

**Zeitschrift:** Schweizerische Zeitschrift für Forstwesen = Swiss forestry journal = Journal forestier suisse

**Herausgeber:** Schweizerischer Forstverein

**Band:** 168 (2017)

**Heft:** 2

**Artikel:** Bestimmung von Schwermetalleinträgen in Waldgebiete mit Modellierung und Moosmonitoring

**Autor:** Nickel, Stefan / Schröder, Winfried

**DOI:** <https://doi.org/10.5169/seals-1097471>

### **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. [Mehr erfahren](#)

### **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. [En savoir plus](#)

### **Terms of use**

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. [Find out more](#)

**Download PDF:** 02.05.2026

**ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, <https://www.e-periodica.ch>**

# Bestimmung von Schwermetalleinträgen in Waldgebiete mit Modellierung und Moosmonitoring

Stefan Nickel

Lehrstuhl für Landschaftsökologie, Universität Vechta (DE)\*

Winfried Schröder

Lehrstuhl für Landschaftsökologie, Universität Vechta (DE)

## Bestimmung von Schwermetalleinträgen in Waldgebiete mit Modellierung und Moosmonitoring

Die Erfassung der atmosphärischen Deposition von Schwermetallen, der Ökosysteme exponiert sind, kann mit technischen Sammlern, mit Biomonitoren (z.B. Moosen) sowie mit chemischen Transportmodellen erfolgen. Ziel dieses Artikels ist es, Expositionsdaten der Bioindikation mit Moosen und der mit Messungen aus technischen Sammlern validierten Ergebnisse zweier Depositionsmodelle zusammenzuführen und auszuwerten. Zwischen den Depositionsmodellierungen und den Cd- und Pb-Konzentrationen im Moos (Survey im Jahre 2005) bestehen deutschland- und europaweit signifikante statistische Zusammenhänge mit Korrelationskoeffizienten (Spearman) zwischen 0.31 und 0.81. Die höchsten Korrelationen werden bei einer Differenzierung nach Landnutzung festgestellt. Für As, Cr, Cu, Ni, V und Zn werden niedrigere signifikante Korrelationen berechnet. Es wird gezeigt, dass Emissionskataster durch ein räumlich und ökosystemspezifisch differenziertes, immissions-ökologisches Biomonitoring mit Moosen und räumlich hoch aufgelöster Modellierung und Kartierung ergänzt werden sollten. Dies gilt auch bei niedriger atmosphärischer Deposition, denn Schwermetalle sind persistent und reichern sich in Böden, Pflanzen, Tieren und Menschen an.

**Keywords:** atmospheric deposition, bioaccumulation, EMEP MSC-E, LOTOS-EUROS, Germany, Europe  
**doi:** 10.3188/szf.2017.0092

\* Postfach 1553, DE-49364 Vechta, E-Mail stefan.nickel@uni-vechta.de

Aus der Atmosphäre in Ökosysteme eingetragene Stoffe können nachteilig wirken, wenn art- bzw. ökosystemspezifische Wirkschwellen überschritten werden. Um dies durch umweltpolitische Massnahmen verhindern zu können, bedarf es neben der Bestimmung von Wirkschwellen auch der Erfassung der atmosphärischen Deposition, der Ökosysteme exponiert sind (Nordberg et al 2015).

Weiträumige, grenzüberschreitende Luftverschmutzungen sollen durch die Genfer Luftreinhaltekonvention von 1979 (Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, CLRTAP) mit insgesamt acht stoff(gruppen)spezifischen Protokollen gemindert werden. Hierbei zielt das Aarhus-Protokoll von 1998 darauf ab, die Emission und die atmosphärische Deposition von Cadmium (Cd), Blei (Pb) und Quecksilber (Hg) zu reduzieren. Dazu werden im European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) Emissionsdaten zusammengestellt, die stoffliche Zusammensetzung von Luft und Niederschlägen mit technischen Sammlern gemessen sowie auf diesen Grundlagen der atmosphärische Transport

und die Deposition u.a. der drei genannten Schwermetalle modelliert (Tørseth et al 2012). Das EMEP-Modell liefert Karten der räumlichen Struktur atmosphärischer Deposition auf einem Raster von 50 km × 50 km. Modellierungen in höheren räumlichen Auflösungen (5 km × 5 km, 10 km × 10 km) liegen bisher lediglich aus einer Reihe länderspezifischer EMEP-Fallstudien (Kroatien, Tschechische Republik, Niederlande; Ilyin et al 2011) sowie als Ergebnis von Berechnungen mit einem zweiten Modell – LOTOS-EUROS (Schaap et al 2008) – vor. Die Modellierung ermöglicht flächendeckende Aussagen zur absoluten Höhe der atmosphärischen Deposition, unterliegt aber immer auch Einflüssen von Daten- und Modellunsicherheiten. Zur Validierung der EMEP-Modellierungen werden daher Daten von gegenwärtig 22 (Hg) und 66 (Cd, Pb) Stationen in Europa (Aas & Breivik 2009, Travníkov & Ilyin 2005, Travníkov et al 2012) herangezogen. Das EMEP-Depositionsmessnetz weist eine zeitlich hohe Auflösung auf, ist aber für Cd und Pb im Süden und Osten Europas räumlich sehr dünn besetzt. Hg wird

vorwiegend in Nordeuropa gemessen. Für den empirischen Nachweis atmosphärischer Depositionen in hoher räumlicher Auflösung sind insbesondere auch Biomonitoringverfahren mit Moosen (Rühling 1994) geeignet.

Die Erfassung der Deposition durch EMEP wird seit 1980 ergänzt durch Arbeiten der Working Group on Effects (WGE). Sie liefern Informationen u.a. über Auswirkungen der Schwermetallemissionen und -einträge auf Luftqualität und Ökosysteme. Hinzu kommen Informationen aus dem International Cooperative Programme on Effects of Air Pollution on Natural Vegetation and Crops (ICP Vegetation). In diesem Programm werden an bis zu 7300 Orten in Europa seit 1990 alle fünf Jahre die in ektohydren Moosen enthaltenen Schwermetalle ermittelt. Moose akkumulieren die atmosphärische Schwermetalldeposition bei hoher Resistenz und ermöglichen so deren Analyse weit oberhalb der Nachweisgrenze (Frahm 1998). Im Jahr 2005 ergänzte Stickstoff (N) das Messprogramm, und 2010 wurden erstmals persistente organische Verbindungen (POP) bestimmt (Harmens et al 2010, 2013, 2015). Dieses Monitoring, im Folgenden als «europäischer Moos-Survey» bezeichnet, liefert kein direktes, sondern ein aus der Bioakkumulation abgeleitetes, indirektes Mass atmosphärischer Deposition. Im Moos-Survey werden gegen 40 Metalle, N und POP erfasst (Berg & Steinnes 1997, Berg et al 2003, Harmens et al 2010, Holy et al 2010, ICP Vegetation 2015, Schröder et al 2008, 2010). Die methodisch harmonisiert und qualitätskontrolliert erhobenen Daten werden u.a. für den empirischen Nachweis des grenzüberschreitenden Ferntransports von Luftschadstoffen in Europa, zur Detektion wichtiger Schadstoff-Emissionsquellen, zur Validierung der EMEP-Modellierungen, für die Ermittlung von zeitlichen Trends sowie für Kartierungen der Deposition von N und Schwermetallen (Cd, Hg, Pb) verwendet und dienen so insbe-

sondere auch der Evaluation der Wirksamkeit immissionsschutzpolitischer Massnahmen in Europa (Harmens et al 2010, ICP Vegetation 2015, Schröder et al 2011a, 2011b, 2012).

Auch die deutsche Luftreinhaltepolitik wird durch Monitoring sowie Modellierung und Kartierung fachlich fundiert: Die sechs in das EMEP-Netz integrierten Depositionsmessstationen des Bundes werden durch Depositionsmessnetze der Bundesländer ergänzt. Die Daten der Depositionsmessnetze von Bund und Ländern werden zur Validierung der Depositionsmodellierung für das Gebiet Deutschlands, für eine höhere räumliche Auflösung der daraus mit LOTOS-EUROS berechneten Depositionskarten und für die Erfassung ökosystemspezifischer Belastungen infolge Überschreitung systemspezifischer Wirkungsschwellen durch atmosphärische Deposition verwendet (Bultjes et al 2011, Nagel et al 2008, 2011). Die Depositionsmessung und -modellierung in Deutschland dient so der räumlichen Spezifikation der entsprechenden Aktivitäten auf europäischer Ebene.

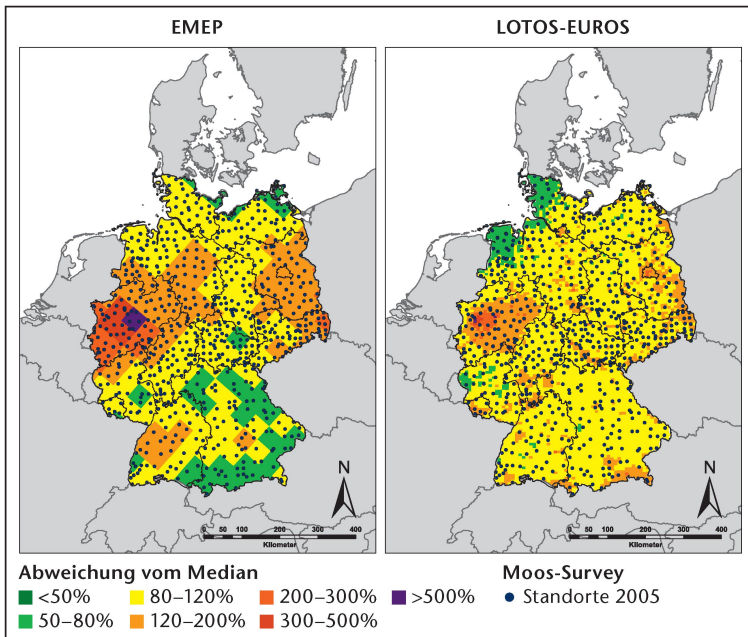
Ziel der vorliegenden Datenanalyse ist die vergleichende Gegenüberstellung von Ergebnissen der beiden chemischen Transportmodelle zur Berechnung der atmosphärischen Schwermetalldeposition (EMEP MSC-E und LOTOS-EUROS) mit Daten aus dem europäischen Moos-Survey.

## Material und Methoden

Untersucht werden die Konzentrationen folgender Schwermetalle in modellierter atmosphärischer Deposition und in Moosen (Tabelle 1): Arsen (As), Cadmium (Cd), Chrom (Cr), Kupfer (Cu), Nickel (Ni), Blei (Pb), Vanadium (V) und Zink (Zn; = Spektrum der LOTOS-EUROS-Modellierungen). Detailliertere Angaben zum EMEP-Depositionsmodell finden sich in Tørseth et al (2012), Travnikov & Ilyin

Quelle	Umfang/Probenart	Elemente	Einheit	2003	2004	2005	2006	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013
LE	Modell, 25 km × 25 km, Europa (2005) und 7 km × 7 km, Deutschland (2009–2011)	Cd, Pb	µg/(m²×j)			●				●	●	●		
LE	Modell, 25 km × 25 km, Deutschland	As, Cr, Cu, Ni, V, Zn	µg/(m²×j)							●	●	●		
EMEP	Modell, 50 km × 50 km, Deutschland und Europa	Cd, Pb	µg/(m²×j)			●				●	●	●		
EMS*	Konzentration im Moos, Deutschland und Europa	As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V, Zn	µg/g			●								
EMS**	Konzentration im Moos, geostatistische Flächenschätzung, Deutschland und Europa	As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V, Zn	µg/g			●								

**Tab 1** Daten für die integrative Analyse von Schwermetallkonzentrationen in atmosphärischer Deposition und Moosen. LE = LOTOS-EUROS, EMEP = European Monitoring and Evaluation Programme, EMS = europäischer Moos-Survey, ● = Korrelationsanalysen und räumliche Analysen, \* plus 41 Proben des Jahres 2004 aus Nordwestdeutschland, \*\* Pesch et al 2007.



**Abb 1** Abweichung der modellierten Cd-Gesamtdeposition (Mittelwerte der Jahre 2009–2011) aus EMEP (links) bzw. LOTOS-EUROS (rechts) vom jeweiligen deutschlandweiten Median sowie Monitoringstandorte des europäischen Moos-Survey (Kampagne 2005/06).

(2005) sowie in Travnikov et al (2012), zum Modell LOTOS-EUROS in Builtjes et al (2011) sowie Schaap et al (2008).

Die aktuellsten Daten aus dem europäischen Moos-Survey für das Bundesgebiet stammen aus der Kampagne 2005/2006, da dieser im Jahr 2010 ohne Beteiligung Deutschlands stattfand. In Europa umfasste das Monitoringmessnetz 2005 5424 Standorte in 27 Staaten, davon in Deutschland 728 Standorte (Abbildung 1). Letzteren wurden weitere 41 Probenentnahmestellen aus Studienprojekten der Universität Vechta des Jahres 2004 hinzugefügt. Aus den punktuell erhobenen Konzentrationen im Moos wurden mithilfe von geostatistischen Verfahren flächenhafte Schätzdaten der Gehalte von zwölf Schwermetallen (u.a. As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V und Zn) in einer räumlichen Auflösung von 3 km × 3 km berechnet und kartiert. Die Flächenschätzungen werden im Abschnitt «Diskussion» für eine methodenkritische Erörterung der Ergebnisse aus den Punktdaten verwendet.

Für die vergleichende Analyse wurde die atmosphärische Cd- und Pb-Gesamtdeposition mit LOTOS-EUROS für das Bezugsjahr 2005 in einer Auflösung von 25 km × 25 km berechnet und die entsprechende EMEP-Modellierung hinzugezogen. Da für As, Cr, Cu, Ni, V und Zn keine zeitlichen Trends der Emissionen bekannt sind und keine anderen Modellierungen für diese Schwermetalle zur Verfügung standen, wurde das Mittel der LOTOS-EUROS-Gesamtdeposition der Jahre 2009–2011 verwendet. Dazu wurde das in jedem LOTOS-EUROS-Rasterelement entsprechend der Landnutzungsverteilung

gewichtete Mittel aus trockener und nasser Deposition herangezogen, da dieses die zentrale Tendenz der Verteilung in jedem Raster (25 km × 25 km) am besten kennzeichnet. Ergänzend wurde die nutzungsspezifische Cd- und Pb-Gesamtdeposition untersucht und zwar für die Landnutzungsklassen Nadelwald, Laubwald und Grasland, da nur diese bei EMEP und LOTOS-EUROS berücksichtigt werden. Geeignete Metadaten zur Landnutzung an den Moosentnahmestellen lagen im Jahr 2005 für 152 EMEP- und 209 LOTOS-EUROS-Rasterzellen über Deutschland vor. Dabei handelt es sich überwiegend um Standorte in Waldlichtungen.

Die Datenanalysen erfolgten mit R (R Development Core Team 2013). Für die integrierte Auswertung der Schwermetalldaten wurde die Messnetzgeometrie des Moos-Surveys mit den Rastern von EMEP (50 km × 50 km) und LOTOS-EUROS (25 km × 25 km) räumlich verknüpft, und es wurden deskriptiv-statistische Verteilungskennwerte (Minimum, Maximum, Median, Mittelwert, Standardabweichung) ermittelt. Um die Validität der räumlichen Muster modellierter Schwermetalldepositionen empirisch zu untersetzen, wurden die statistischen Beziehungen zwischen den mit EMEP und LOTOS-EUROS modellierten Depositionsdaten und den Daten aus dem europäischen Moos-Survey mit Korrelationsanalysen quantifiziert (EMEP: Cd, Pb; LOTOS-EUROS: As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, V und Zn). Die Korrelationskoeffizienten wurden nach Brosius (2013) eingestuft als sehr schwach (<0.2), schwach (0.2 bis 0.4), mittel (0.4 bis 0.6), stark (0.6 bis 0.8) oder sehr stark (>0.8).

Die Signifikanz der Unterschiede der Korrelationskoeffizienten wurde nach Gleichung 1 (Sachs & Hedderich 2009) bestimmt. Für den Test wurden die ursprünglich ermittelten Korrelationskoeffizienten (Spearman) nach Sachs & Hedderich (2009) in den transformierten Korrelationskoeffizienten nach Fisher überführt und dann in die Gleichung 1 eingesetzt.

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^k (n_i - 3)(z_i - z)^2 \quad (1)$$

mit:

$\chi^2$  = Prüfwert

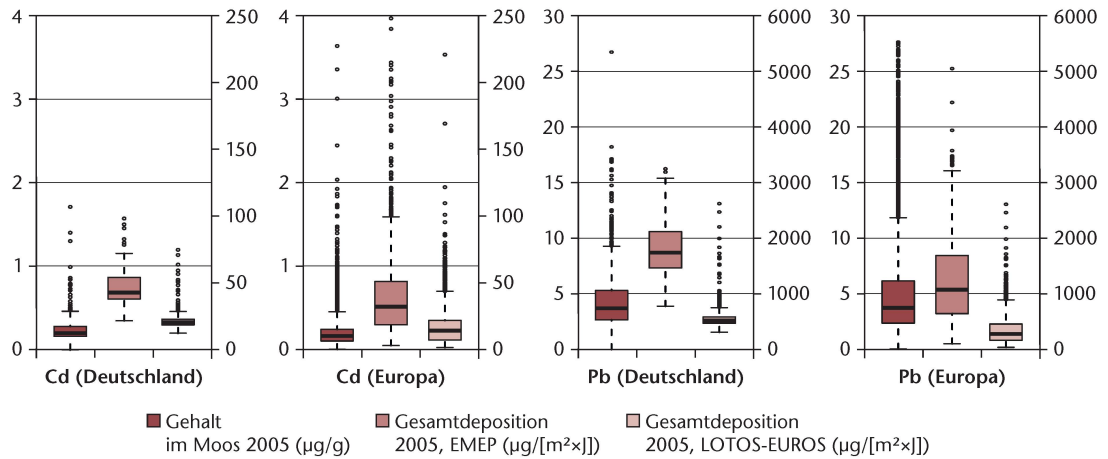
$k$  = Freiheitsgrad (Anzahl der Koeffizienten)

$n_i$  = Anzahl der Proben

$z_i$  = Transformierter Korrelationskoeffizient nach Fisher

$z$  = Hypothetischer z-Wert nach Sachs & Hedderich (2009)

Entsprechend wurden die sowohl mit EMEP als auch mit LOTOS-EUROS erzielten Ergebnisse für Cd und Pb miteinander verglichen und mit  $\alpha = 0.05$  geprüft, ob die Unterschiede der Korrelationskoeffizienten statistisch signifikant sind. Die Analysen erfolgten auf europäischer Ebene, deutschlandweit und für unterschiedliche Stufen der Schwermetallgehalte im Moos.



**Abb 2** Verteilung der gemessenen Cd- und Pb-Gehalte im Moos (linke Skala) und der mit LOTOS-EUROS sowie EMEP modellierten Gesamtdeposition (rechte Skala). Für Europa sind bei Cd (Moos, EMEP) und Pb (EMEP) nicht alle (Extrem-)Werte abgebildet. Man beachte die unterschiedlichen Skalen.

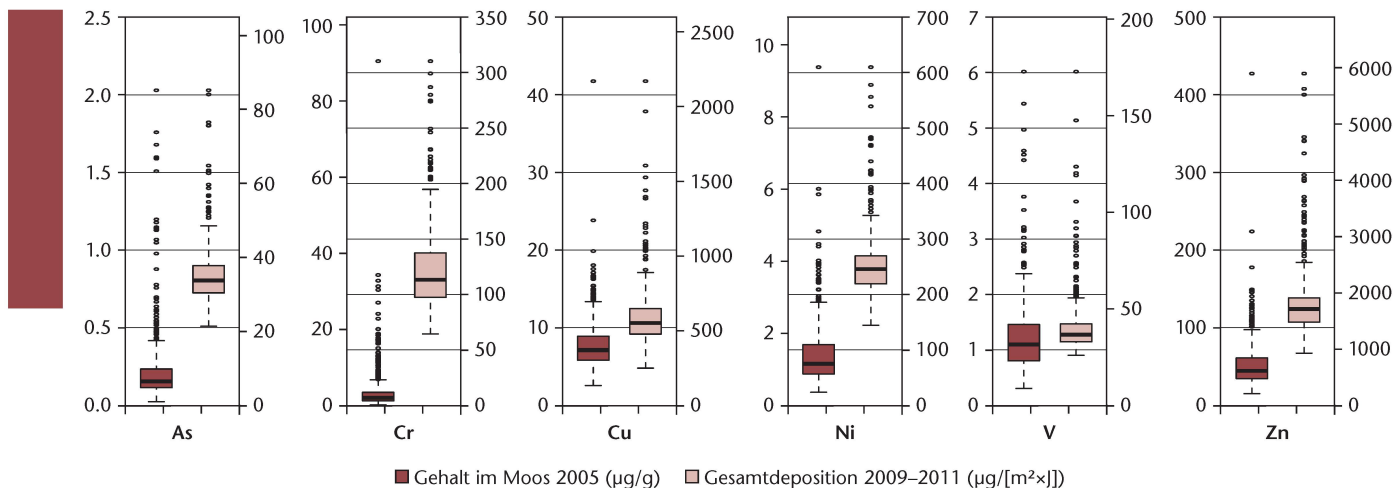
Element	Stratifizierung der Moosproben	n	$r_s$ (LE)	$p$ (LE)	$r_s$ (EMEP)	$p$ (EMEP)
Cd	Deutschland	751	<b>0.31</b>	<0.01	0.27	<0.01
	Deutschland, Nadelwald	151	0.35	<0.01	<b>0.44</b>	<0.01
	Deutschland, Laubwald	40	0.11	0.51	0.12	0.47
	Deutschland, Grasland	18	<b>0.60</b>	<0.01	0.34	0.17
	Deutschland, untere Hälfte (<P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	340	<b>0.20</b>	<0.01	0.17	<0.01
	Deutschland, obere Hälfte (>P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	411	<b>0.23</b>	<0.01	0.19	<0.01
	Europa	5299	<b>0.66</b>	<0.01	0.59	<0.01
	Europa, untere Hälfte (<P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	2630	<b>0.50</b>	<0.01	0.24	<0.01
	Europa, obere Hälfte (>P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	2669	0.45	<0.01	<b>0.49</b>	<0.01
Pb	Deutschland	753	<b>0.35</b>	<0.01	0.31	<0.01
	Deutschland, Nadelwald	151	<b>0.44</b>	<0.01	0.41	<0.01
	Deutschland, Laubwald	40	0.12	0.04	<b>0.42</b>	<b>0.02</b>
	Deutschland, Grasland	18	0.34	0.97	-0.28	0.31
	Deutschland, untere Hälfte (<P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	378	0.12	0.02	<b>0.22</b>	<0.01
	Deutschland, obere Hälfte (>P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	375	<b>0.23</b>	<0.01	0.17	<0.01
	Europa	5305	0.56	<0.01	<b>0.65</b>	<0.01
	Europa, untere Hälfte (<P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	2659	<b>0.52</b>	<0.01	0.47	<0.01
	Europa, obere Hälfte (>P <sub>50</sub> ) der Konzentration im Moos	2646	0.32	<0.01	<b>0.47</b>	<0.01

**Tab 2** Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen den gemessenen Cd- und Pb-Gehalten im Moos und der mit LOTOS-EUROS (LE) und EMEP modellierten Gesamtdeposition über Deutschland und Europa. P<sub>50</sub> = 50. Perzentil, n = Stichprobenanzahl, r<sub>s</sub> = Korrelationskoeffizient nach Spearman, fett = im Vergleich höhere signifikante Korrelation mit p < 0.05.

## Ergebnisse

An den 769 untersuchten Probestellen in Deutschland (Bezugsjahr 2005) beträgt der Median der Cd-Gehalte im Moos 0.20 µg/g (Minimum: 0.06 µg/g; Maximum: 1.71 µg/g), in Europa 0.17 µg/g (Minimum: 0.01 µg/g; Maximum: 6.72 µg/g; Abbildung 2). Der Median der modellierten Cd-Deposition im Wald (= Mittel der Deposition im Nadel- und Laubwald) ist bei EMEP in Deutschland durchschnittlich um das 3.2-Fache höher und bei LOTOS-EUROS um das 1.4-Fache höher als die modellierte Deposition im Grasland (nicht dargestellt). Zwischen dem Cd-Gehalt im Moos in Deutschland und der

mit LOTOS-EUROS modellierten Cd-Deposition besteht nach Eliminierung von Ausreissern grösser als die dreifache Standardabweichung der Elementgehalte im Moos ein statistischer Zusammenhang mit r<sub>s</sub> = 0.31 (p < 0.01; Tabelle 2). Ein signifikanter Zusammenhang ist auch mit dem EMEP-Modell feststellbar (r<sub>s</sub> = 0.27, p < 0.01). Gemäss Gleichung 1 ist dieser Unterschied aufgrund der hohen Stichprobenanzahl als statistisch signifikant einzustufen (p < 0.05). Auf europäischem Massstab ist die Korrelation ausgeprägter, wobei die Beziehung zu LOTOS-EUROS stärker ist (r<sub>s</sub> = 0.66, p < 0.01) als zur EMEP-Modellierung (r<sub>s</sub> = 0.59, p < 0.01). Die Unterschiede der Korrelationskoeffizienten sind ebenfalls statistisch signifi-



**Abb 3** Verteilung der gemessenen As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalte im Moos (linke Skala) und der mit LOTOS-EUROS (LE) modellierten Gesamtdeposition (rechte Skala). Man beachte die unterschiedlichen Skalen.

Element	n <sub>(LE)</sub>	r <sub>s</sub> (LE)	p <sub>(LE)</sub>
As	752	<b>0.29</b>	<b>&lt;0.01</b>
Cr	765	-0.15	<0.01
Cu	758	<b>0.22</b>	<b>&lt;0.01</b>
Ni	756	<b>0.20</b>	<b>&lt;0.01</b>
V	757	<b>0.13</b>	<b>&lt;0.01</b>
Zn	758	<b>0.13</b>	<b>&lt;0.01</b>

**Tab 3** Korrelationskoeffizienten (Spearman) für die Beziehung zwischen den gemessenen As-, Cr-, Cu-, Ni-, V- und Zn-Gehalten im Moos und der mit LOTOS-EUROS (LE) modellierten Gesamtdeposition über Deutschland. n = Stichprobenanzahl, r<sub>s</sub> = Korrelationskoeffizient nach Spearman, fett = signifikant positive Korrelationen mit p < 0.01.

kant (p < 0.05). Beim nutzungsspezifischen Vergleich für Deutschland ergaben sich signifikante Korrelationen zwischen Graslandproben und LOTOS-EUROS (r<sub>s</sub> = 0.34, p < 0.01) sowie zwischen Nadelwaldproben und LOTOS-EUROS (r<sub>s</sub> = 0.35, p < 0.01) bzw. EMEP (r<sub>s</sub> = 0.44, p < 0.01). Damit zeigten sich mit Berücksichtigung der Landnutzungsdaten höhere Korrelationskoeffizienten als ohne diese. Gruppieren man die Cd-Gehalte im Moos in Belastungsstufen, fällt auf, dass im europäischen Massstab oberhalb des 50. Perzentils höhere Korrelationen zu den EMEP-Daten zu finden sind als zu LOTOS-EUROS.

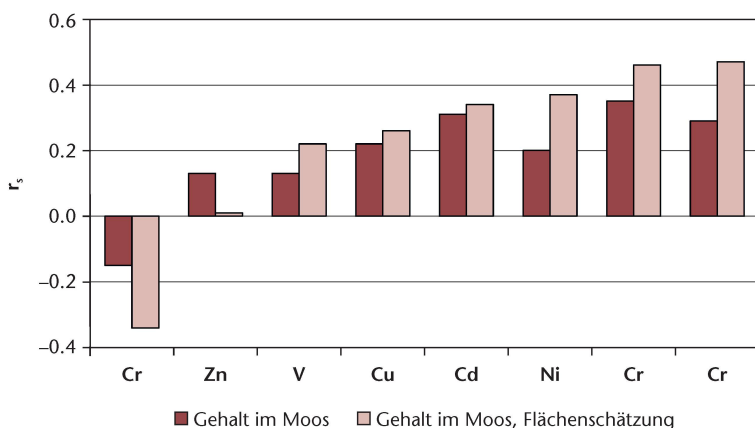
Die Pb-Gehalte im Moos weisen in Deutschland im Jahr 2005 eine Spanne von 1.19 µg/g bis 40.41 µg/g auf (Abbildung 2). Der Median beträgt bundesweit 3.70 µg/g, in Europa 3.79 µg/g. An den Messpunkten des Moos-Surveys berechnet LOTOS-EUROS eine Pb-Gesamtdeposition mit einem Medianwert von 520.99 µg/(m<sup>2</sup>×J) in Deutschland und 290.95 µg/(m<sup>2</sup>×J) in Europa. Dies ist in beiden Fällen auffällig niedriger als bei der entsprechenden EMEP-Modellierung (1739.91 bzw. 1085.50). Werden die nutzungsspezifisch berechneten Depositionen Modell neben Modell miteinander verglichen, lie-

gen die Pb-Depositionen im Wald (Laub-/Nadelwald, gemittelt) bei LOTOS-EUROS um das 1.4-Fache und bei EMEP um das 2.9-Fache höher als im Grasland. Der Zusammenhang zwischen den Pb-Gehalten im Moos und LOTOS-EUROS beträgt für Deutschland r<sub>s</sub> = 0.35 und im Falle von EMEP r<sub>s</sub> = 0.27. Diese vergleichsweise grössere Übereinstimmung der räumlichen Muster der Moosdaten mit LOTOS-EUROS erweist sich nach Gleichung 1 als statistisch signifikant. Die europäischen Moosdaten zeigen eine vergleichsweise höhere Korrelation mit den EMEP-Berechnungen (r<sub>s</sub> = 0.65, p < 0.01) als mit LOTOS-EUROS (r<sub>s</sub> = 0.56, p < 0.01). Dies gilt auch, wenn man die Belastungsstufe oberhalb des 50. Perzentils betrachtet. Der nutzungsspezifische Vergleich führt zu hochsignifikanten Korrelationen (p < 0.01) im Nadelwald (LOTOS-EUROS: r<sub>s</sub> = 0.44, EMEP: r<sub>s</sub> = 0.41) und zu signifikanten Korrelationen (p < 0.05) im Laubwald (LOTOS-EUROS: r<sub>s</sub> = 0.12, EMEP: r<sub>s</sub> = 0.42). Damit zeigt die nutzungsspezifische Betrachtung zumindest bei Nadelwald, bei EMEP zusätzlich auch bei Laubwald, stärkere Korrelationen als ohne Einbeziehung von Landnutzungsdaten.

Die Konzentrationen von As, Cr, Cu, Ni, V, und Zn bewegen sich in den Moosproben des Jahres 2005 in einem grossen Bereich mit bundesweiten Medianwerten von 0.17 µg/g bei As (Minimum: 0.004 µg/g, Maximum: 21.60 µg/g), 1.29 µg/g bei Cr (0.01–90.74 µg/g), 5.34 µg/g bei Cu (0.01–671.92 µg/g), 1.39 µg/g bei Ni (0.03–1016.03 µg/g), 1.40 µg/g bei V (0.02–43.50 µg/g) und 32.49 µg/g bei Zn (6.06–693.83 µg/g; Abbildung 3). Zwischen den gemessenen Werten (Moos-Survey) und den modellierten Daten (LOTOS-EUROS, Mittelwert der Jahre 2009–2011) bestehen signifikant positive Korrelationen (p < 0.01; Spearman) für As, Cu, Ni, V und Zn, wobei die Korrelationen bei As, Cu und Ni schwach (r<sub>s</sub> zwischen 0.2 und 0.29) und bei V und Zn sehr schwach sind (r<sub>s</sub> = 0.13). Bei Cr zeigt sich

Probenart (Moos)	Element	$r_{(LE)}$	$r_{(EMEP)}$	$r_{(LE\_EMEP)}$
<b>Gemessene Werte</b>				
Deutschland	Cd	0.31	0.27	<b>0.32</b>
Europa	Cd	<b>0.66</b>	0.59	0.63
Deutschland	Pb	<b>0.35</b>	0.31	<b>0.35</b>
Europa	Pb	0.56	<b>0.65</b>	0.64
<b>Geostatistische Flächenschätzung</b>				
Deutschland	Cd	0.37	0.43	<b>0.48</b>
Europa	Cd	<b>0.81</b>	0.70	0.75
Deutschland	Pb	0.49	0.44	<b>0.52</b>
Europa	Pb	0.42	<b>0.57</b>	0.56

**Tab 4** Synopse der Korrelationskoeffizienten (Spearman;  $r_s$ ) für die Beziehung zwischen Cd- und Pb-Gehalten im Moos und der mit LOTOS-EUROS (LE) und EMEP modellierten Gesamtdosition über Deutschland bzw. Europa. Fett = im Vergleich höchste signifikante Korrelation mit  $p < 0.05$ ,  $LE\_EMEP = (LE + EMEP)/2$ .



**Abb 4** Korrelationskoeffizienten (Spearman;  $r_s$ ) für die Beziehung zwischen LOTOS-EUROS-Depositionsberechnung (Cd, Pb: 2005; As, Cr, Cu, Ni, V, Zn: 2009–2011) und gemessener Schwermetallkonzentration bzw. geostatistischer Flächenschätzung der Schwermetallkonzentration im Moos des Jahres 2005.

ein negativer statistischer Zusammenhang, wobei die Korrelation sehr schwach ist ( $r_s = -0.15$ ; Tabelle 3).

### Diskussion der Aussagekraft räumlich punktueller Befunde

Bei der Einordnung der Schwermetallakkumulation in Moosen zeigt sich, dass die in Deutschland im Jahr 2005 gemessenen Werte bei Cd lediglich um rund 18% höher und bei Pb um rund 3% tiefer liegen als der entsprechende europäische Median (Abbildung 2). Nimmt man die quasi natürlichen Hintergrundwerte aus der Umgebung der Forschungsstation Zackenberg in Nordostgrönland hinzu (Zechmeister et al 2010), sind sie jedoch im Mittel um den Faktor 5.4 (Cd) bzw. 38.7 (Pb) höher als die durch anthropogene Deposition weitgehend unbeeinflussten Referenzwerte (Cd: 0.041  $\mu\text{g/g}$ , Pb: 0.16  $\mu\text{g/g}$ ).

Vergleiche von Moosdaten mit Modellierungen erfolgten bisher v.a. auf der Basis der EMEP-Depositionsdaten (Harmens et al 2010, Schröder et al 2011) für Cd, Hg und Pb. LOTOS-EUROS erlaubte eine Erweiterung auf As, Cr, Cu, Ni, V, Zn und eine vergleichende Analyse zweier chemischer Transportmodelle (für Cd und Pb). Da die modellierten Depositionsdaten anders als die bisher betrachteten Primärdaten des europäischen Moos-Surveys keine Punkt-, sondern Flächendaten sind, wurden zur Absicherung der zuvor berichteten Zusammenhänge die Punktdaten des europäischen Moos-Surveys mit geostatistischen Methoden auf die Fläche hochgerechnet (Goovaerts 1999, Johnston et al 2003, Pesch et al 2007) und anschliessend ebenfalls mit den LOTOS-EUROS- und EMEP-Depositionsmodellierungen verglichen.

In der synoptischen Betrachtung der signifikanten und vergleichbaren Korrelationen zeigen sich zwischen den Depositionsmodellierungen und den Cd- und Pb-Konzentrationen im Moos (Survey 2005) signifikante Korrelationen mit  $r_s$  zwischen 0.31 und 0.81 (LOTOS-EUROS) bzw. zwischen 0.27 und 0.70 (EMEP; Tabelle 4). LOTOS-EUROS zeigt hier in fünf von acht Fällen stärkere Zusammenhänge zu den Moosdaten als EMEP. Gruppirt man die Fälle mit höheren Korrelationen zu EMEP, zeigt sich, dass diese deutschland- wie europaweit nur oberhalb des 50. Perzentils der Schwermetallgehalte im Moos auftreten (Tabelle 2). Auch der direkte Vergleich zwischen LOTOS-EUROS und EMEP (2009–2011) zeigt die grössten Differenzen beider Modellierungen in den Bereichen mit hoher Schwermetalldeposition (z.B. in Nordrhein-Westfalen). Der Befund, dass das arithmetische Mittel der LOTOS-EUROS- und EMEP-Modellierungen bei Cd und Pb teilweise zu stärkeren Zusammenhängen als die Betrachtung der einzelnen Modelle führt (Tabelle 4), zeigt aber, dass LOTOS-EUROS nicht eindeutig der Vorzug vor EMEP zu geben ist, sondern eine integrierte Nutzung beider Modellierungen zu empfehlen ist. Dabei ist auch zu beachten, dass aus der Bioindikation mit Moosen kein Rückschluss auf die absolute Genauigkeit der jeweiligen Modellierungsmethode gezogen werden kann und dass Stoffkonzentrationen in Moosen neben der hier untersuchten atmosphärischen Deposition noch von einer Reihe weiterer Einflussfaktoren wie orografische Höhe, Niederschlag, Landnutzung, Bevölkerungsdichte oder Überschildung in Wäldern abhängig sind (Meyer et al 2015, Nickel et al 2014). Die vorgestellte Komplementärmethodik ist damit vornehmlich für weiträumige Untersuchungen von Schwermetalleinträgen geeignet. Wegen den grossen Unterschieden zwischen modellierter Deposition im Wald und im Grasland (bei Cd 1.4- bis 3.2-mal, bei Pb 1.4- bis 2.9-mal höher in Wald als im Grasland) sind für standortbezogene Untersuchungen auch vorzugsweise die jeweiligen nutzungs-spezifischen Modellierungen heranzuziehen.

Die Korrelationen zwischen der LOTOS-EUROS-Gesamtdeposition und den entsprechenden Gehalten im Moos sind bei den geostatistischen Flächenschätzungen in der Regel höher als bei den in Moosen gemessenen Werten (Abbildung 4). Die geostatistisch berechneten Konzentrationen im Moos zeigen mittlere Korrelationen bei As und Pb ( $p < 0.01$ ) und schwache Korrelationen bei Ni, Cd, Cu und V.

Wie bereits bei den gemessenen Werten ist bei Cr auch bei den geostatistischen Flächenschätzungen eine negative Korrelation festzustellen. Geht man diesem Zusammenhang auf den Grund, zeigt sich, dass in Mecklenburg-Vorpommern im Jahr 2005 mit einem Medianwert von 7.18  $\mu\text{g/g}$  auffällig hohe Cr-Konzentrationen gemessen wurden (Deutschland: 1.29  $\mu\text{g/g}$ ), die LOTOS-EUROS-Modellierungen im Mittel der Jahre 2009–2011 aber kaum erhöhte Cr-Depositionen ergaben (Mecklenburg-Vorpommern: 82.18  $\mu\text{g}/[\text{m}^2 \times \text{J}]$ , Deutschland: 74.92  $\mu\text{g}/[\text{m}^2 \times \text{J}]$ ). Als mögliche Ursache wurde auf einer internationalen Tagung in Tallinn (6.–8. Mai 2009) ein in Abhängigkeit von der vorherrschenden Windrichtung und der Wirtschaftslage erhöhter atmosphärischer Cr-Transport aus einer auf der Halbinsel Kola gelegenen Chromine diskutiert (Kratz & Schröder 2010). Die vorgestellte Komplementärmethodik unter Einbezug eines zweiten Depositionsmodells und des Biomonitorings mit Moosen unterstützt die kritische Einordnung von Modellierungsergebnissen, die immer auch Einflüssen von Daten- und Modellunsicherheiten unterliegen. Dabei eignet sich der europäische Moos-Survey primär dazu, die räumlichen Muster zu vergleichen und auf diese Weise Unsicherheiten in der Modellierung (z.B. aufgrund nicht berücksichtigter Emissionsquellen) zu lokalisieren. Dabei deuten schwache Korrelationen, wie sie sich sowohl mit den gemessenen Werten als auch den geostatistischen Flächenschätzungen (mehrheitlich höhere Korrelationskoeffizienten) zeigten, auf Unähnlichkeit der räumlichen Muster hin. Für Vergleiche mit flächenhaften Depositionsmodellierungen ist bei der Planung künftiger Kampagnen des europäischen Moos-Surveys daher weiterhin auf die räumliche Anordnung und eine ausreichende Dichte des Messnetzes zu achten, um geostatistisch valide und damit räumlich verallgemeinerbare Resultate erzielen zu können. ■

Eingereicht: 27. Juli 2016, akzeptiert (mit Review): 11. Januar 2017

## Literatur

- AAS W, BREIVIK K (2009) Heavy metals and POP measurements 2007. Kjeller: Norwegian Institute for Air Research, EMEP/CCC-Report 3/2009. 117 p.
- BERG T, HJELLBREKKE A, RÜHLING Å, STEINNES E, KUBIN E ET AL (2003) Absolute deposition maps of heavy metals for the Nordic countries based on the moss survey. Copenhagen: Nordic Council of Ministers, TemaNord 2003: 505.
- BERG T, STEINNES E (1997) Use of mosses (*Hylocomium splendens* and *Pleurozium schreberi*) as biomonitors of heavy metal deposition: from relative to absolute values. *Environ Pollut* 98: 61–71.
- BROSIUS F (2013) SPSS 21. Heidelberg: Mitp. 1052 p.
- BUILTJES P, HENDRIKS E, KOENEN M, SCHAAP M, BANZHAF S ET AL (2011) Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland. Dessau: Umweltbundesamt, UBA-Texte 38/2011. 154 p.
- FRAHM J P (1998) Moose als Bioindikatoren. Wiesbaden: Quelle & Meyer, Biologische Arbeitsbücher 57. 187 p.
- GOOVAERTS P (1999) Geostatistics in soil science: state-of-the-art and perspectives. *Geoderma* 89: 1–45.
- HARMENS H, NORRIS D A, STEINNES E, KUBIN E, PIISPANEN J ET AL (2010) Mosses as biomonitors of atmospheric heavy metal deposition: spatial and temporal trends in Europe. *Environ Pollut* 158: 3144–3156.
- HARMENS H, FOAN L, SIMON V, MILLS G (2013) Terrestrial mosses as biomonitors of atmospheric POPs pollution: A review. *Environ Pollut* 173: 245–254.
- HARMENS H, MILLS G, HAYES F, NORRIS D, SHARPS K (2015) Twenty eight years of iCP Vegetation. An overview of its activities. *Ann Bot* 5: 31–43.
- HOLY M, SCHRÖDER W, PESCH R, HARMENS H, ILYIN I ET AL (2010) First thorough identification of factors associated with Cd, Hg and Pb concentrations in mosses sampled in the European Surveys 1990, 1995, 2000 and 2005. *J Atmos Chem* 63: 109–124.
- ICP VEGETATION (2015) Heavy metals in European mosses: 2015 survey monitoring manual. Bangor: International Cooperative Programme on Effects of Air Pollution on Natural Vegetation and Crops, ICP Coordination Centre. 15 p.
- ILYIN I, ROZOVSKAYA O, TRAVNIKOVA O, VARYGINA M, AAS W, UGGERUD HT (2011) Heavy Metals: Transboundary pollution of the environment. Moscow: Meteorological Synthesizing Centre – East, EMEP Status Report 2/2011. 92 p.
- JOHNSTON K, VER HOEF J M, KRIVOUCHKO K, LUCAS N (2003) Using ArcGIS geostatistical analyst. Redlands: ESRI. 300 p.
- KRATZ W, SCHRÖDER W (2010) Wider die Vernunft – zum Ende eines Programms effektiver Umweltdatenerhebung in Bundesländer-Kooperation. *Umweltwiss Schadst Forsch* 22: 80–83.
- MEYER M, SCHRÖDER W, HOFFMANN A (2015) Effect of canopy drip on accumulation of nitrogen and heavy metals in moss. *Poll atmos* 226. 16 p. <http://lodel.irevues.inist.fr/pollution-atmospherique/index.php?id=5159> (14.12.2016).
- NAGEL HD, GAUGER T, HAENEL HD, RÖSEMANN C, BECKER R ET AL (2008) Nationale Umsetzung UNECE-Luftreinhaltekonvention (Wirkungen). Teil 2: Wirkungen und Risikoabschätzungen. Dessau: Umweltbundesamt, UBA-Texte 39/2008. 291 p.
- NAGEL HD, SCHLUTOW A, SCHEUSCHNER T, WEIGELT-KIRCHNER R, KLOTZ M ET AL (2011) Erfassung, Prognose und Bewertung von Stoffeinträgen und ihren Wirkungen in Deutschland – MAPESI – (Modelling of Air Pollutant and EcoSystem Impact). Teilaufgabe: Berechnung und Kartierung von Critical Loads und deren Überschreitungen im Rahmen der Genfer UNECE Luftreinhaltekonvention und der EU-Strategie «Clean Air for Europe». Dessau: Umweltbundesamt. 45 p.
- NICKEL S, HERTEL A, PESCH R, SCHRÖDER W, STEINNES E ET AL (2014) Modelling and mapping spatio-temporal trends of heavy metal accumulation in moss and natural surface soil monitored 1990–2010 throughout Norway by multivariate generalized linear models and geostatistics. *Atmos Environ* 99: 85–93.
- NORDBERG GF, FOWLER BA, NORDBERG M (2015) Handbook on the toxicology of metals. Amsterdam: Elsevier, 4 ed, Vol. 1: 1–545, Vol 2: 1–1385.
- PESCH R, SCHRÖDER W, GENSSLER L, GOERITZ A, HOLY M ET AL (2007) Moos-Monitoring 2005/2006: Schwermetalle IV und Gesamtstickstoff. Berlin: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Abschlussbericht. 90 p.

- R DEVELOPMENT CORE TEAM (2013) R: A language and environment for statistical computing. Vienna: R Foundation for Statistical Computing.
- RÜHLING A (1994) Atmospheric heavy metal deposition in Europe. Estimation based on moss analysis. Copenhagen: Nordic Council of Ministers, NORD Report 1994: 9. 53 p.
- SACHS L, HEDDERICH J (2009) Angewandte Statistik. Methodensammlung mit R. Berlin: Springer, 13 ed. 813 p.
- SCHAAP M, SAUTER F, TIMMERMANS R M A, ROEMER M, VELDEERS G ET AL (2008) The LOTOS-EUROS model: description, validation and latest developments. *Int J Environ Pollut* 32: 270–290.
- SCHRÖDER W, PESCH R, ENGLERT C, HARMENS H, SUCHARA I ET AL (2008) Metal accumulation in mosses across national boundaries: uncovering and ranking causes of spatial variation. *Environ Pollut* 151: 377–388.
- SCHRÖDER W, HOLY M, PESCH R, HARMENS H, ILYIN I ET AL (2010) Are cadmium, lead and mercury concentrations in mosses across Europe primarily determined by atmospheric deposition of these metals? *J Soil Sed* 10: 1572–1584.
- SCHRÖDER W, HOLY M, PESCH R, HARMENS H, FAGERLI H (2011A) Mapping background values of atmospheric nitrogen total depositions in Germany based on EMEP deposition modelling and the European Moss Survey 2005. *Environ Sci Eur* 23: 1–9.
- SCHRÖDER W, HOLY M, PESCH R, ZECHMEISTER GH, HARMENS H ET AL (2011B) Mapping atmospheric depositions of cadmium and lead in Germany based on EMEP deposition data and the European Moss Survey 2005. *Environ Sci Eur* 23: 1–9.
- SCHRÖDER W, PESCH R, HARMENS H, FAGERLI H, ILYIN I (2012) Does spatial auto-correlation call for a revision of latest heavy metal and nitrogen deposition maps? *Environ Sci Eur* 24: 1–15.
- TØRSETH K, AAS W, BREIVIK K, FJAERAA A M, FIEBIG M ET AL (2012) Introduction to the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) and observed atmospheric composition change during 1972–2009. *Atmos Chem Phys* 12: 5447–5481.
- TRAVNIKOV O, ILYIN I (2005) Regional model MSCE-HM of heavy metal transboundary air pollution in Europe. Moscow: Meteorological Synthesizing Centre, East, EMEP/MSCE Technical report 6/2005. 59 p.
- TRAVNIKOV O, ILYIN I, ROZOVSKAYA O, VARYGINA M, AAS W ET AL (2012) Long-term changes of heavy metal transboundary pollution of the environment (1990–2010). EMEP contribution to the revision of the Heavy Metal Protocol EMEP. Moscow: Meteorological Synthesizing Centre, East, Status Report 2/2012. 63 p.
- ZECHMEISTER H, DULLINGER S, KÖLLENSPERGER G, ERTL S, LETTNER C ET AL (2010) Do metal concentrations in moss from the Zackenberg area, Northeast Greenland provide a baseline for monitoring? *Environ Sci Pollut Res* 13: 398–405.

## Détermination des apports en métaux lourds en forêt par modélisation et indication biologique avec des mousses

La détermination des dépôts de métaux lourds, auxquels les écosystèmes sont exposés, peut être effectuée par des collecteurs techniques, avec des indicateurs biologiques (p. ex. les mousses) et des modèles de transport chimiques. Le but de cet article est de rassembler et d'évaluer les données d'exposition de l'indication biologique avec des mousses et les résultats validés de deux modèles de dépôts. Il existe, aux niveaux allemand et européen, une relation statistiquement significative avec un coefficient de corrélation (Spearman) entre 0.31 et 0.81 entre les modélisations de dépôts et les concentrations de Cd et Pb dans les mousses (relevées de l'an 2005). Les plus fortes corrélations apparaissent avec une stratification selon l'utilisation du sol. Des corrélations moins significatives sont calculées pour As, Cr, Cu, Ni, V et Zn. Il est démontré que le cadastre des émissions devrait être complété par un suivi biologique des dépôts, différencié selon la localisation et l'écosystème, avec des mousses et par une modélisation et une cartographie de hautes résolutions. Ceci est applicable également pour de faibles dépôts atmosphériques, car les métaux lourds sont persistants et s'accumulent dans les sols, les plantes, les animaux et les hommes.

## Determination of heavy metal deposition in forests by use of modelling and moss biomonitoring

Atmospheric deposition of elements such as heavy metals, to which environmental systems are exposed, can be determined by means of technical samplers, biological samplers such as moss and deposition modelling. This article aims at comparing heavy metal deposition as computed by two chemical transport models with empiric measurements of respective concentrations in moss collected in 2005. For Cd and Pb, the correlations (Spearman) were between 0.31 and 0.81 across Europe and across Germany. Thereby, highest correlations were determined for specific land use classes. For As, Cr, Cu, Ni, V and Zn lower correlations were found. It could be shown that heavy metals emission inventories should be complemented by spatial and ecosystem type-specific biomonitoring with moss and modelling at high spatial resolution. This should apply even if emission and atmospheric deposition of heavy metal are low since heavy metals are persistent and, therefore, accumulate in ecosystems.