bzw. für rauhe Oberflächen

$$k_t = u_* \cdot k \cdot (z-d) \quad (\text{Gl. 54})$$

u_* wird aus Gleichung 51 eingefügt. Damit ergibt sich für den Fluß F_t in neutraler Atmosphäre:

$$F_t = -k^2 \cdot \frac{u(z) \cdot (z-d)}{\ln \frac{z-d}{z_0}} \cdot \frac{dc}{dz} \quad (\text{Gl. 55})$$

Es bleibt festzuhalten, daß die Prandtl-Theorie logisch widersprüchlich ist und mit der Wirklichkeit nicht übereinstimmt. Dryden (1948) stellt deshalb den gesamten Ansatz mit Recht in Frage.

5.2.3.2 Turbulenz in einer nicht neutralen Atmosphäre

Für nicht neutrale Atmosphären (mäßig instabil bis sehr stabil) wird nach Webb (1970) angenommen:

$$k_t = \frac{k \cdot u_* \cdot z}{1 + (n \cdot z / L)} \quad (\text{Gl. 56})$$

n empirisch zu bestimmende Konstante
 L Monin-Obukhov-Länge

und

$$L = - \frac{\rho \cdot c_p \cdot T \cdot u_*^3}{k \cdot g \cdot W} \quad (\text{Gl. 57})$$

ρ Dichte der Luft
 c_p spezifische Wärme bei konstantem Druck
 T absolute Temperatur
 g Erdbeschleunigung
 W Wärmefluß

Der Wärmetransport ist

$$W = - \rho \cdot c_p \cdot K_H \cdot dT/dz \quad (\text{Gl. 58})$$

bzw.

$$W = -\rho \cdot c_p \cdot u_*^2 \cdot dT/du \quad (\text{Gl. 59})$$

K_H turbulenter Wärmeaustauschkoeffizient

mit

$$K_H = k_t = u_*^2 \cdot dz/du \quad (\text{Gl. 60})$$

Dann wird die sog. Monin-Obukhov-Länge L zu

$$L = \frac{T \cdot u_*}{k \cdot g} \cdot \frac{du}{dT} \quad (\text{Gl. 61})$$

Der Stofffluß in mäßig instabilen bis sehr stabilen Atmosphären berechnet sich demnach zu:

$$F_t = - \frac{k \cdot u_* \cdot z}{1 + \frac{n \cdot z \cdot k \cdot g}{T \cdot u_*} \cdot \frac{dT}{du}} \cdot \frac{dc}{dz} \quad (\text{Gl. 62})$$

u_* wird hierfür aus dem folgenden Windgeschwindigkeitsprofil nach *Monteith* (1978) bestimmt (Gl. 63):

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \cdot \left(\ln \frac{z-d}{z_0} + \frac{n \cdot (z-d) \cdot k \cdot g}{T \cdot u_*} \cdot \frac{dT}{du} \right)$$

u und T müssen in mindestens 6 Höhen z gemessen werden, um dann dT/du , u_* und n sowie z_0 und d zu bestimmen. n nimmt dabei Werte um 5 an. Dieser Wert kann nach *Monteith* (1978) als abgerundeter Wert benutzt werden. Die Gleichung kann für $-0,03 < z/L < +1$ benutzt werden und beschreibt dann die Verhältnisse zutreffend.

Für Werte von $z/L < -0,05$ (instabile Schichtung) ist die freie Konvektion vorherrschender Mechanismus für Wärme- und Stofffluß. Messungen an einem Punkt versagen hier a priori.

Zusammenfassung

Die hier besprochenen Verfahren zur Bestimmung der Depositionsgeschwindigkeit bzw. der vertikalen Stoffflüsse lassen sich in direkte (Lysimeter- und Tracereperimente) und indirekte Methoden (Widerstandsmethode, Eddy-Korrelation und die beiden Gradientenverfahren (indirekte bzw. direkte Bestimmung der Schubspannungsgeschwindigkeit)) unterteilen.

Die Bestimmung der Depositionsgeschwindigkeit mittels Tracern ist nur episodisch durchführbar. Die Verwendung von Radioisotopen führt zu einer zusätzlichen Belastung des Ökosystems. Für kontinuierliche Untersuchungen (mehrere Jahre) in Agrarökosystemen ist das Tracerverfahren nicht geeignet.

Lysimeterexperimente setzen totalanalysierbare Systeme voraus. Natürliche Systeme sind im Prinzip nicht analysierbar, wenn die Flüsse klein sind im Vergleich zu den Pool-Größen. Das Verfahren ist ein destruktives. Man wendet es für Modell-Ökosysteme an. Die Ergebnisse sind nur bedingt auf natürliche Systeme übertragbar.

Die indirekten Verfahren gehen von der Annahme aus, daß die sog. Austauschkoefizientenhypothese anwendbar ist.

Ohne weitere Annahmen kommt das Verfahren der Eddy-Korrelation aus. Es benötigt Konzentrationsmeßverfahren, deren zeitliche Auflösung es gestattet, die Fluktuationen der Konzentrationen hinreichend genau zu verfolgen. Diese Bedingung ist für einige Stoffe in Bodennähe nahezu erfüllt (Ozon). Für andere Stoffe wie Schwefeldioxid und die Stickoxide (NO_x) muß man auf Höhen deutlich über 10 m ausweichen. Die Daten sind repräsentativ für sehr große Schläge bzw. für eine Gebietsmodellierung. Verbindungen wie gasförmige Salpetersäure und Kohlenwasserstoffe außer Methan müssen vor der Analyse zeitintegrierend angereichert werden, d.h., das Verfahren der Eddy-Korrelation ist nicht anwendbar.

Zusätzliche Annahmen benötigt man zur Beschreibung von Stoffflüssen mit Hilfe des Gradientenverfahrens: Man geht davon aus, daß der Stofftransport mit Hilfe einer Differentialgleichung beschrieben werden kann. Der Stofftransport in einer turbulenten Atmosphäre wird dazu als Analogon des Impulstransportes betrachtet. Die erhaltenen Gleichungen setzen die direkte Bestimmung der Schubspannungsgeschwindigkeit u_* und die Meßbarkeit eines Gradienten dc/du voraus ("direktes" Gradientenmodell). Dies gelingt nur mit trägheitsfreien Anemometern. In der Regel sind solche Anemometer nicht verfügbar. Man weicht deshalb auf die indirekte Bestimmung der Schubspannungsgeschwindigkeit u_* aus dem Geschwindigkeitsprofil unter Verwendung weiterer simplifizierender Annahmen aus ("klassisches" Gradientenverfahren). Diese Annahmen sind im Gegensatz zu den obigen nachweislich falsch. Mit Hilfe der beiden Gradientenverfahren lassen sich die Stoffflüsse auf relativ kleinen Flächen abschätzen (klassisches Verfahren) bzw. berechnen.

Die sog. Widerstandsmodelle enthalten als wesentliche Komponente das "klassische" Gradientenverfahren. Die Widerstandsmodelle sind weitgehend deterministisch. Sie benötigen selbst für Monokulturen eine für kontinuierliche Flußbestimmungen nicht zu beschaffende Datenfülle. Sie versagen gänzlich für Mischkulturen.

Effects of air pollutants on vegetation and soils of grassland ecosystems

III. Determination of the vertical fluxes of gases and suspended particles in the atmosphere near the ground using gradient methods

Direct and indirect methods are used to determine vertical fluxes of matter (gases and suspended particles) or deposition velocities. Direct methods make use of lysimeters or tracers. Indirect methods include the resistivity, eddy-correlation, and gradient models.

The determination of deposition velocities using tracers can be realized for comparatively short time intervals only, as the use of radioactive isotopes leads to an additional load of the ecosystem under investigation. It is therefore impossible to expose a system to tracers continuously.

When employing lysimeters these must be suitable for a total chemical analysis. In principle natural systems cannot be analysed when the fluxes are small compared to the respective element pools. Total analysis is a destructive procedure, so it can only be used on model ecosystems. There is therefore only a limited correlation with natural ecosystems.

All indirect methods assume that Schmidt's exchange-coefficient hypothesis (1925) applies in this context. According to this hypothesis the mean flux of any transferable

conservative entity through a plane parallel to the ground can be described using equation 25:

$$F_E = - \text{const}_E \cdot \frac{dE}{dz} - \rho_E \cdot [E' \cdot w'] - E \cdot [\rho_E' \cdot w'] - [E' \cdot \rho_E' \cdot w']$$

(The symbols used are defined below.)

The eddy-correlation method does not require any other principal assumptions. Because ρ_E' is very small the terms $(E \cdot [\rho_E' \cdot w'])$ and $([E' \cdot \rho_E' \cdot w'])$ can be ignored. Thus for vertical fluxes of matter in air equation 25 can be written as equation 6, where E is the concentration of the respective gas or particles expressed as molar fraction x and ρ_E becomes the density of the gas or particles ρ_x . For fluxes in turbulent air the first term in equation 6 can be neglected in comparison to the second one and $(\rho_x \cdot x)$ can be reduced to the concentration c . Fluxes can then be calculated by equation 7:

$$F = - [c' \cdot w']$$

The application of the eddy-correlation presupposes processes of measurement both for concentrations and wind velocities with adequate resolutions in time allowing for determinations of the fluctuations of the respective entities. These are approximately 0.1 s for measuring heights of 1.5 m or 1 s for measuring heights of 15 m. At the moment only ozone fluxes can be calculated in measuring heights of 5 m with a reasonable accuracy. Some chemical compounds can also be dealt with at greater heights. The results obtained are then representative for larger plots and for regions. The eddy-correlation method is not suitable for compounds requiring a concentration process prior to analysis.

To calculate nitrogen and sulphur balances, for example, in a central European landscape, only gradient methods can be used. All gradient methods assume that fluxes of matter can be described by using equation 24:

$$F_t = - k_t \cdot \frac{dc}{dz}$$

A further assumption is that matter exchange can be dealt with in the same way as momentum exchange. According to Schmidt's hypothesis the flux of momentum F_M can be described by using equation 28:

$$F_M = - \mu \cdot \frac{du}{dz} - \rho \cdot [u' \cdot w']$$

Converting this equation into a differential equation in the form of Fick's law leads to equation 30:

$$F_M = \left(- \mu - \rho \cdot [u' \cdot w'] \cdot \frac{dz}{du} \right) \cdot \frac{du}{dz}$$

To get a constant describing the turbulent flux in the same way as D describes the molecular flux (diffusion), equation 30 is divided by ρ giving an equation for the eddy viscosity K_M (eq. 32):

$$K_M = [u' \cdot w'] \cdot \frac{dz}{du}$$

With

$$K_M = k_t$$

vertical fluxes of matter in a turbulent atmosphere can be calculated using equation 33:

$$F_t = - [u' \cdot w'] \cdot \frac{dc}{du}$$

The square root of the first term is normally defined as friction velocity u_* (equation 43). Direct calculations of u_* make use of ultrasonic anemometers. The differential has to be determined from simultaneous measurements of the respective wind velocities and concentrations at at least 4 heights.

Because ultrasonic anemometers were not generally available, u_* had to be estimated in an indirect way. This requires further simplifying assumptions:

I: The friction velocity u_* does not vary with height and is only a function of the properties of the surface.

Measurements show that this assumption is not in accordance with reality.

II: The friction velocity can be described by a differential equation containing a mixing length analogous to the free path in diffusion (eq. 45).

III: The mixing length is proportional to the height above ground (eq. 46). The factor of proportionality is assumed to be constant (Karman's constant).

Measurements of energy distributions in wakes show that these latter two assumptions are also incorrect. According to the theory "the energy should decline to zero at the center of a wake, where $du/dz = 0$, unless l were infinite, which is physically unacceptable" (Sutton 1977). It has been shown that Karman's constant is not a constant. Using these simplifications one deducts equations for the description of the wind velocity profile near the ground (eq. 51)

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \cdot \ln \frac{z-d}{z_0}$$

and for the mean vertical flux of matter (eq. 55) in a neutral atmosphere:

$$F_t = - k^2 \cdot \frac{u(z) \cdot (z-d)}{\ln \frac{z-d}{z_0}} \cdot \frac{dc}{dz}$$

Temperature corrected formulas are given by several authors for moderately stable to unstable conditions. Those best known are equations 62 and 63:

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \cdot \left(\ln \frac{z-d}{z_0} + \frac{n \cdot (z-d) \cdot k \cdot g}{T \cdot u_*} \cdot \frac{dT}{du} \right)$$

$$F_t = - \frac{k \cdot u_* \cdot z}{1 + \frac{n \cdot z \cdot k \cdot g}{T \cdot u_*}} \cdot \frac{dc}{dz}$$

Because of the simplifications mentioned above the gradient methods that depend on indirect estimations of u_* give only approximate results.

Resistance models depend to a large degree on the "indirect" gradient method, and in principle are deterministic models. Even for monocultures they require an enormous data base, which cannot be obtained for continuous determinations of fluxes of matter. Use in mixed cultures is impossible.

Symbols

A	area	r_m	mesophyll resistance
b	constant (eq. 39)	r_s	stomatal resistance
C	total concentration of all atmospheric constituents	r_t	total resistance to transfer
c	mean concentration of one atmospheric constituent in the atmosphere near the ground	ρ	density of air
c'	fluctuation in concentration	ρ_E	density of a conservative entity
c_p	specific heat at constant pressure	$[\rho_E' \cdot w']$	temporal mean of the product of the fluctuations of ρ_E and w
$[c' \cdot w']$	temporal mean of the product of the fluctuations of c and w	σ	collision diameter
D	molecular diffusivity	Sc	Schmidt number
d	displacement height	T	temperature
δ_θ	standard deviation of the horizontal wind direction	t	time
E	conservative entity	t_{min}	minimal duration of measurement
$[E' \cdot w']$	temporal mean of the product of the fluctuations of E and w	τ	shearing stress per unit area
$[E' \cdot \rho_E' \cdot w']$	temporal mean of the product of the fluctuations of E, ρ_E and w	τ_1	shearing stress, diffusive portion
F	vertical flux of matter	τ_2	shearing stress, turbulent portion
F_d	flux by diffusion	u	mean horizontal wind velocity
F_k	flux by convection	u_i	horizontal wind velocity at any instant
F_E	flux of a conservative entity	u'	fluctuation of the horizontal wind velocity
F_M	flux of momentum	u_0	tangential velocity of an ideal vortex (eq. 37)
F_t	vertical flux of matter in a turbulent atmosphere	$u(z)$	mean horizontal wind velocity at a height z
g	gravitational acceleration	u_*	friction velocity
I	dose of atmospheric stressor	$[u' \cdot w']$	temporal mean of the product of the fluctuations of u and w
K	atmospheric deposition of an atmospheric constituent	v_D	deposition velocity
K_H	coefficient of thermal conductivity	W	heat transfer
K_M	eddy viscosity	w	mean vertical wind velocity
k	Karman's constant	w_i	vertical wind velocity at any instant
k_t	eddy diffusivity	w'	fluctuation of the vertical wind velocity
L	Monin Obukhov length	x	molar fraction
l	mixing length	$[x' \cdot w']$	temporal mean of the product of the fluctuations of x and w
M	molar mass	z	height above ground
m	mass	z_0	roughness length for momentum exchange
μ	dynamic viscosity of air	z_{oc}	roughness length for matter transport
N_A	Avogadro's number		
n	empirical constant (eqs. 9, 62, 63)		
ν_0	kinematic viscosity		
Pr	Prandtl number		
R	gas constant		
r	particle radius		
r_{at}	atmospheric resistance		
r_a	aerodynamic resistance		
r_B	canopy resistance		
r_b	soil resistance		
r_c	cuticular resistance		

Literatur

A h m e d, A.-R. A.-A. (1979): Untersuchungen zur Aerosoldeposition an Oberflächen. - Diss. Gießen.

Baldocchi, D.D., Hicks, B.B. & Camara, P. (1987): A canopy resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces. - Atmospheric Environment 21, S. 91 - 101.

Benner, C.L., Eatough, N.L., Lewis, E.A., Eatough, D.J., Huang, A.A. & Ellis, E.C. (1988): Diffusion coefficients for ambient nitric and nitrous acids from denuder experiments in the 1985 nitrogen species methods comparison study. - Atmospheric Environment 22, S. 1669 - 1672.

Bristow, A.W. & Garwood, E.A. (1984): Deposition of sulphur from the atmosphere and the sulfur balance in four soils under grass. - J. Agric. Sci. (Camb.) 103, S. 463 - 468.

Chamberlain, A.C. (1953): Experiments on the deposition of iodine 131 vapour onto surfaces from an airstream. - Phil. Mag. (7) 44, S. 1145 - 1153.

Davidson, C.I. & Wu, Y.-L. (1988): Dry deposition of particles and vapors. - In: Adriano, D.C.: Acid Precipitation, Vol. 2, Sources, Emissions, and Mitigation, Advances in Environmental Sciences Series, Springer, New York.

Dryden, H.L. (1948): Mechanics of boundary layer flow. - Advances in Applied Mech. 1, S. 2 - 78.

- Eerden, L.J. v.d., Tonneijck, A.E.G. & Wijnands, J.H.M. (1988): Crop loss due to air pollution in the Netherlands. - *Environmental Pollution* 53, S. 365 - 376.
- Ender, R. & Müller, K.-H. (1986): Schwermetalle im Ackerboden - Lysimeterversuche zur Schwermetall-Bilanzierung agrarisch genutzter Böden. - *Umwelt* 5/86, S. 393 - 397.
- Fairall, C.W. (1984): Interpretation of eddy-correlation measurements of particulate deposition and aerosol flux. - *Atmospheric Environment* 18, S. 1329 - 1337.
- Fowler, D. & Unsworth, M.H. (1979): Turbulent transfer of sulphur dioxide to a wheat crop. - *Q. Jl. R. met. Soc.* 105, S. 767 - 784.
- Gregory, P.H. (1945): *Transactions Br. Mycol. Soc.* 28, S. 26 - 71.
- Heinemann, K., Vogt, K.J. & Angeletti, L. (1976): Untersuchungen zur Ablagerung und Desorption von Jod auf Vegetation. - *Ber. KFA-Jülich Nr. 1287*.
- Hicks, B.B., Baldocchi, D.D., Hosker, R.P., Hutchison, B.A., Matt, D.R., McMillan, R.T. & Satterfield, L.C. (1985): On the Use of monitored air concentrations to infer dry deposition. - *NOAA Technical Memorandum ERL ARL-141*.
- Hicks, B.B., Wesely, M.L., Coulter, R.L., Hart, R.L., Durham, J.L., Speer, R.E. & Stedman, D.H. (1983): An experimental study of sulfur deposition on grassland. - *Proc. 4th Int. Conf. on Precipitation, Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*. Bd. 2, S. 933 - 942. Elsevier, New York.
- Hicks, B.B., Wesely, M.L., Durham, J.L. & Brown, M.A. (1982): Some direct measurements of atmospheric sulfur fluxes over a pine plantation. - *Atmospheric Environment* 16, S. 2899 - 2903.
- Jäger, H.-J., Grünhage, L., Dämmgen, U., Hertstein, U. & Fleckenstein, J. (1988): Auswirkungen luftgetragener Stoffe auf Vegetation und Boden von Grünlandökosystemen. I. Zusammenhänge, Arbeits- und Meßkonzept. - *Landbauforschung Völkenrode* 38, S. 57 - 89.
- Jonas, R. (1984): Ablagerung und Bindung von Luftverunreinigungen an Vegetation und anderen atmosphärischen Grenzflächen. - *Ber. KFA Jülich Nr. 1949*.
- McMahon, T.A. & Denison, P.J. (1979): Empirical atmospheric deposition parameters - a survey. - *Atmospheric Environment* 13, S. 571 - 585.
- Mathy, P. (1988): Air pollution and ecosystems. - *Proc. Intern. Symp. on Effects of Air Pollution on Terrestrial and Aquatic Ecosystems*, May 18-22, 1987, Grenoble (France). Reidel, Dordrecht usw.
- Monteith, J.L. (1978): *Umweltphysik* - Steinkopf, Darmstadt, 183 S.
- Pasquill, F. (1974): *Atmospheric diffusion. The dispersion of windborne material from industrial and other sources*. - Wiley, Chichester.
- Prandtl, L. (1931): *Abriß der Strömungslehre*. - Vieweg, Braunschweig.
- Roth, M., Dämmgen, U., Grünhage, L. & Jäger, H.-J. (1988): Aufbau eines Kleinlysimeters zur Erstellung von Elementbilanzen. - *Landschaftsökologisches Messen Auswerten* 2, S. 77 - 86.
- Schlichting, H. (1965): *Grenzschichttheorie*. 5. Aufl. - Braun, Karlsruhe.
- Schmidt, W. (1925): *Der Massenaustausch in freier Luft. Probleme der kosmischen Physik* - 7. Grand, Hamburg.
- Sehmel, G.A. (1980): Particle and gas dry deposition: a review. - *Atmospheric Environment* 14, S. 983 - 1011.
- Shock, C.C., Jones, M.B., Williams, W.A. & Center, D.M. (1984): Competition for S and N by associations of three annual range species lysimeters. - *Plant and Soil* 81, S. 311 - 321.
- Sievering, H. (1983): Eddy flux and profile measurements of small-particle dry deposition velocity at the Boulder Atmospheric Observatory (BAO). - *Proc. 4th Int. Conf. on Precipitation, Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*. Elsevier, New York.
- Sievering, H. (1987): Small-particle dry deposition under high wind speed conditions: eddy flux measurements at the Boulder Atmospheric Observatory. - *Atmospheric Environment* 21, S. 2179 - 2185.
- Spangenberg, C.D. (1951): Nomograph for gaseous systems - diffusion coefficients now determined without solving messy Gilliland equation. - *Chemical Engineering* 58, S. 170 - 171.
- Sutton, O.G. (1977): *Micrometeorology*. - Krieger Publishing Company, Huntington, New York.
- Webb, E.K. (1970): *Q. Jl. R. met. Soc.* 96, 67.
- Wesely, M.L., Hicks, B.B., Dannevik, W.P., Frisella, S. & Husar, R.B. (1977): An eddy-correlation measurement of particulate deposition from the atmosphere. - *Atmospheric Environment* 11, S. 561 - 563.
- Wesely, M.L., Cook, D.R., Hart, R.L., Hicks, B.B., Durham, J.L., Speer, E., Stedman, D.H. & Topp, R.J. (1983): Eddy-correlation measurements of the dry depositions of particulate sulfur and submicron particles. - *Proc. 4th Int. Conf. on Precipitation, Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*. S. 943 - 952. Elsevier, New York.
- Wicke, L. (1986): *Die ökologischen Milliarden*. Kösel, München.
- Wolfseher, U. & Gertis, K. (1978): Bodennahe Aerodynamik. I. Beschreibung des natürlichen Windes in Bodennähe. - *Gesundheits-Ingenieur* 99, S. 259 - 274.
- Verfasser: Grünhage, Ludger, Dr. rer. nat.; Jäger, Hans-Jürgen, Prof. Dr. rer. nat.; Institut für Produktions- und Ökotoxikologie der Bundesforschungsanstalt für Landwirtschaft Braunschweig-Völkenrode (FAL), Institutsleiter: Prof. Dr. rer. nat. Hans-Jürgen Jäger.
- Dämmgen, Ulrich, Dr. rer. nat.; Hartwig-Hanitz, Brigitta, Dipl.-Chem.; Sonderforschungsbereich "Wasser- und Stoffdynamik in Agrar-Ökosystemen" (SFB 179), Technische Universität Braunschweig.