

Schlussbericht zum Projekt

**UNTERSUCHUNG DER HISTORISCHEN UND AKTUELLEN MUSTER VON NO_x
DEPOSITIONEN IN JAHRINGEN ENTLANG DER TRANSITACHSEN:**

ANALYSE STABILER N, C- UND O ISOTOPENVERHÄLTNISSE

APRIL, 2008

**ROLF SIEGWOLF, MATTHIAS SAURER
PAUL SCHERRER INSTITUT, 5232 VILLIGEN**

Inhaltsverzeichnis

1. Zusammenfassung	3
1.1 Relevanz der Resultate	3
1.2 Neue Untersuchungsmethoden	3
2. Ausgangslage	5
3. Standortwahl und Methoden	7
3.1 Standorte der Beprobungen für Jahrringe	7
3.2 Aufbereitung des Materials:	9
4. Resultate	10
4.1 Jahrringbreite	10
4.2 Kohlenstoffisotope in Jahrringen	11
4.3 Sauerstoffisotope in Jahrringen	12
4.4 Isotopenresultate vom Standort Faido	13
4.5 Stickstoffkonzentration in den Baumringen	14
4.6 Stickstoff-Isotopenverhältnisse ($\delta^{15}\text{N}$) in den Baumringen	14
4.7 Nadelprobenanalysen	16
4.8 Mapping	17
5. Beurteilung der Resultate	20
5.1 Theoretischer Hintergrund	21
5.2 Zusammenfassung der Ergebnisse und Bewertung	23
5.3 Kritische Betrachtung des Projektverlaufes	24
5.4 Schlussfolgerungen	25
6. Ausblick	26
6.1 Weitere Beprobungen, was, wo, welche Zusatzinformationen	26
6.2 Welche Entwicklungen in diesem Projekt bevorstehen	26
6.3 Was noch untersucht werden könnte, als „nice to have“	27
7. Literaturverzeichnis:	29
Anhang	30

1. ZUSAMMENFASSUNG

Die Frage nach den Auswirkungen der NO_x-Emissionen, welche vorwiegend bei Verbrennungsprozessen der Industrie, Hausbeheizung und vor allem im Verkehr bei Verbrennungsmotoren entstehen, bleibt trotz Einsatz von Abgaskatalysatoren aktuell. Dies trifft vor allem für Gebiete entlang stark frequentierter Strassen, in der Umgebung von Industriezentren und in den Städten zu. Als weitere reaktive gasförmige N-Verbindung ist auch NH₃ von Bedeutung. Vor allem Intensivtierhaltungen und Landwirtschaftsbetriebe gelten als starke NH₃ Quellen. Jedoch sind die langfristigen Auswirkungen der direkten Aufnahme des reduzierten Stickstoffes (NH₃) auf die Pflanzen weniger bekannt.

Das BAFU ermöglichte im Jahr 2005 eine Machbarkeitsstudie, so dass die im Folgenden aufgeführten Indikatoren getestet werden konnten. Dazu wurden vorhandene Daten aus früheren Labor und Feld-Studien zur Auswirkung des verkehrsbedingten NO_x mit neu erhobenem Datenmaterial von drei Standorten in Autobahnnähe überprüft. Jahrring-bohrkerne und Nadelproben wurden in Erstfeld, Faido und Koppigen entnommen und auf die stabilen Stickstoff-, Kohlenstoff- und Sauerstoff-Isotopenverhältnisse und Jahrringbreiten untersucht. Die im Verlauf dieser Untersuchungen gemachten Erfahrungen zeigen deutlich auf, was sich als bewährtes Verfahren für Diagnose und Überwachung etablieren lässt und wo weiterer Forschungsbedarf ist.

1.1 Relevanz der Resultate

NO_x wirkt unmittelbar auf die Pflanzen ein, da Stickoxide direkt über die Blätter via Stomata (Poren auf den Blättern, durch welche der CO₂ und H₂O-Gasaustausch stattfindet) aufgenommen werden. Der so gewonnene Stickstoff hat einerseits Düngewirkung, ist andererseits aufgrund des am Stickstoff gebundenen Sauerstoffatoms für die Pflanzen toxisch. Zwar fördert eine chronische NO_x Exposition das oberirdische Wachstum der Bäume (Düngeeffekt), die Wurzelmasse nimmt aber nicht mit der gleichen Wachstumsrate wie der oberirdische Teil der Pflanze zu und bleibt gegenüber dem Sprosswachstum zurück. Da der Grossteil des Stickstoffes in den Blättern benötigt wird signalisiert ein Regelmechanismus der Gesamtpflanze, wenn ausreichend Stickstoff zur Verfügung steht, dass die Bildung der Wurzelbiomasse reduziert werden kann. Dies führt langfristig zu einem Nährstoffungleichgewicht; wohl ist genügend Stickstoff vorhanden, da ein Teil davon über die Blätter aufgenommen wird, aber die übrigen Nährstoffe können wegen der ungenügend ausgebildeten Wurzelmasse nicht in ausreichender Menge aufgenommen werden. Dadurch wird auch die Anfälligkeit der Bäume auf Trockenstress erhöht, da die Blattmenge im Verhältnis zur Wurzelmasse zu groß ist und so bei Trockenperioden die Wasserversorgung der Kronen nicht mehr voll gewährleistet ist. Außerdem führt eine erhöhte Stickstoffaufnahme zu erhöhtem Wasserverlust, da ein erhöhtes Stickstoffangebot die Pflanzen zur Erweiterung der Stomata veranlasst, was die Anfälligkeit gegenüber Trockenheit zusätzlich erhöht. Als weitere mögliche Auswirkung sei die verringerte Verankerung der Bäume erwähnt,

wodurch eine Häufung des Windwurfes zu erwarten ist.

1.2 Neue Untersuchungsmethoden

Es konnte gezeigt werden, dass oben erwähnten Veränderungen im Stoffwechsel eine Verschiebung der stabilen N-, C-, und O- Isotopenverhältnisse* bewirken und diese als sehr spezifische Indikatoren im Zusammenhang mit der NO_x-Belastung genutzt werden können.

NO_x aus dem Straßenverkehr ist mit dem schwereren ¹⁵N Isotop angereichert. Diese Anreicherung zeigt sich auch im Pflanzenmaterial entlang stark frequentierter Strassen. Die direkte NO_x Aufnahme über die Blätter wurde in früheren Versuchen eindeutig nachgewiesen. Damit steht ein Indikator für die NO_x-AUFNAHME durch die Blätter zur Verfügung, welche im Blatt / Nadel-Material und in abgeschwächter Form in den Jahrringen nachgewiesen werden kann.

Bereits geringe Veränderungen im Kohlenstoff- (Photosynthese) und Wasserhaushalt der Pflanzen verursachen deutliche Verschiebungen der C- und O- Isotopenverhältnisse. Diese Verschiebungen werden während der gesamten Wachstumsperiode „aufsummiert“ und im organischen Material (Holz, Blatt / Nadel Material) als Isotopensignal „archiviert“. Die erwähnte Steigerung der Kohlenstoffaufnahme bei gleichzeitig erhöhtem Wasserverlust hinterlässt somit ein spezifisches Kohlenstoff- und Sauerstoff-Isotopenmuster, welches in der Form fast nur bei NO_x- exponierten Pflanzen gefunden wird. Dadurch ist es möglich, die AUSWIRKUNG der NO_x-Exposition auf die Wälder entlang stark befahrener Strassen festzustellen. Dieses Signal zeigt sich am stärksten in den Blättern oder Nadeln und in leicht abgeschwächter Form in den Jahrringen. Durch Einbezug der Jahrringe steht ein Instrumentarium zur Verfügung, mit dem die **räumliche** und vor allem die **zeitliche** Entwicklung der NO_x-Belastung qualitativ und quantitativ beschrieben werden kann.

*Stabile Isotope sind Atome des gleichen Elementes, die sich jedoch nur in der Massenzahl unterscheiden, d.h. sie haben ein oder mehrere Neutronen mehr als das häufigere, gleiche Isotop des selben Elements. Stabile Isotope zerfallen nicht und sind nicht radioaktiv. So besteht der gesamte Kohlenstoffvorrat der Erde aus ca. 98.9% ¹²C und ca. 1.1% aus dem schwereren ¹³C. Bei der Kohlenstoffaufnahme durch die Pflanze wird das leichtere ¹²C-Isotop gegenüber dem schwereren ¹³C bevorzugt, so dass die Pflanzen weniger ¹³C enthalten als die Luft. Durch verschiedene Umwelteinflüsse, welche den Metabolismus beeinträchtigen, kommt es zu einer Verschiebung des ¹³C/¹²C Verhältnisses in der Biomasse.

2. AUSGANGSLAGE

Zunehmender Verkehr sowie die Verbrennung fossiler Rohstoffe in Industrie- und Hausfeuerungen haben die Konzentration von Stickoxiden in der Luft ansteigen lassen. Der Verkehr ist dabei mit 56% Hauptemittent. Hier vermochte die Einführung des Katalysators die Emissionen und damit den Gesamtausstoß an NO_x zu reduzieren (Abbildung 1). Entlang verkehrsreicher Strassen sowie in Siedlungszentren sind jedoch immer noch Überschreitungen der Immissionsgrenzwerte von NO_x festzustellen (BUWAL 1997, 2002).

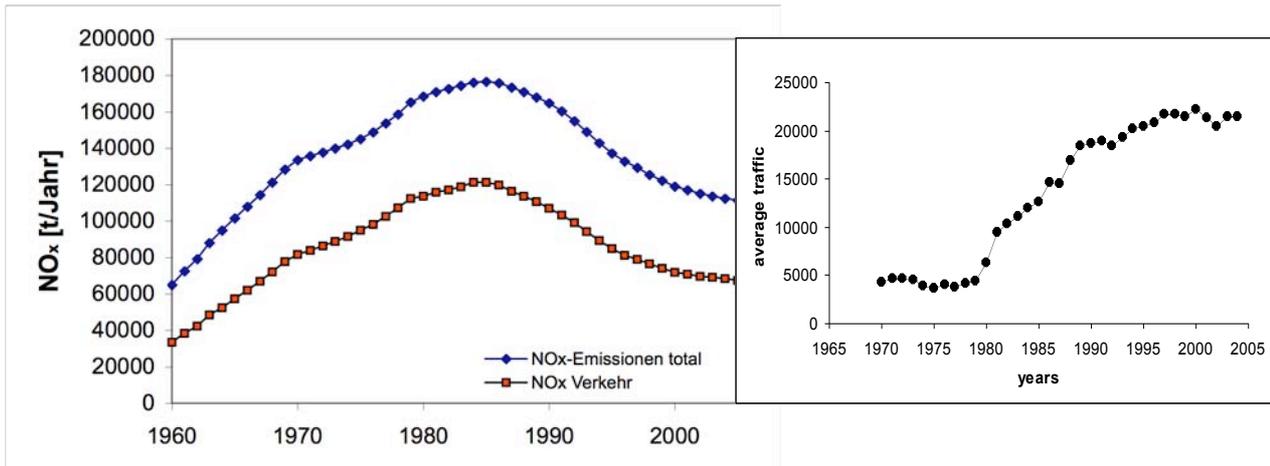


Abb. 1, links: Entwicklung der Stickoxidemissionen [Tonnen/Jahr] in der Schweiz, für den Verkehr (Rhomboid) und Total (Quadrat) bis von 1960 bis 2005. Abb. 1 rechts zeigt die Verkehrsentwicklung von 1970 bis 2005 in Erstfeld [Fahrzeuge/Tag].

In der Nähe von Schadstoffquellen sind erhöhte NO_x -Konzentrationen festzustellen, die zum Teil schon nach kurzer Distanz auf Werte geringer Belastung zurückgehen. Untersuchungen entlang eines Autobahnteilstückes zeigen abnehmende Stickstoffdioxidkonzentrationen mit steigender Autobahntfernung (Hickman et al., 2002; Ammann et al., 1999). Andererseits können bei Hangwinden und entsprechend grossräumigen Turbulenzen NO_x befrachtete Luftmassen in grosse Höhen getragen und so die höher gelegenen Gebiete (tritt insbesondere in rel. engen Alpentälern auf), entfernt von den Emittenten einer beträchtlichen Belastung aussetzen.

Hohe Stickoxidkonzentrationen in der Atmosphäre wirken direkt auf die Pflanzen ein. Gasaustausch durch die Stomata, Niederschläge und trockene Deposition bringen NO_x als zusätzlichen Nährstoff in die Ökosysteme. Der zusätzliche Stickstoffeintrag stört somit das natürliche Nährstoff-Gleichgewicht. Einerseits kann NO_2 von der Pflanze verwertet werden und hat dadurch düngende Wirkung. Andererseits wirkt NO_x – insbesondere NO_2 auch toxisch, durch das Freiwerden von O-Radikalen. Das Ausmass der Wirkung hängt stark von den Umweltbedingungen, der NO_2 -Konzentration, der Artenzusammensetzung, der Vegetationsdecke und dem Bodenchemismus ab. Unter gewissen Bedingungen kann der Wald sowohl eine NO_2 -Quelle wie auch eine Senke sein (Rennenberg et al., 1999).

Die Düngewirkung des oxidierten Stickstoffs fördert die Kohlenstofffixierung und das

Kronenwachstum von Bäumen (Schulze, 1989). Da das Blatt ausreichend mit Stickstoff versorgt ist, wird dem Gesamtorganismus durch die Blätter signalisiert (via Phytohormone), dass weniger Kohlenstoff in die Wurzelbiomasse investiert werden muss, da ja genügend Stickstoff im Blatt vorhanden ist, wodurch das Wurzelwachstum mit dem Kronenwachstum nicht mehr im Gleichgewicht ist. Dies kann die Stabilität der Bäume beeinträchtigen. Weitere Effekte der „Düngung via Atmosphäre“ sind Nährstoffungleichgewichte, da andere Elemente durch die reduzierte Wurzelmasse nur noch vermindert aufgenommen werden können, sowie der Verlust von Biodiversität durch die Verdrängung stickstoffempfindlicher Arten.

Zahlreiche Studien haben die schwerwiegenden Konsequenzen einer Stickstoff-Eutrophierung (Überdüngung) nachgewiesen, und gezeigt, dass dies zu lang anhaltenden und tief greifenden Schädigungen von Wäldern führen kann. Jedoch konnte eine direkte Beeinträchtigung des Pflanzenwachstums in Wäldern durch NO₂-Verkehrsemissionen allein bisher nicht eindeutig nachgewiesen werden. Dies kann einerseits auf ein stabiles Waldökosystem hindeuten oder aber auf eine Kompensation von N-Eintrag und N-Verlust wie Auswaschung (Nitrat) oder Ausgasung (N₂O) von Stickstoffverbindungen. Es liegt durchaus auf der Hand, dass die beobachtete, langsame Anreicherung des Stickstoffes plötzlich einen Schwellenwert überschreitet und dann in rascher Abfolge gravierende schädliche Effekte auftreten können (Saurer et al., 2004).

Je nach Struktur eines Ökosystems können die Auswirkungen gasförmiger Stickstoff-Depositionen sehr unterschiedlich sein, was in der Literatur durch zum Teil widersprüchliche Aussagen zum Ausdruck kommt. Im Allgemeinen ist man sich jedoch darüber einig, dass eine Verschiebung des Nährstoffgleichgewichtes zu nachhaltigen Veränderungen eines Ökosystems führt, dies kann besonders für Gebirgswälder sehr problematisch sein.

In diesem Zusammenhang sind die Bemühungen auf politischer Ebene, diese Belastungen so rasch und so wirksam wie möglich zu reduzieren, sehr unterstützenswert. Nebst der Verbesserung der Abgasbehandlung europaweit ist in diesem Kontext auch das Bestreben zu verstehen, den Strassenverkehr, vor allem den Schwerverkehr, durch die empfindlichen alpinen Ökosysteme zu reduzieren und umzuleiten. Damit die Richtigkeit und der Erfolg dieser Anstrengungen auch nachgewiesen werden können, bedarf es der sorgfältigen Untersuchung, um die Wirksamkeit der getroffenen Massnahmen auch überprüfen und quantifizieren zu können.

Seit dem 1. Januar 2001 ist das Verkehrsverlagerungsgesetz in Kraft. Unter der Leitung des Bundesamtes für Verkehr (BAV) wurde im Laufe des Jahres 2001 eine Projektorganisation für das Monitoring der flankierenden Massnahmen (MFM) geschaffen. Der Projektausschuss untersucht die Wirksamkeit der Massnahmen und ist für die Erstellung des Verlagerungsberichtes verantwortlich, der alle 2 Jahre erscheint. Der Projektausschuss hat die Monitoring-Aufgaben auf die Projektgruppen MFM-Verkehr und MFM-Umwelt (MFM-U) aufgeteilt.

Ergänzend zu dieser Initiative wurde das vorliegende Projekt begonnen, um die langfristigen Auswirkungen der Stickstoffbelastungen auf die Waldökosysteme zu untersuchen. Anhand der stabilen C, O, und N Isotopenanalytik an Jahrringen und Nadelproben wird die Entwicklung der NO_x Belastung in den letzten 70-100 Jahren analysiert und deren Auswirkungen auf die Baumphysiologie untersucht (weitere Angaben dazu sind der Projektskizze zu entnehmen).

3. STANDORTWAHL UND METHODEN

3.1 Standorte der Beprobungen

Jahrringproben

1) Die ersten untersuchten Probestandorte liegen in der Umgebung von Erstfeld, sowie in Faido. Der eine Standort bei Erstfeld ist direkt von den Verkehrsemissionen betroffen, liegt neben der Autobahn, der andere Standort weist eine grössere Entfernung zur Autobahn auf, so dass die Vegetation nur durch die Hintergrundkonzentration der Stickoxide beeinflusst wird. In Faido wurden drei Standorte in unterschiedlicher Distanz zur Autobahn untersucht.

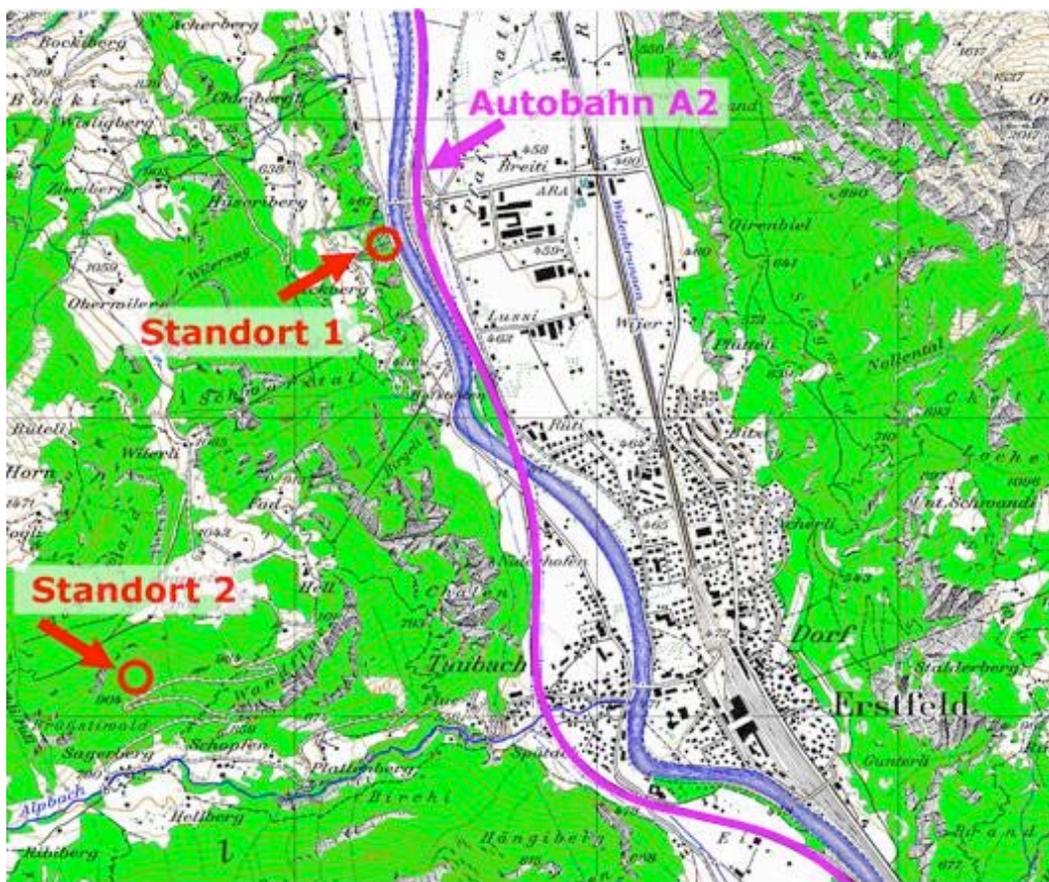


Abb. 2: Lage der ersten Probenentnahme-Standorte

Der autobahnahe Standort bei Erstfeld (Standort 1) liegt ca. 100m von der Autobahn A2 entfernt beim Koordinatenpunkt 691300/187600 auf 470m Höhe (siehe Abbildung). Als autobahnferner Punkt (Standort 2) wurde ein Standort gewählt, der knapp 500m höher beim Koordinatenpunkt 690500/186100 liegt. Die Entfernung des zweiten Standortes zur Autobahn beträgt ca. 1400m und die Höhe 940m über Meer. Beide Standorte liegen an einem mehrheitlich von Fichten (*Picea abies*) bewachsenen Steilhang. Standort 1 ist ost-, Standort 2 südostexponiert (siehe Abb.2). Der Standort in Autobahnnähe wurde von der Eidg. Forschungsanstalt für Wald, Schnee und Landschaft, WSL im Rahmen des MfM-U regelmässig untersucht.

Die Probenahme fand am 23. November 2004 statt. Für die Untersuchung wurden an beiden Standorten Fichten gewählt. Standort 1 war von jungen, knapp 25-jährigen Bäumen bewachsen, der Fichtenbestand auf Standort 2 war 100 und mehr Jahre alt. Insgesamt wurden neun Bäume ausgewählt, wovon fünf auf Standort 1 entfielen. Dort wurden neben anderen die beiden Bäume beprobt, die im Rahmen des MfM-U-Projektes bereits untersucht wurden. Die Proben wurden auf Brusthöhe mit einem Bohrer entnommen, pro Baum je einmal von der Süd- und der Nordseite. Insgesamt ergab dies 18 Bohrkern mit einem Durchmesser von 5mm.

Ein weiterer Standort in der Nähe von Erstfeld wurde im April 2005 beprobt (Abb. 3). Mit dieser Probenahme sollten im Vergleich zur ersten Probenahme einerseits ältere Bäume erfasst, andererseits Standorte näher an der Autobahn untersucht werden. Die 6 untersuchten Bäume (*Picea abies*) können in 2 Standorte unterteilt werden: Am Standort 1 nahe der Autobahn, Exposition NE, Steigung ca. 30°C (S1), sind die Bäume Nr. P1, P2, P3, am Standort 2, 300m höher am Hang (S2), die Bäume Nr. P4, P5, P6. Der Abstand der untersuchten Bäume zur Autobahn beträgt P1 = 99 m; P3 = 192.7 m; P4 = 126.8 für S1, P6 = 473.8 m; P7 = 494.9 m; P8 = 524.5 m.



Abb. 3: Lage des zweiten Standortes in der Nähe von Erstfeld.

Im Tessin in der Nähe von Faido wurden 3 Standorte in der Nähe der A2 gewählt. Sie befinden sich auf einem zur Autobahn senkrecht ausgerichteten Transekt mit folgendem Abstand zur Autobahn: P1 = 50m, P2 = 175m, P3 = 400m. Auf jeder Probefläche wurden je 3 Bäume (Fichten, *Picea abies*) beprobt, wobei 2 Bohrkerne pro Baum entnommen wurden (im Mai 2006). Es wurden ebenfalls Nadelproben gesammelt.

Nadelproben

Nadeln wurden von der WSL Birmensdorf zur Verfügung gestellt. Dabei handelt es sich um Proben, die im Rahmen des MfM-U Teilprojekts „Nadelchemie der Fichte“ gesammelt wurden (siehe Zwischenbericht 2005 von P.Waldner et al. zu Händen des BAFU) sowohl in der Nord- (Brittnau) wie auch in der Südschweiz (Faido). Entlang den Transitachsen wurden mehrere Standorte einbezogen, von denen schon Proben der Sanasilva-Untersuchung von 1983 vorlagen. Von 4 Standorten im Urner Reusstal wurden Proben aus den Jahren 1992, 1995, 1999 und 2003 analysiert.

Eine Tabelle mit den untersuchten Standorten (mit Angabe des Jahrs der Probenahme und der Koordinaten) ist im Anhang beigelegt.

3.2 Aufbereitung des Materials

Das Probenmaterial wurde jeweils bei Raumtemperatur getrocknet und die Jahrringe an der WSL auf die Jahrringbreite untersucht. Danach wurden die Bohrkerne in die einzelnen Jahre aufgetrennt, gemahlen und aus dem Holz mittels Soxhlet-Extraktion die mobilen Stickstoff-Komponenten entfernt. Das getrocknete Holz wurde danach mit der „Isotope Ratio Mass Spectrometry“ (IRMS) auf die stabilen Isotopenverhältnisse für C, O, und N untersucht: Die Holzproben wurden für die C- und N Analyse in einem Elementaranalysator vollständig zu CO₂ und N₂ verbrannt und beide Moleküle im Massenspektrometer auf die ¹³C/¹²C und ¹⁵N/¹⁴N Verhältnisse analysiert. Zur Sauerstoffisotopenanalyse musste das Probenmaterial in der Heliumatmosphäre unter Sauerstoffausschluss thermisch bei 1100°C zu CO umgewandelt werden, um danach die ¹⁸O/¹⁶O Isotopenverhältnisse zu bestimmen. Die Isotopenverhältnisse werden in der δ-Notation dargestellt, das heisst als Abweichung von den internationalen Standards.

$$\delta^{15}N = \left[\frac{\left(\frac{^{15}N}{^{14}N} \right)_{Probe}}{\left(\frac{^{15}N}{^{14}N} \right)_{Standard}} - 1 \right] \cdot 1000$$

Für N wird atmosphärischer Stickstoff, für Kohlenstoff VPDB (Vienna PeeDee Belemnite, aus einer Kalksteinformation in South Carolina, USA) und für Sauerstoff VSMOW (Vienna Standard Mean Ocean Water) als Standard verwendet.

4. RESULTATE:

4.1 Jahrringbreiten:

Im Allgemeinen zeigt sich an beiden Standorten nahe Erstfeld (dem Autobahnnahen, S1 und dem in ca. 1400m Entfernung, S2) eine Abnahme der Jahrringbreite bis in die 50er Jahre. Danach stabilisiert sich der Wert innerhalb der jährlichen Streubreite. Dieses Phänomen, der anfangs grossen, dann fortlaufend abnehmenden Jahrringbreiten wird als Juvenileffekt bezeichnet und hängt u.A. damit zusammen, dass das Verhältnis gesamte Assimilation zu Stammbiomasse zu Beginn grösser ist, dann mit zunehmendem Baumalter und Stammdicke abnimmt.

Im vorliegenden Projekt wurden daher für die Jahrringbreite erst Werte ab 1959 für unsere Untersuchung verwendet. Aus den derzeit vorliegenden Daten konnte weder für den Einzelbaum noch für die Standortsmittelwerte eine Veränderung der Jahrringbreite gefunden werden, die sich mit der zunehmenden NO_x-Emission in Zusammenhang bringen ließe (siehe Kap. 5).

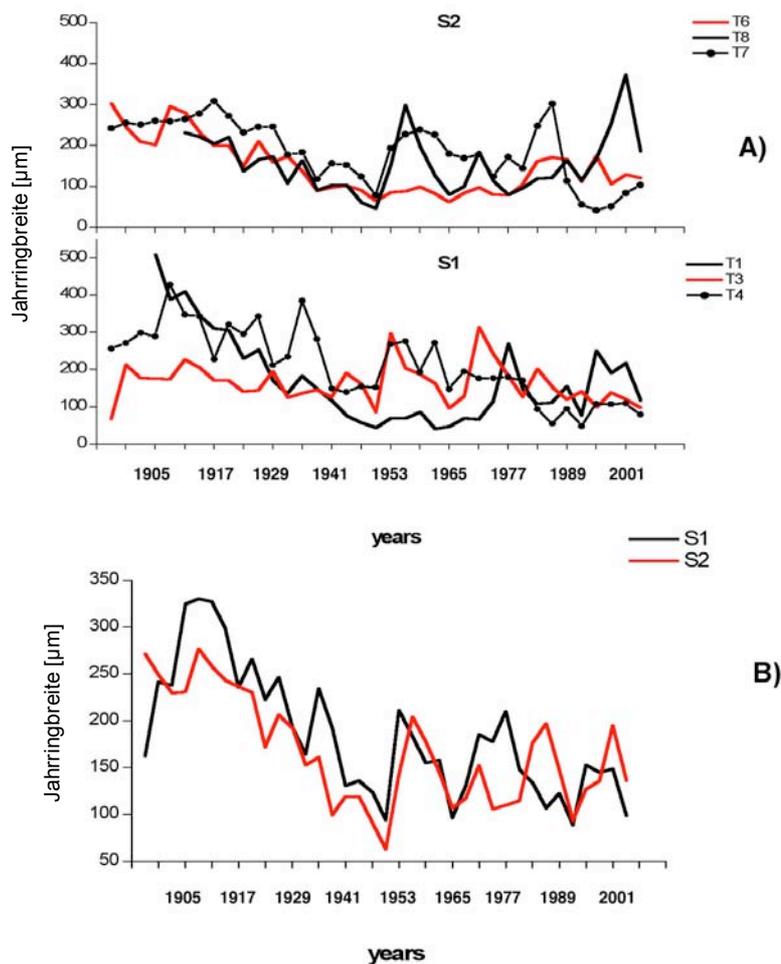


Abb. 4. Mittelwerte der Jahrringbreite [Auflösung:10µm] der Einzelbäume (A) und der Standorte S1 und S2 (B).

4.2 Kohlenstoffisotope in Jahrringen:

Von allen untersuchten Parametern zeigt der $\delta^{13}\text{C}$ -Wert den deutlichsten Zusammenhang mit der NO_2 -Belastung: Das Kohlenstoffisotopenverhältnis nimmt mit zunehmender NO_2 -Exponierung zu.

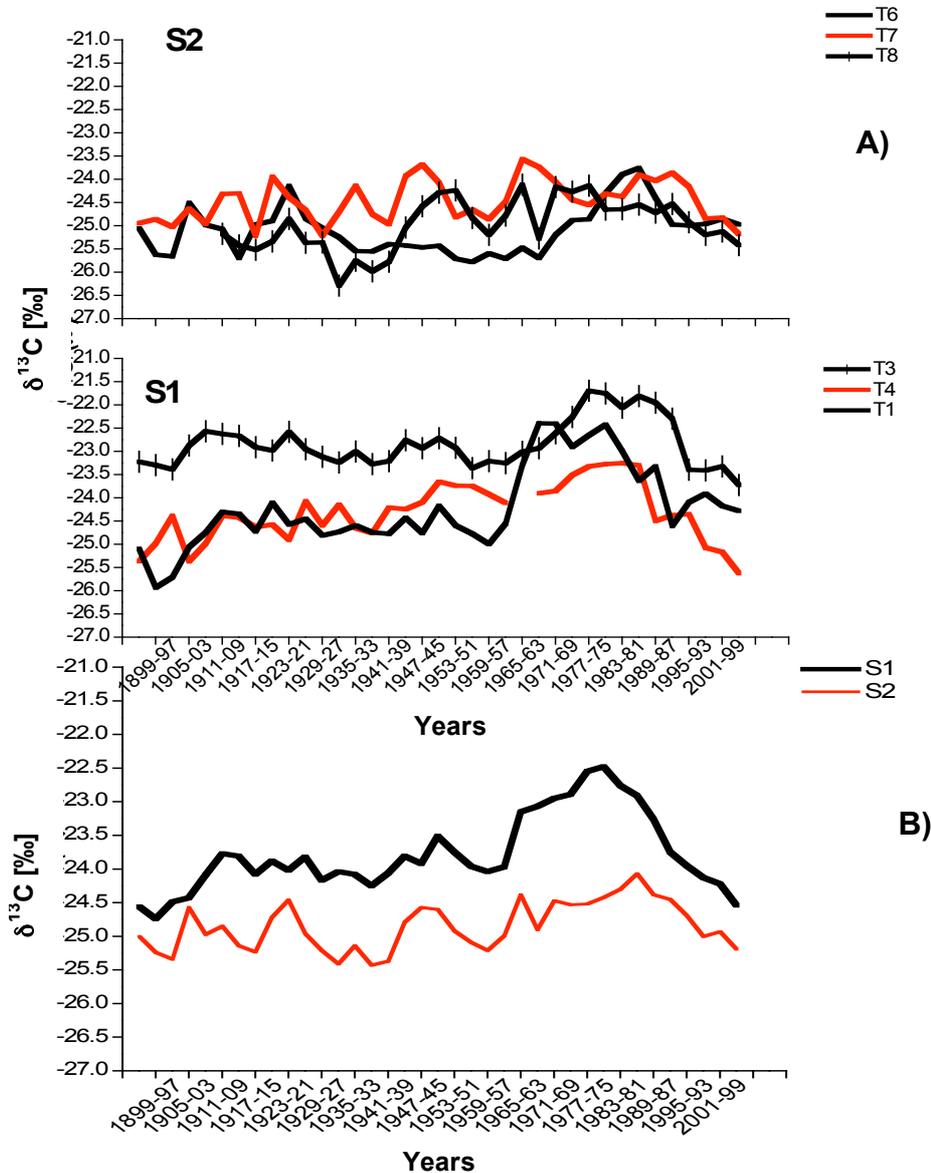


Abb. 5. Zeitliche Entwicklung der $\delta^{13}\text{C}$ -Werte. A) zeigt die Werte der Einzelbäume für den exponierten (S1) und den entfernten (S2) Standort. In B) sind die gemittelten Werte für beide Standorte dargestellt. Ab den 60er Jahren nimmt der $\delta^{13}\text{C}$ -Wert zu, und ist in den 80er Jahren wieder abnehmend.

Mit zunehmendem Verkehrsaufkommen steigt auch die NO_2 -Belastung an, was sich am ausgeprägtesten im $\delta^{13}\text{C}$ niederschlägt. Hier wird die physiologische Reaktion der Pflanzen deutlich sichtbar, entweder via Stomata (reduzierte Leitfähigkeit) oder durch erhöhte Photosyntheseleistung. Da das Isotopenverhältnis ein zeitlich integratives Mass darstellt, und das veränderte Reaktionsmuster während der Lebensdauer des Organismus festgelegt wird, manifestieren sich dadurch selbst relative geringfügige Änderungen. Dieses Reaktionsmuster entspricht in vollem Umfang dem, was bisher in anderen Untersuchungen gefunden wurde (Siegwolf et al., 2001; unpublizierte Daten aus Ammann et al. 1998, und Saurer et al. 2004; Guerrieri et al., 2008).

4.3 Sauerstoffisotope in Jahrringen

Bei den Sauerstoffisotopen scheint zunächst kein Muster erkennbar, welches in den letzten Jahrzehnten auf Veränderungen aufgrund der NO_2 -Belastung schließen ließe:

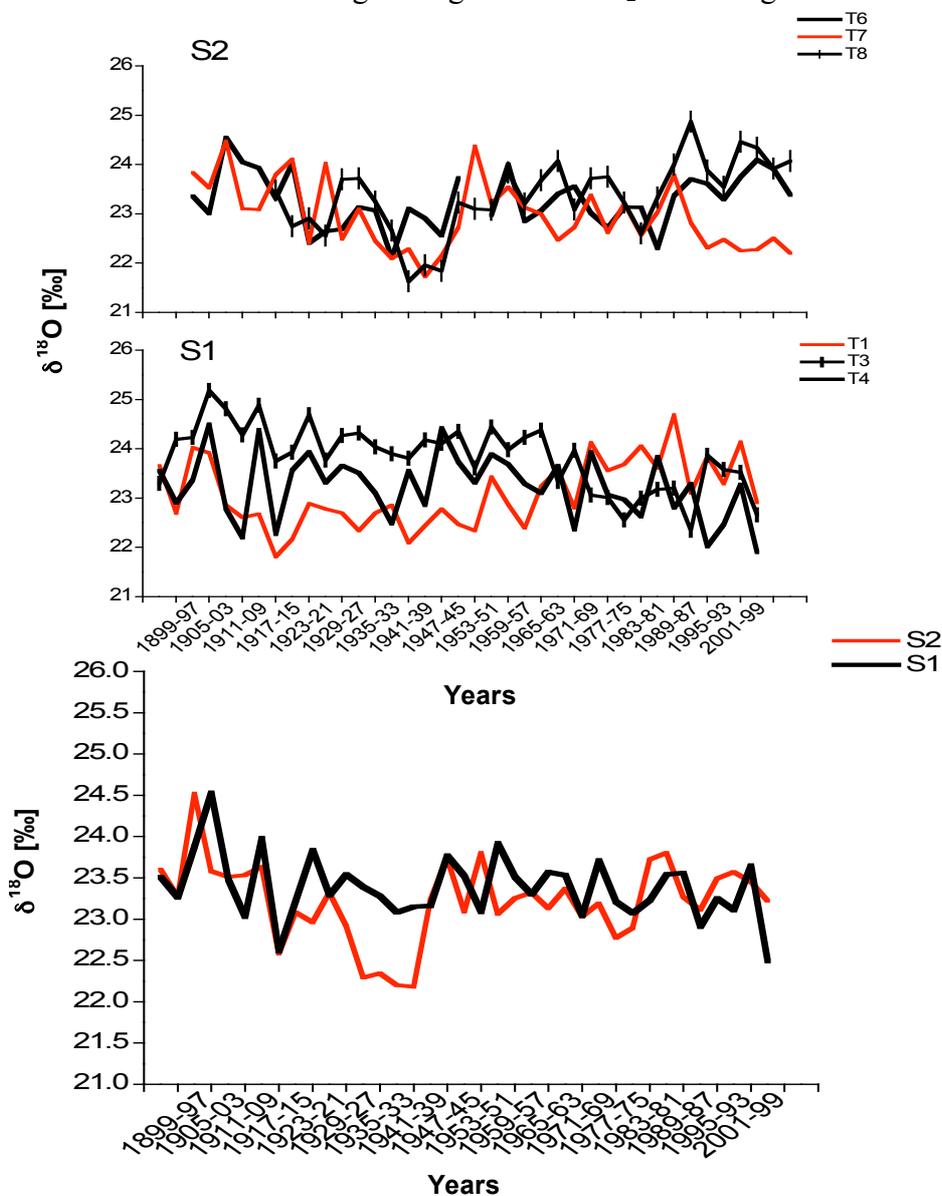


Abb. 6: Zeitliche Entwicklung des Sauerstoffisotopenwertes. A) zeigt die Werte der Einzelbäume für den exponierten (S1) und den entfernten (S2) Standort. In B) sind die gemittelten Werte für beide Standorte dargestellt.

Aufgrund von Laboruntersuchungen ist zu erwarten, dass die $\delta^{18}\text{O}$ -Werte bei NO_2 -Exponierung abnimmt. Stickstoffdüngung bewirkt, dass die Stomata sich öffnen, und damit eine erhöhte Transpiration resultiert. Dies würde sich in einem abnehmenden $\delta^{18}\text{O}$ -Signal widerspiegeln, was hier im Sauerstoffisotopenwert nicht ersichtlich ist, somit die Stomata trotz des zusätzlichen Stickstoffes nicht weiter geöffnet werden. Dass dies nicht geschieht, kann als Reaktion der Pflanze so gewertet werden, dass sich die Pflanze auf diese Weise versucht, gegen das toxische Gas zu schützen. Allerdings zeigt sich auch bei den Autobahnfernen Flächen kein verändertes Muster, was aber noch nicht heisst, dass NO_2 in Bezug auf das $\delta^{18}\text{O}$ Signal wirkungslos ist.

4.4 Isotopenresultate vom Standort Faido

Die folgende Figur zeigt die Isotopenwerte ($\delta^{15}\text{N}$, $\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{18}\text{O}$) von den 3 untersuchten Standorten in Faido über einen Zeitraum von rund 60 Jahren. Generell sind die Werte am Autobahn-nächsten Standort (P1) für alle Isotope erhöht. Dies ist besonders deutlich bei $\delta^{13}\text{C}$ und $\delta^{15}\text{N}$, während bei $\delta^{18}\text{O}$ die Werte nur kurzzeitig (in den 60er Jahren) erhöht sind gegenüber den weiter entfernten Standorten P2 und P3. Der zeitliche Verlauf beim $\delta^{13}\text{C}$ zeigt eine Differenz zwischen P1 und P2/P3 bereits ab den 50er Jahren. Diese Differenz zwischen belastetem und weniger belasteten Standorten ist recht konstant im weiteren zeitlichen Verlauf, geht aber in den letzten 10 Jahren deutlich zurück, was wahrscheinlich auf eine geringere NO_x Belastung hinweist. Dieser Verlauf im $\delta^{13}\text{C}$ ist qualitativ recht ähnlich zu dem Verlauf in Erstfeld, wo ebenfalls erhöhte Werte während

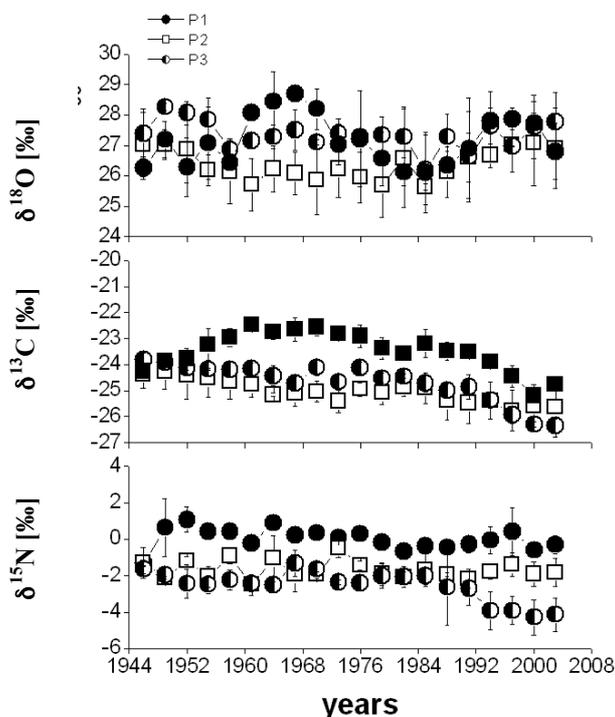


Abb. 7: Verlauf der Isotopenverhältnisse in den Jahringen am Standort Faido

der Phase der höchsten NO_x -Belastung festgestellt wurden. Zum recht frühen Beginn des Anstiegs in Faido ist noch anzumerken, dass auch vor der Eröffnung der Autobahn um 1980 am Standort in Faido bereits Emissionen von der nahen Kantonsstrasse zu verzeichnen waren. Die $\delta^{15}\text{N}$ -Werte von P1 sind ebenfalls über fast die gesamten 60 untersuchten Jahre erhöht gegenüber P2 und P3. Beim Kontroll-Standort P3 zeigt sich ein Abfall in den letzten ca. 10 Jahren. Wie weit es sich hier um eine natürliche Isotopenfraktionierung oder um eine Änderung der N-Deposition handelt, lässt sich mit den vorliegenden Daten schwerlich bestimmen.

4.5 Stickstoffkonzentration in den Baumringen

Die Stickstoffkonzentrationen im Holz der Jahrringe sind deutlich tiefer als im Boden oder in den Blättern. Mit zunehmendem Holzalter nimmt die N-Konzentration von ca. 0.5% auf 0.05% ab. Die jungen Jahrgänge (bis zu 1-6 Jahre) weisen die höchsten Konzentrationen auf, da dieser Teil des Holzes mit den pflanzenphysiologischen Austauschprozessen noch am stärksten in Interaktion steht.

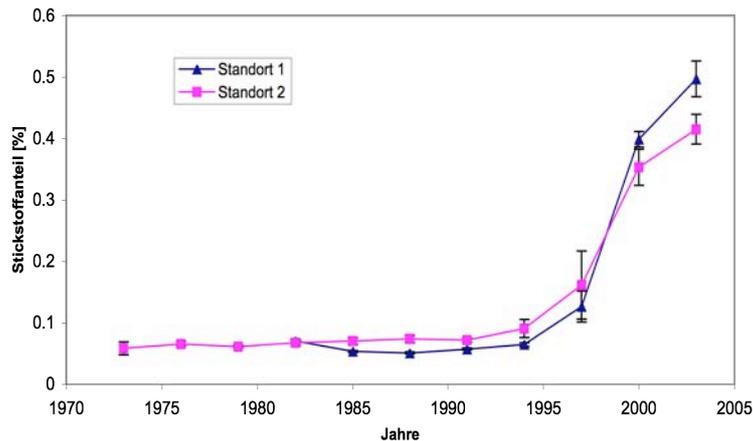


Abb. 8: Zeitlicher Verlauf der Stickstoffkonzentration [%] im Holz für den Autobahnnahen (S1) und den entfernten (S2) Standort bei Erstfeld.

Offensichtlich dienen diese Teile des Holzes auch noch zur N-Speicherung. Der Unterschied zwischen exponierten und nicht exponierten Bäumen war im jüngsten Holz am deutlichsten zu sehen und war beim exponierten Material leicht höher, was auf die NO_x Deposition zurückzuführen ist.

4.6 Stickstoff-Isotopenverhältnisse ($\delta^{15}\text{N}$) in den Baumringen

Aus den Arbeiten von Ammann et al. (1998) und Saurer et al. (2004) ging hervor, dass die $\delta^{15}\text{N}$ -Werte des NO_x, welches dem Verkehr entstammt, einen positiveren Wert aufweist als das des natürlichen Hintergrundes. Dies dürfte darin begründet sein, dass das leichtere ¹⁴NO_x etwas schneller und effizienter durch den Katalysator umgewandelt wird, als das schwerere ¹⁵NO_x, da die chemischen Bindungen mit dem schwereren Isotop geringfügig stärker sind. Stickoxide, die sich isotopisch unterscheiden (hier schwerer sind), können als idealer Tracer herangezogen werden, womit die Aufnahme des gasförmigen NO_x durch die Stomata nachgewiesen werden kann. Es zeigt sich, dass das Isotopenverhältnis des NO_x, welches in die Atmosphäre emittiert wurde, hinreichend stabil blieb und sich auch im pflanzenorganischen Material widerspiegelt. Auf diese Weise kann festgestellt werden, inwieweit NO_x von den Pflanzen aufgenommen wurde und dort in die Biomasse eingebaut wurde.

In der nebenstehenden Graphik wird die zeitliche Entwicklung der $\delta^{15}\text{N}$ -Werte in den letzten 25-30 Jahren bei Erstfeld dargestellt. In der Grafik wurden die Mittelwerte aus jeweils 4 Bäumen von den zwei Standorten aufgetragen. Auffallend ist der durchgehend höhere $\delta^{15}\text{N}$ Wert des Standortes 1, welcher näher bei der Autobahn liegt.

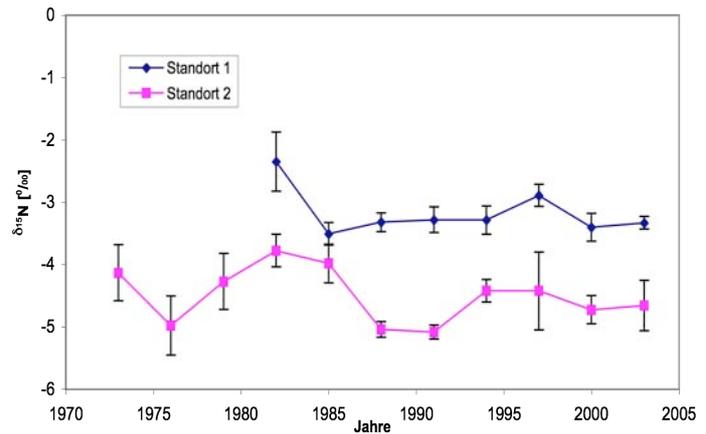


Abb. 9: Zeitlicher Verlauf des Stickstoff-Isotopenverhältnisses im Holz für den Autobahnnahen (S1) und den entfernten (S2) Standort aus der ersten Beprobung. (Siehe Abbildung 2)

Der stark erhöhte Anfangswert vom Standort 1 (Linie mit Rhomboid) würde tiefer liegen (-3.1‰), wenn der Wert eines einzelnen Baumes (-1.1‰) nicht berücksichtigt würde. Der Grund für diesen erhöhten Wert ist nicht klar, es ist jedoch nicht anzunehmen, dass dies im Zusammenhang mit den unbehandelten Abgasen (der Katalysator wurde erst 1985 eingeführt) steht. Allgemein aber entspricht der Verlauf der beiden Kurven den Erwartungen, höhere $\delta^{15}\text{N}$ -Werte in Autobahnnähe, im Vergleich zu den Daten von entlegenen Bäumen. Diese Mittelwertskurven deuten stark auf die Inkorporierung von verkehrsbürtigem NO_x hin. Aussagen über die Belastung vor der Eröffnung des Gotthardtunnels können jedoch wegen des zu geringen Alters der Bäume nicht gemacht werden.

Der gleiche Trend konnte auch am zweiten Beprobungsstandort beobachtet werden (siehe obiger Lageplan 2). Hier konnten deutlich ältere Bäume beprobt werden (> 100 Jahre), welche zum Teil auch näher an der Autobahn lagen. Die N-Konzentrationen lagen geringfügig tiefer, insbesondere im frischen Holz, wobei sich der Stickstoff auf eine wesentlich grössere Holzbiomasse bei den alten Bäumen verteilen konnte. Dies dürfte auch damit zusammenhängen, dass bei älteren Bäumen das Spross/Wurzel Verhältnis tiefer liegt als bei jungen Bäumen, wodurch auch die N-Konzentration im Holz älterer Bäume geringer ist.

Vom 2. Beprobungsstandort zeigten sich deutlichere Unterschiede in den Grössenordnungen der $\delta^{15}\text{N}$ -Werte. Für die Gründe dafür können derzeit nur Mutmassungen ange stellt werden. Hier zeigt sich, wie wichtig es ist, die $\delta^{15}\text{N}$ -Werte der Böden mit zu erfassen, um die Daten korrekt interpretieren zu können. Böden weisen im Allgemeinen eine grosse Heterogenität in Bezug auf die N-Isotopenwerte auf. So prägt das Boden-N-Isotopenverhältnis die $\delta^{15}\text{N}$ -Werte des gesamten Baumes bis zu einem gewissen Grad. Dies ist grundlegend, um die N-Isotopenwerte des Baumes korrekt zu interpretieren. Inwieweit die Bodenheterogenität und Wind-Verfrachtungen und atmosphärenchemische Prozesse das Heterogenitätsmuster der Beprobungsflächen beeinflussen, lässt sich anhand dieser Daten nicht sagen. Dies macht deutlich, dass die Erfassung der

NO_x-Konzentrationen und deren Isotopenverhältnis wichtige Zusatzinformationen liefern. Daher ist zu erwarten, dass Messungen mit Denudersystemen an ausgewählten Standorten und zu bestimmten Zeitpunkten wertvolle Informationen für die Dateninterpretation liefern werden.

4.7 Nadelprobenanalysen

Nadelmaterial, welches bereits von der WSL über einen Zeitraum von ca. 20 Jahren gesammelt und gemahlen wurde, konnte auf die Isotopenverhältnisse analysiert werden.

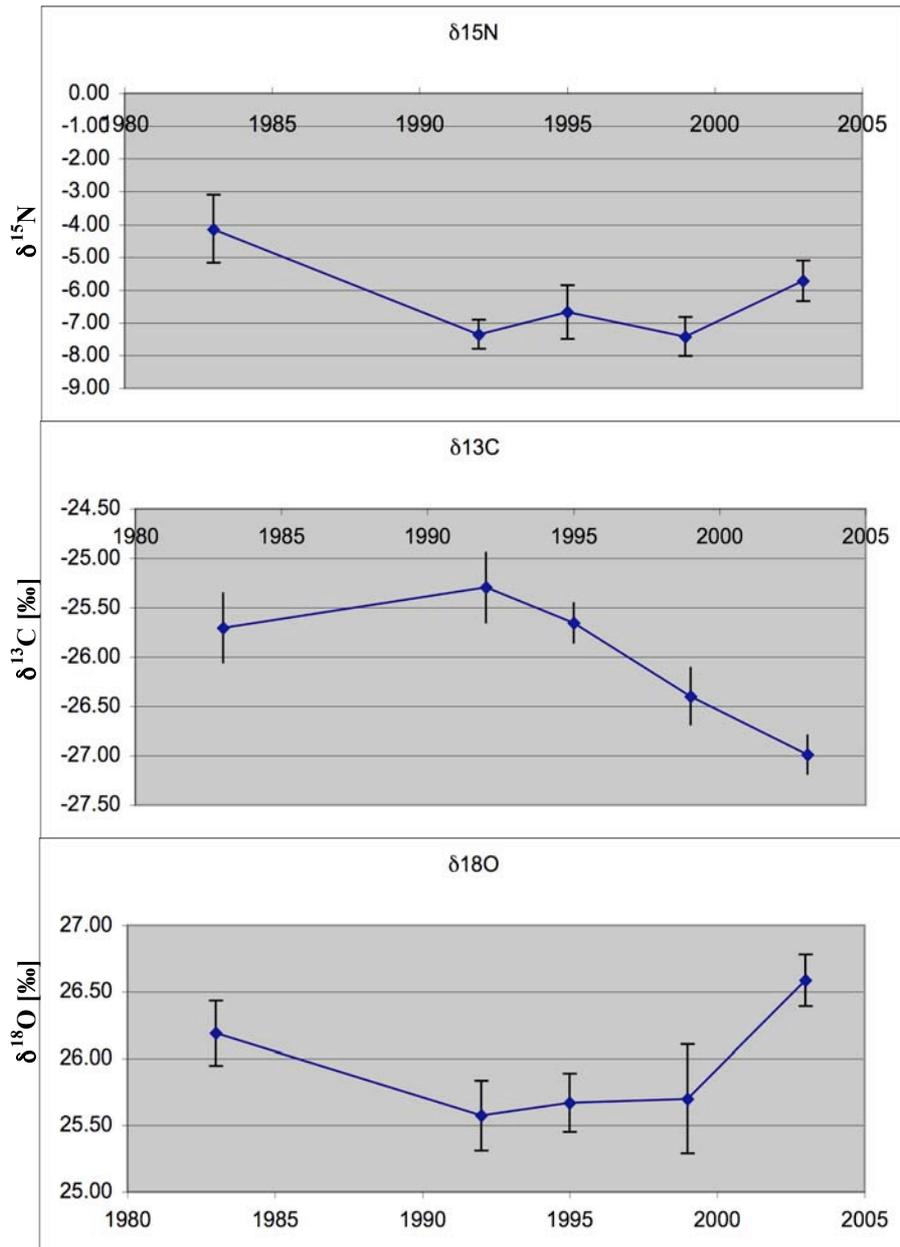


Abb. 10: N-, C- und O-Isotopenverhältnisse von archiviertem Nadelmaterial Im Zeitverlauf von 1983-2003.

In einer ersten Untersuchung wurden die mittleren Werte entlang verschiedener Verkehrswege auf dem Nord-Süd Transekt gerechnet. Die Nadelproben entstammen den Orten, welche in der Liste (Anhang) aufgeführt sind.

Die zeitlichen Verläufe entsprechen für die $\delta^{13}\text{C}$ - und die $\delta^{18}\text{O}$ -Werte den Erwartungen. Typischerweise erreicht der $\delta^{13}\text{C}$ -Wert zwischen 1990 und 1995 das Maximum, während der Verlauf des $\delta^{18}\text{O}$ -Wertes gerade in gegensätzlicher Richtung verläuft. Dies entspricht dem Isotopenmuster der beiden Isotopenpaare, wie sie in Siegwolf et al. (2001) aufgezeigt wurden. Auch der $\delta^{15}\text{N}$ -Wert zeigt ein Verhalten, das unseren Erwartungen voll entspricht: mit zunehmender Reduktion der NO_x -Belastung durch den Katalysator werden die N-Isotopenverhältnisse im Nadelmaterial wieder geringer, nehmen dann aber zwischen 1999 und 2003 wieder zu, was wahrscheinlich mit der Zunahme des Verkehrs einhergeht. Eine Quantifizierung kann zurzeit noch nicht durchgeführt werden, da die Daten auf das Quellenverhältnis hin analysiert werden müssen. Das notwendige Vorgehen wurde in der Arbeit von Saurer et al. (2004) eingehend beschrieben. Dabei wird ein Zweikomponenten-Mischmodell (Keelingplot) eingesetzt. Im Weiteren müssen die einzelnen Standorte genau untersucht werden und vor allem die Isotopenverhältnisse der Böden miteinbezogen werden.

4.8 Mapping

In einem weiteren Schritt werden nun die einzelnen Nadel-Daten in einem X-Y Kartendiagramm der Schweiz dargestellt, wobei die unterschiedlichen Isotopenwerte in Farbcodes dargestellt werden. Helle Farben stellen niedrige, bzw. dunkle Farben hohe Belastungen dar. Damit soll anhand der Isotopenwerte eine Belastungskartierung vorgenommen werden.

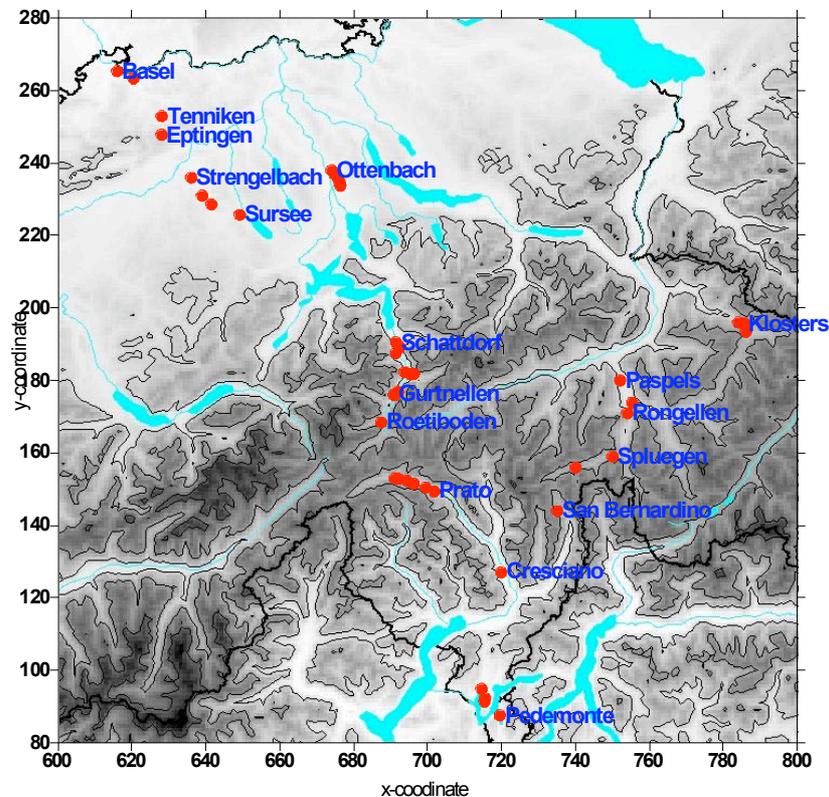
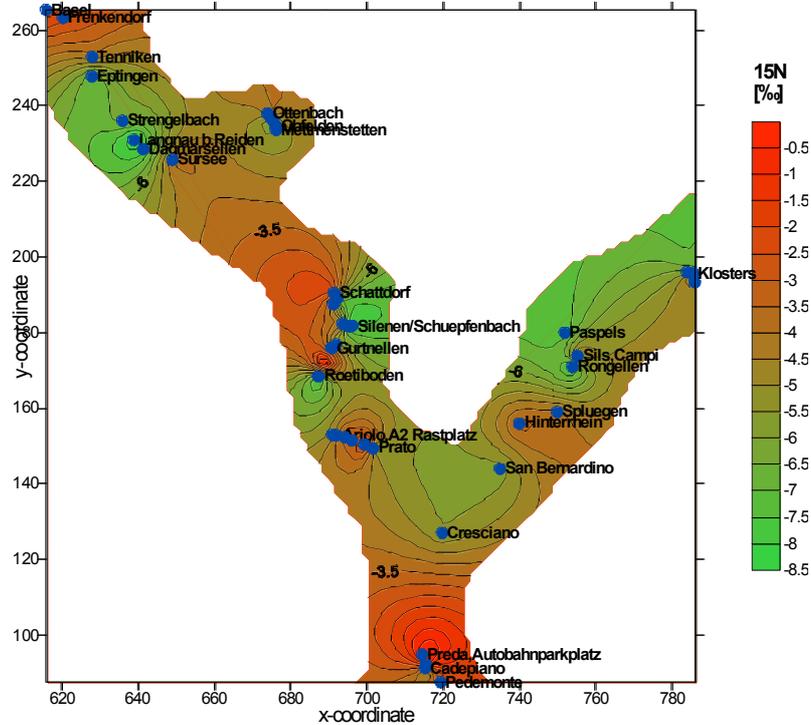


Abb. 11: X-Y-Kartendiagramm mit Standorten, an denen Isotopen-Verhältnisse der MfM-U Nadelproben analysiert wurden (rote Punkte)

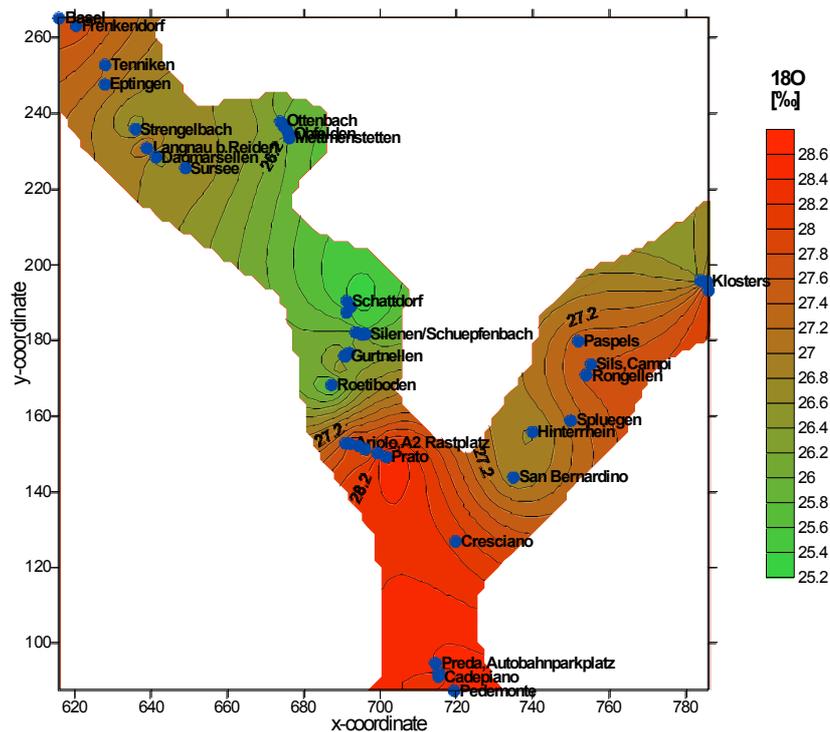
Im Folgenden sind die $\delta^{15}\text{N}$ -Werte auf Grund der Nadelproben in jenen Bereichen dargestellt, die in ungefährender Standortnähe liegen. Im Wesentlichen handelt es sich dabei um den Nord-Süd-Transekt entlang der A2, sowie der San Bernardino-Route, unter Einbezug der eher ländlichen Kontrollgebiete um Ottenbach (ZH) und Klosters (GR). Die $\delta^{15}\text{N}$ -Kartierung zeigt vor allem erhöhte Werte (NO_x -Belastung anzeigend) in Basel, in der Innerschweiz und im südlichen Tessin.

Abb. 12:
 $\delta^{15}\text{N}$ -mapping



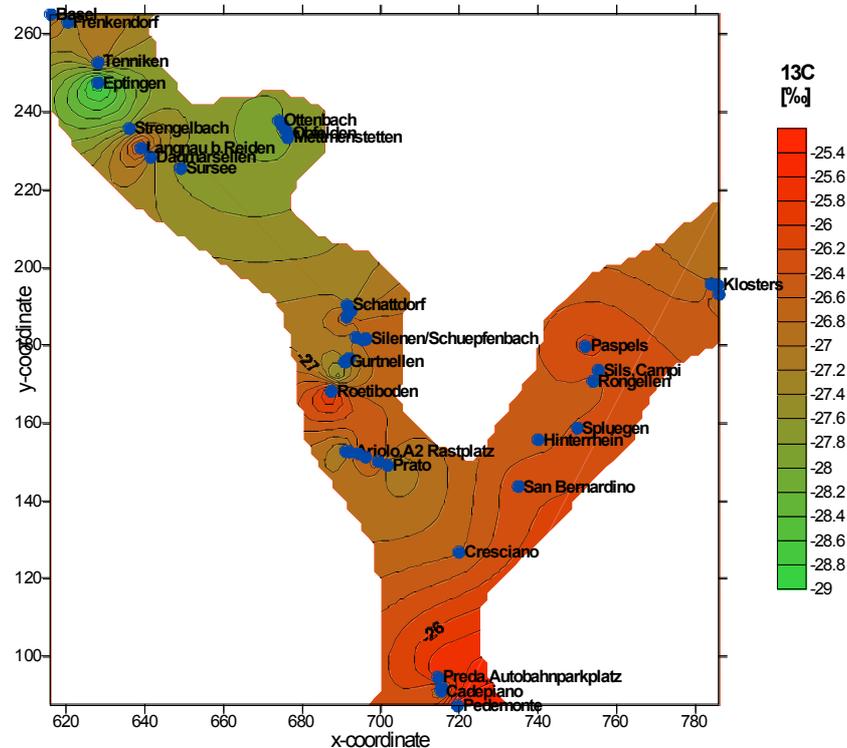
In der gleichen Darstellung wie oben die $\delta^{18}\text{O}$ -Daten. Erhöhte Werte findet man bei Basel, im ganzen Tessin sowie entlang der San Bernardino-Route.

Abb. 13:
 $\delta^{18}\text{O}$ -mapping



In der gleichen Darstellung wie oben die $\delta^{13}\text{C}$ -Daten. Erhöhte Werte findet man in einer ähnlichen Verteilung wie beim $\delta^{18}\text{O}$, hauptsächlich in der Südschweiz und entlang der San Bernardino-Route.

Abb. 14
 $\delta^{13}\text{C}$ -mapping



Die verschiedenen Isotope geben unterschiedliche Informationen über die Belastung der Bäume wieder. Während das $\delta^{15}\text{N}$ vor allem die aufgenommene NO_x -Menge (vom Verkehr stammend) wiedergibt, zeigen das $\delta^{13}\text{C}$ und $\delta^{18}\text{O}$ die physiologische Belastung oder Stresswirkung an. Es drängt sich nun auf, einen kombinierten Index aus diesen Einzelkomponenten zu gewinnen, da so die auf das NO_x zurückgehende Stresswirkung am besten abgeschätzt werden kann. Zur Kombination der 3 Isotope wird in einem ersten Schritt aus den Rohdaten ein standardisierter Wert („Index“) gewonnen, damit die Isotopendaten alle denselben Mittelwert (=0) und dieselbe Standardabweichung (=1) aufweisen:

$$\text{index}^{13\text{C}} = \frac{(\delta^{13}\text{C}_i - \sum \delta^{13}\text{C}_i)}{\sigma^{13\text{C}}}, \text{index}^{18\text{O}} = \frac{(\delta^{18}\text{O}_i - \sum \delta^{18}\text{O}_i)}{\sigma^{18\text{O}}}, \text{index}^{15\text{N}} = \frac{(\delta^{15}\text{N}_i - \sum \delta^{15}\text{N}_i)}{\sigma^{15\text{N}}}$$

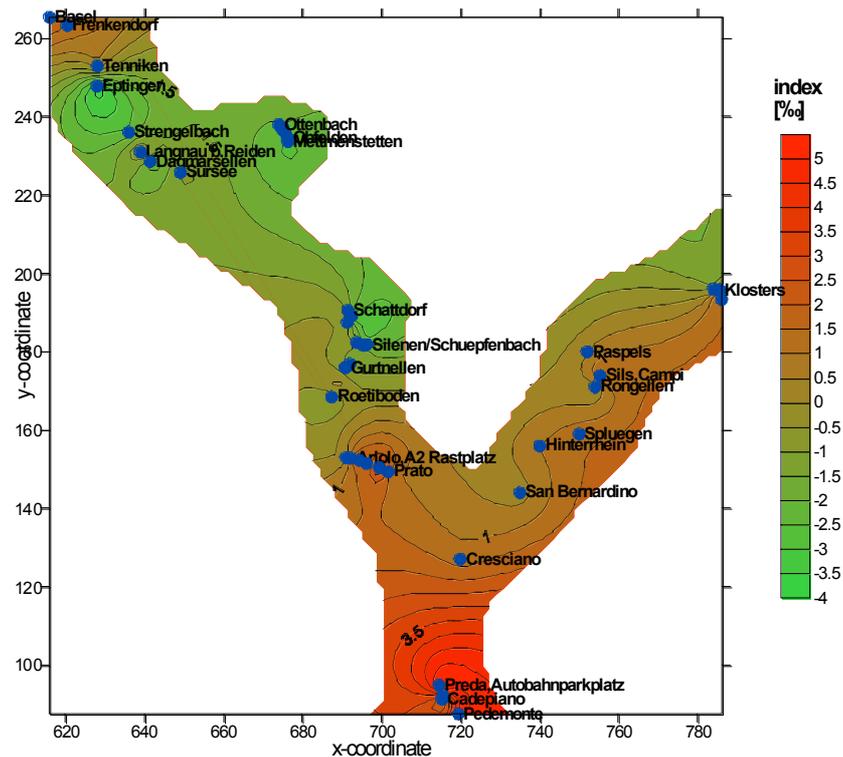
Als einfachstes Modell für die Belastung wird nun einfach die Summe der 3 Isotopen-Indices berechnet, weil so die Regionen mit gleichzeitiger Erhöhung von allen 3 Isotopen erfasst werden können. Dies heisst nichts anderes, als dass Gebiete gekennzeichnet werden, die bei erhöhten $\delta^{15}\text{N}$ (NO_x -Aufnahme anzeigend) ebenfalls erhöhtes $\delta^{13}\text{C}$ und $\delta^{18}\text{O}$ aufweisen (Stress anzeigend). Die Ausgestaltung dieses Index

ist aber noch nicht definitiv und bedarf weiterer Abklärung, durch Abstützung von vergleichbarem Datenmaterial, welches zum Teil vorhanden, mehrheitlich aber noch erhoben werden müsste.

$$\text{Isotopenindex} = \text{index}^{13\text{C}} + \text{index}^{18\text{O}} + \text{index}^{15\text{N}}$$

Dieser Index, wiederum als „Mapping“ dargestellt (siehe Figur), zeigt nun sehr deutlich, dass die Bäume im Südtessin der maximalen Belastung ausgesetzt sind.

Abb. 15
Index mapping



5. BEURTEILUNG DER RESULTATE

Aus den Verläufen der oben dargestellten Resultate ist eine NO_2 -Belastung ersichtlich. Anhand des $\delta^{15}\text{N}$ -Verlaufes aus den Jahrringen und Nadelproben zeigt sich, dass der Stickstoffeintrag über die Gasphase parallel dem Verlauf entspricht, wie er in Abb.1 für den NO_x -Ausstoss Schweizweit dargestellt ist. Die Auswirkungen auf die Bäume zeigen sich in den $\delta^{13}\text{C}$ -Werten, welche einen gegenläufigen Verlauf zum $\delta^{15}\text{N}$ und zum $\delta^{18}\text{O}$ zeigen. Die Abnahme der $\delta^{13}\text{C}$ -Werte erfolgt zeitverzögert zu den $\delta^{15}\text{N}$ -Werten, was damit zusammenhängt, dass ein gewisser Schwellenwert der NO_2 -Konzentration noch nicht unterschritten war und die Restkonzentration des NO_2 weiterhin wirksam blieb. Die Stimulation der Photosynthese durch die düngende Wirkung des NO_2 ist im $\delta^{13}\text{C}$ -Verlauf deutlich zu sehen. Die $\delta^{18}\text{O}$ -Werte in den Nadeln zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit den $\delta^{15}\text{N}$ -Werten, was auf eine Veränderung der stomatären Regulation schliessen lässt, und zwar so, wie dies in der Literatur beschrieben ist: mit zunehmender N-Versorgung nimmt auch die stomatäre Leitfähigkeit zu.

Diese Daten stellen die Grundlage für das Belastungsmapping dar und werden für jeden Standort einzeln überprüft. Dadurch wird es möglich, einzelne Standorte miteinander direkt zu vergleichen und so zu einer quantitativen Belastungsabschätzung zu kommen.

5.1 Theoretischer Hintergrund

Kohlenstoffisotopenverhältnisse

Obwohl angenommen werden kann, dass die Photosyntheseleistung durch den zusätzlichen Stickstoff erhöht wird, muss das nicht bedeuten, dass die Assimilate in die Holzbiomasse investiert werden. Labor-Untersuchungen zeigen zwar, dass dadurch mehr Blattbiomasse gebildet wurde, ein Zuwachs im Stamm aber nicht beobachtet werden konnte. Es gibt Hinweise darauf, dass durch die NO_x-Aufnahme eine Veränderung der Kohlenstoffallokation auftreten kann (Rennenberg et al., 1998; Siegwolf et al., 2001). In vereinzelt Untersuchungen wurde festgestellt, dass die Atmungsrate bei Pflanzen erhöht wurde, ähnlich, wie das bei erhöhtem CO₂ gefunden wurde (Steinmann et al., 2004).

Der $\delta^{13}\text{C}$ -Wert einer Pflanze ist ein wichtiger, empfindlicher, physiologischer Indikator, da er von der Photosynthese einerseits und von der stomatären Leitfähigkeit andererseits stark beeinflusst wird. Farquhar et al. (1989) beschrieben den Zusammenhang wie folgt:

$$\delta^{13}\text{C}_{\text{plant}} = \delta^{13}\text{C}_{\text{air}} - a - (a - b) * \frac{c_i}{c_a}$$

$\delta^{13}\text{C}_{\text{plant}}$ entspricht dem Isotopenverhältnis der Pflanze und $\delta^{13}\text{C}_{\text{air}}$ dem des CO₂ aus der Luft, während a der diffusive Fraktionierungskoeffizient von ¹³CO₂ in der Luft ist (4.4‰) und b der enzymkinetische Fraktionierungskoeffizient von ¹³C am CO₂ bindenden Enzym, Rubisco (ca. 27‰). c_a ist die CO₂ Konzentration ausserhalb des Blattes und c_i die in den substomatären Hohlräumen. Aus der Gleichung ist die indirekte Proportionalität des $\delta^{13}\text{C}$ zum Verhältnis c_i/c_a ersichtlich. Dieses Verhältnis wird einerseits durch die Photosynthese geprägt, das heisst je grösser die Photosyntheseleistung desto kleiner das c_i/c_a -Verhältnis (bei gegebener stomatärer Leitfähigkeit), oder je geringer die stomatäre Leitfähigkeit, desto niedriger das c_i/c_a -Verhältnis (bei gegebener Photo-Syntheseleistung) und desto geringer die Diskrimination gegenüber ¹³CO₂. Somit widerspiegelt der $\delta^{13}\text{C}$ -Wert die wichtigsten Gaswechsel-Grössen, wie Photosynthese und stomatäre Leitfähigkeit.

Durch Stickstoffdüngung wird die Photosynthese erhöht, was sich auch im $\delta^{13}\text{C}$ -Wert niederschlägt. Wenn die stomatäre Leitfähigkeit im gleichen Masse zunimmt, so dürfte sich das Isotopenverhältnis nur geringfügig ändern. Nimmt aber die Photosynthese zu, bei konstanter oder abnehmender Leitfähigkeit, so kommt es zu einem Anstieg des $\delta^{13}\text{C}$ -Wertes. Da NO_x, vor allem aber NO₂ toxisch ist, (durch Freisetzung von O-Radikalen während der biochemischen Umwandlung von NO₂ zu NH₄⁺) versucht sich die Pflanze durch Schliessung der Stomata zu schützen. Gleichzeitig wirkt der

Stickstoff aus dem NO₂ stimulierend auf die Photosynthese (Düngeneffekt). Diese Mechanismen führen zu einer reduzierten Diskriminierung des ¹³CO₂, was zu einem erhöhten δ¹³C-Wert führt. Dieser Befund deckt sich durchwegs mit den Labor-Ergebnissen von Siegwolf et al. (2001) und neueren Untersuchungen, welche eine erhöhte Abscisinsäurebildung durch NO₂-Exposition feststellten.

Sauerstoff Isotopenverhältnisse

Die O-Isotopenverhältnisse in den Jahrringen bleiben weitgehend unverändert, was darauf hindeutet, dass die Stomata entgegen den Erwartungen bei den von uns untersuchten Proben nicht weiter geöffnet werden. Bei den Nadeln zeigt sich jedoch eine Absenkung der δ¹⁸O-Werte, was vollumfänglich dem Isotopenmuster entspricht, wie wir es bei NO₂-Einfluss in Laborexperimenten und anderen Freilanduntersuchungen fanden (Saurer et al., 2004; Saurer & Siegwolf, 2007). Das heisst, die Stomata werden durch die N-Düngung geöffnet, jedoch aber nicht in dem Ausmass, wie das bei einer erhöhten, nicht toxischen N-Versorgung (normalerweise vom Boden via Wurzeln) zu erwarten wäre. Darauf weisen die unveränderten Werte der Jahrringe hin. Dieses Zusammenspiel zwischen den beiden Isotopenverhältnissen (C- und O-Isotope) ermöglicht die Aufschlüsselung, wie der Gaswechsel der Pflanze langfristig auf Umwelt-Veränderungen (hier NO₂-Exposition) reagiert. Dieses Verfahren hat sich bewährt und wurde auch bei anderen Untersuchungen angewandt (Scheidegger et al., 2000, Grams et al., 2007; Saurer & Siegwolf, 2007; Guerrieri et al., 2008).

Stickstoff Isotopenverhältnisse

Das Stickstoffisotopenverhältnis in den Jahrringen erweist sich als ein guter Tracer für die Form des Stickstoffes, der gasförmig über die Stomata aufgenommen wird. Wie eingangs bereits erwähnt, hat sich gezeigt, dass NO₂, welches dem Verkehr entstammt positiver (schwerer) ist, als das Hintergrund-NO₂. Dies dürfte auf die Reaktion im Fahrzeug Katalysator zurückzuführen sein. Dadurch, dass dieser Stickstoff ein anderes Isotopenverhältnis zeigt, als der natürlichen Ursprungs, kann nicht nur festgestellt werden, ob diese Form des oxidierten N aufgenommen und verwertet wird, sondern es besteht die Möglichkeit der Quantifizierung dieser Quelle. Dazu muss allerdings das Auswerteverfahren noch weiter verfeinert und weiter entwickelt werden.

Jahrringbreiten

Aus den vorliegenden Daten konnte zunächst kein Zusammenhang zwischen der NO₂-Exposition und den Jahrringbreiten gefunden werden. Offensichtlich bewirkt Stickoxid keine Veränderung des Holzzuwachses. Derzeit ist wenig bekannt, welche weiteren langfristigen Auswirkungen NO₂ auf den Pflanzenorganismus hat. Dazu gibt es widersprüchliche Angaben, wie die Atmung beeinflusst wird, in einigen Arbeiten wurde eine Steigerung, in anderen keine Beeinflussung der Atmungsraten festgestellt. Vermutlich wird der zusätzliche Kohlenhydratgewinn in die Blätter oder in Reparaturaktivitäten (Erneuerung der durch die freien O-Radikale beschädigten Lipid-Membranen) investiert

und weniger in Spross- oder Wurzel-Wachstum, entsprechend dem Laborbefund.

5.2 Zusammenfassung der Ergebnisse und Bewertung

Die vorliegenden Daten zeigen ein spezifisches und eindeutig interpretierbares Isotopenmuster, welches durch die NO_x-Exposition verursacht wird. Die Ergebnisse stimmen gut mit den bisherigen Befunden aus bisherigen Untersuchungen zur NO_x-Belastung, wie sie im Freiland und im Labor gefunden wurden, überein.

Das **Stickstoffisotopenverhältnis** bewährt sich als Tracer sowohl in den Blättern wie auch in den Jahrringen. Dadurch ist es möglich, die Aufnahme von gasförmigen N-Verbindungen durch die Stomata zu quantifizieren und die Quelle zu identifizieren.

Fazit: Als Tracer im Blattmaterial **sehr gut** geeignet, vorausgesetzt, das $\delta^{15}\text{N}$ des Bodens ist bekannt. Gut geeignet in Jahrringen, vorausgesetzt es liegt genügend Material vor und das Isotopenlabor ist in der Lage, grössere Probenmengen zu analysieren.

Die **Kohlenstoffisotopenverhältnisse** zeigen die erwarteten Muster: NO₂-Exposition führt zu erhöhten C-Isotopenwerten, was klar auf eine Veränderung des Gaswechsels hinweist (Veränderung der Photosynthesekapazität und/oder der stomatären Leitfähigkeit). Dieses Isotopenmuster ist gleichermassen in den Blättern und in den Jahrringen erkennbar. Somit können beide Substrate verwendet werden.

Fazit: Als pflanzenphysiologischer Indikator für NO_x-Belastungen **sehr gut** geeignet, in Blättern wie auch in Jahrringen. Voraussetzungen sind, geeignete Standortwahl, und Berücksichtigung der Klimaparameter (Wasserverfügbarkeit, Daten zu Licht- und Luftfeuchte-Verhältnisse).

Die **Sauerstoffisotope** zeigten die erwarteten Muster im Blattmaterial: die NO_x-Exposition führte zur Reduktion der $\delta^{18}\text{O}$ -Werte, was auf eine Veränderung der stomatären Leitfähigkeit zurückzuführen ist. Wieweit Rückschlüsse auf die NO_x-Wirkung aus Jahrringmaterial gezogen werden können, muss noch abgeklärt werden. In anderen Untersuchungen wurden die $\delta^{18}\text{O}$ -Werte ähnlich den Blättern verändert. Die vorliegenden Daten zeigen keine unmittelbare Veränderung der $\delta^{18}\text{O}$ -Werte in den Jahrringen.

Fazit: Als Indikator für eine Veränderung der stomatären Leitfähigkeit sind die $\delta^{18}\text{O}$ -Werte in Blatt und Nadelmaterial **gut** geeignet. Es bedarf noch der Abklärung, unter welchen Umständen eine Änderung der $\delta^{18}\text{O}$ -Werte in Jahrringen durch NO_x-Einwirkung zu erwarten ist. Hier müssen in besonderem Masse klimatische Einwirkungen, wie Niederschlag, Temperatur und Luftfeuchte in die Untersuchungen einbezogen werden.

Jahrringbreiten zeigten keine unmittelbaren Veränderungen durch die NO_x-Exponierung. Variationen in den Jahrringbreiten liessen sich nicht mit NO_x-

Belastungen korrelieren.

Fazit: Als Indikator für NO_x-Einwirkungen sind die Jahrringbreiten nach den bisher vorliegenden Daten **nicht geeignet**. Es lässt sich aber nicht ausschliessen, dass dieser Parameter an anderen Standorten als Indikator herangezogen werden kann. Daher sollte dieser Parameter nicht voreilig aufgegeben werden. Da die Probennahme von Jahrringe mit den Kernbohrern erfolgen muss, liegt das Material bereits in geeigneter Form vor und kann wichtige Informationen zu Klimatrends liefern, welche für die weitere Interpretation sehr wertvoll sein können. Das dendrochronologische Vorgehen ist jedoch zur Probengewinnung von Jahrringen für die Isotopenanalyse sehr wichtig.

5.3 Kritische Betrachtung des Projektverlaufes

Zeitdauer: Als Vorstudie war die Zeitdauer des Projektes der Fragestellung angemessen. Das Projekt ermöglichte es, anhand des bereits vorhandenen Daten- und Probenmaterial und der neu gemessenen Proben aufzuzeigen, dass das vorgeschlagene Vorgehen zielführend ist und sich gut bewährt. Ausserdem konnte dadurch klar aufgezeigt werden, welche weiteren Parameter in einer Fortsetzungsstudie noch erfasst werden müssen und welche in verminderter Häufigkeit beprobt werden können. Diese Feasibility Studie hat sich sehr bewährt und versetzt uns jetzt in die Lage, sehr zielgerichtet die eigentlichen Untersuchungen in Angriff zu nehmen.

Personal: Weitere Probennahmen, Aufbereitungen und erste Auswertungen konnten mit Hilfe einer Doktorandin und von Praktikanten, die von den Wissenschaftlern am PSI betreut wurden durchgeführt werden. Obwohl die Praktikanten ausgezeichnet arbeiteten, zeigte sich der Mangel an Erfahrung für diese Fragestellung, das Probenhandling, die Auswertung und die Interpretation ganz klar. Für eine erfolgreiche Durchführung eines mehrjährigen Projektes ist eine gewisse Kontinuität, Erfahrung und ein spezifisches Grundwissen in der Ökologie und Physiologie der Pflanzen unabdingbar.

Finanzierung: Das Thema des Projektes stiess bei den meisten angesprochenen Studenten auf reges Interesse. Es dürfte daher nicht schwer sein, eine geeignete Kandidatin oder Kandidaten für eine Dissertation im Rahmen dieses Projektes zu finden, sofern die Finanzierung für das Doktorandensalär während der gesamten Dissertationszeit (erfahrungsgemäss 3.5 Jahre) gewährleistet ist.

Die im Verlauf dieses Vorprojektes gemachten Erfahrungen waren sehr wertvoll und zeigten auf, wie das Projekt weitergeführt werden muss:

Erhebung von zusätzlichen Parametern:

- Sorgfältige Wahl der Standorte (Trocken-, Feuchtstandorte)
- Lokales Klima, wie Strahlung, Temperatur, **Luftfeuchte**, Niederschlag. Dafür müssen Standorte beprobt werden, die entweder in der Nähe einer Meteostation

sind oder mit Meteostationen versehen werden.

- Parameter zur Bodenchemie und Physik (Nährstoff- und Bodenwassergehalt)
- Messung der NO_x-Konzentrationen mit Denudersystemen.

Auswertung: Hier liegt das grösste Entwicklungspotential. Für die weiterführenden Auswertungen sind die oben erwähnten zusätzlichen Informationen sehr wertvoll und wichtig. So zeigt sich z.B., dass bei der Interpretation der Sauerstoffisotopen-Werte das Klima sorgfältig einbezogen werden muss. Begonnene Entwicklungen zu den Auswerteverfahren müssen weitergeführt, angepasst und verbessert werden.

Die Zusammenarbeit mit ähnlichen, laufenden Projekten muss intensiviert werden. Dadurch ist der Zugang und Austausch wichtiger Daten möglich, womit sich zusätzliche Synergien ergeben.

Die bisherigen Untersuchungen zeigen, dass begleitende Daten, (Klimadaten, Bodenanalysen und Luftqualitätsmessungen, hier NO_x) zur genauen Interpretation essentiell sind. Im Weiteren spielen die Standorte der Bäume eine wesentliche Rolle. Vor allem das N-Isotopenverhältnis des Bodens, die Bodenbeschaffenheit, Wasserverfügbarkeit und das lokale Klima sind zu erfassen. Letztere spielen eine wesentliche Rolle bei der Mineralisierung und können sich dadurch das N-Isotopenverhältnis im Boden verändern, was sich im Weiteren auch in den C- und O-Isotopenverhältnisse widerspiegeln kann.

5.4 Schlussfolgerungen:

Das vorgeschlagene Instrumentarium der Isotopenanalytik und Dendrochronologie zur Bewertung der NO_x-Belastung bewährt sich auch in einer gross angelegten Untersuchung **sehr gut**. Damit kann festgestellt werden,

- wie weit der Standort NO_x belastet ist
- wie gross ist das Ausmass der NO_x-Belastung
- inwieweit sich die NO_x-Exposition auf die Physiologie der Bäume auswirkt
- wie die NO_x-Belastung räumlich verteilt ist
- wie sich die NO_x-Belastung im Verlaufe der vergangenen Jahre entwickelt hat.

Die Stärke dieser Methode liegt 1.) in der Kombination der 3 Isotopenverhältnisse (C-, N- und O-Isotope), wodurch eine vertiefte und besser abgesicherte Bewertung pflanzenphysiologischer Auswirkungen durch die NO_x-Exposition möglich wird. 2.) können zuverlässige Untersuchungen an altem gut archiviertem Probenmaterial durchgeführt werden (getrocknetes Blatt-, Nadeln- und Bodenmaterial). 3.) In Kombination mit anderen Parametern, wie Nährstoffe, Elementgehalte kann die Verbindung zur Physiologie der Bäume und dem Belastungsinventar (Schadstoffe) hergestellt werden. Die Verwendung anderer Daten (z.B. aus den Untersuchungen der WSL) waren in der kurzen Zeit sehr hilfreich (Verwendung von Standortdaten und Nutzung von archiviertem Nadelmaterial, (beides von Peter Waldner, WSL, zur

Verfügung gestellt), sollten weitergeführt werden. Unter Berücksichtigung der unter 5.3 erwähnten Punkte wird die Fortführung des Projektes sehr erfolgreich verlaufen und die gewonnenen Daten werden nicht nur im Rahmen des MfMU, sondern auch für die Grundlagenforschung von grösstem Interesse sein.

6. AUSBLICK

6.1 Weitere Beprobungen, was, wo, welche Zusatzinformationen

Abgesehen von den in den bisherigen Projektvorschlägen angegebenen Untersuchungen sollen die folgenden Punkte besonderes Gewicht erhalten:

Jahrringe: Nachdem bisher ein Standort in der Zentralschweiz (Erstfeld) im Detail untersucht wurde, sind mindestens drei weitere Haupt-Untersuchungsstandorte in der Nord-West-Schweiz und ein weiterer der Südschweiz geplant. Dadurch sollen die bisherigen Erkenntnisse bei verschiedener Belastung und anderen Standortbedingungen vertieft und durch eine grössere Probenzahl auch eine höhere statistische Sicherheit erhalten werden, so dass die bisherigen eher qualitativen Trends über die Stickstoffbelastung der letzten Jahrzehnte besser quantifiziert werden können.

Nadeln: Hier soll nebst den Jahrringen der Schwerpunkt der zukünftigen Analysen in den Gradienten liegen, d.h. Nadel-Untersuchungen in Abhängigkeit von der Distanz der Autobahn (Nord-, Zentral-, Südschweiz). Es zeigt sich, dass die Isotopensignale in den Nadeln besser zum Ausdruck kommen. Dadurch soll eine genaue Aussage über die Reichweite der Belastung und die physiologischen Auswirkungen gewonnen werden.

Boden: Im bisherigen Verlauf der Untersuchung hat sich gezeigt, dass der natürliche Hintergrund der ^{15}N -Werte eine wichtige Grösse ist, um Nadel- und Jahrringwerte interpretieren zu können und den Einfluss des Eintrages aus der Luft abzuschätzen. Aus zeitlichen Gründen wurden aber noch keine Bodenmessungen durchgeführt. Im weiteren Verlauf des Projekts sollen neu Bodenproben in ähnlichem Umfang wie Nadeln gesammelt werden, so dass der Verlauf der beiden Parameter verglichen werden kann. Dies ist auch erforderlich für eine sinnvolle Interpretation der Belastungskartierung.

6.2 Vorgesehene Neu-Entwicklungen in diesem Projekt

Messmethodische Weiterentwicklung

Messung von NO_2 mit Denudertechnik

Begleitend zu den Messungen an pflanzlicher organischer Substanz ist die Analyse von Luftproben (NO , NO_2) wichtig. Bisher gibt es nur sehr wenige Untersuchungen über die Isotopenzusammensetzung der Stickoxide. Man geht zwar davon aus, dass NO_x aus Abgasen im ^{15}N erhöht ist, doch das Ausmass der Anreicherung hängt unter anderem vom Fahrzeugmix, sowie den Fahreigenschaften der Fahrzeuge ab. Die Analyse ist

aufwendig und noch wenig etabliert, da im Feld genügend NO_x gesammelt werden muss, damit eine ¹⁵N-Analyse möglich wird. Geplant ist die Weiterentwicklung einer Denudertechnik für ¹⁵N-Analysen. Mit High-Volume Luft-Sammlern (20m³/h) wird NO₂ über ein Filtersystem, imprägniert mit Resorcinol, quantitativ aus der Luft absorbiert. NO muss zu NO₂ (mit Chromoxid) oxidiert werden und kann dann mit der gleichen Methode aufgefangen werden. Erste Tests im Labor haben die Anwendbarkeit dieser Methode bewiesen. Die Methode soll weiter getestet, verfeinert und operationalisiert und daraus ein felddaugliches Gerät entwickelt werden.

Weiterentwicklung auf dem Gebiet der Datenauswertung:

Mapping

Die Erstellung einer Belastungskartierung anhand der Isotopendaten wie sei unter Kapitel 4.8 vorgestellt wurde, wird weiter entwickelt und verfeinert. Die Integration einer solchen Kartierung in ein GIS ist sehr nahe liegend und soll eingehend geprüft werden.

Quantitative Abschätzung der NO_x-Belastung:

Die bisher ermittelten Daten konnten in der kurzen Projektphase noch nicht vollständig ausgewertet werden, insbesondere bezüglich Korrelationen mit Verkehrsdaten, NO_x-Emissionen und Klimadaten. Durch eine Faktoren-Analyse kann der Informationsgehalt, der in den Isotopen-Verhältnissen von C, N, O in den verschiedenen Kompartimenten (Nadeln, Holz, Boden) vorhanden ist, besser verstanden und quantitativ interpretiert werden. In die Auswertung werden neben den schon erhobenen Daten auch die geplanten neuen Messungen einfließen. Für die Belastungskartierung ist es von Bedeutung, die verschiedenen Standortfaktoren zu berücksichtigen (wie Exposition, Abstand zur Autobahn, ökologische Standortfaktoren). Ausserdem soll wie oben bereits mehrfach erwähnt, das Verfahren zur quantitativen Abschätzung der NO_x-Belastung ausgetestet, verfeinert und in diesem Projekt zur Anwendungsreife gebracht werden. Dies bedarf einer ausgedehnten Analyse, die im Rahmen einer Doktorarbeit durchgeführt werden könnte.

Untersuchung des Datenmaterials auf andere Belastungsfaktoren

Es kann davon ausgegangen werden, dass andere Faktoren wie Ozon oder Schwermetallbelastungen Auswirkungen auf die physiologischen Prozesse der Bäume haben. In der Weiterführung dieses Projektes soll geprüft werden, wieweit dies zutrifft, um so die Zuordnung des Belastungsfaktor NO_x noch besser abzusichern. Dies soll in Zusammenarbeit mit anderen Arbeitsgruppen erfolgen. Wieweit hier Zusammenhänge gefunden werden können, lässt sich zum derzeitigen Zeitpunkt nicht beurteilen. Darüber sollen weitere Untersuchungen Auskunft geben.

6.3 Weitere Punkte die in die Untersuchung einbezogen werden könnten (nice to have)

In Laborexperimenten wurde eine Reduktion des Wurzel / Spross-Verhältnisses durch die NO₂- und z.T. auch bei NH₃-Exposition festgestellt. Des Weiteren wurde eine Zunahme der Blattfläche bei gleichzeitiger Abnahme der stomatären Dichte beobachtet. Hier bietet sich die Möglichkeit, die Veränderung des Wurzel-/ Spross-Verhältnisses, sowie der Änderung der stomatären Dichte und Blattfläche mit zunehmender NO₂-Dosis in situ zu untersuchen. Im Weiteren wäre der Zusammenhang zwischen veränderten Isotopen-Verhältnissen und der veränderten ober- und unterirdischen Biomassenverhältnisse zu analysieren. Die Isotopenverhältnisse widerspiegeln das Integral der Photosynthese und der stomatären Regulation, Parameter, welche direkt mit der Biomassenproduktion zusammenhängen.

Ein eigenes Thema, von ebenso grossem Interesse, ist die Frage nach dem Einfluss von NH₃ auf die Vegetation, insbesondere auf den „Gesundheitszustand“ der Bäume. Wie verändert sich das C- und O-Isotopenverhältnis bei zunehmender NH₃-Belastung? Wie werden die physiologischen Prozesse beeinflusst? Wie wird die C-Allokation verändert? Bezüglich des Wirkungsspektrums dürften hier andere Mechanismen zu erwarten sein als beim NO₂. Hier bestünde nach wie vor die Möglichkeit, die sich in der Literatur oft widersprechenden Angaben zu prüfen und Untersuchungen an ausgewählten Standorten durchzuführen. Da diese Untersuchungen aber sehr anspruchsvoll und arbeitsintensiv sind sollten zu diesem Thema im Rahmen einer weiteren gezielten Vorstudie erste Abklärungen getroffen werden. In welchem Rahmen und Umfang dies durchgeführt werden sollte, müsste diskutiert werden.

Dank: An dieser Stelle soll der Gruppe von Peter Waldner (WSL) nochmals für die Unterstützung und das zur Verfügung gestellte Blattproben- und Datenmaterial gedankt werden, ebenso für die Hilfe bei der Standortauswahl. Paolo Cherubini sei für die Hilfe bei den dendrochronologischen Auswertungen gedankt und vor allem für die Mithilfe, dieses Projekt zu starten. Dem BAFU (namentlich Herrn K. Kammer) sei an dieser Stelle ganz besonders für die Ermöglichung dieser Machbarkeitsstudie und für das rege Interesse, diverse wertvolle Hinweise und für die Finanzierung dieser Untersuchung gedankt.

7. LITERATURVERZEICHNIS

- Ammann M, Siegwolf RTW, Pichelmayer F, Suter M, Saurer M, Brunold C. 1999. Estimating the uptake of traffic derived NO₂ from ¹⁵N abundance in needles of Norway spruce. *Oecologia* 118: 124-131.
- Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft BUWAL, Bundesamt für Statistik. 1997. *Umwelt in der Schweiz*. Kapitel 12: Luft.
- Farquhar GD, Ehleringer JR, Hubick KT. (1989) Carbon Isotope Discrimination and Photosynthesis. *Annual Review of Plant Physiology and Plant Molecular Biology* 40: 503-537.
- Grams T E E, Kozovits AR, Häberle K-H, Matyssek R, Dawson TE, 2007. Combining δ¹³C and δ¹⁸O analyses to unravel competition, CO₂ and O₃ effects on the physiological performance of different-aged trees. *Plant, Cell and Environment* 30 (8), 1023-1034.
- Guerrieri M.R., R.T.W. Siegwolf, M. Saurer, M. Jäggi, P. Cherubini, F. Ripullone and M. Borghetti. (2008). Impact of different nitrogen emission sources on tree physiology as assessed by a triple stable isotope approach. *Atmospheric Environment* (in Press); doi:10.1016/j.atmosenv.2008.08.042
- Hickman AJ, McCrae IS, Cloke J, Davies GJ 2002. Measurement of roadside air pollution dispersion. Project Report PR/SE/445/02 TRL Limited.
- Rennenberg H, Kreutzer K, Papen H, Weber P. 1998. Consequences of high loads of nitrogen for spruce (*Picea abies*) and beech (*Fagus silvatica*) forests. *New Phytologist*. 139: 71-86.
- Saurer M, P Cherubini, M Ammann, B De Cinti, Siegwolf RTW. 2004. First detection of nitrogen from NO_x in tree rings: a ¹⁵N/¹⁴N study near a motorway. *Atmospheric Environment* 38, 2779–2787
- Saurer M and Siegwolf RTW. (2007). Human impacts on tree-ring growth reconstructed from stable isotopes, in Dawson TE and Siegwolf RTW. (Eds.), *Stable Isotopes as Indicators of Ecological Change Terrestrial Ecology Series*, Elsevier, Amsterdam, Boston, pp. 49-62.
- Scheidegger Y, Saurer M, Bahn M, Siegwolf RTW. (2000) Linking stable oxygen and carbon isotopes with stomatal conductance and photosynthetic capacity: a conceptual model. *Oecologia* 125:350-357.
- Schulze E.-D. 1989. Air pollution and forest decline in a spruce (*Picea abies*) forest. *Science*. 244: 776-783.
- Siegwolf RTW, Matyssek R, Saurer M, Maurer S, Schmutz P, Goerg-Günthardt M, Bucher JB. (2001). Stable isotope analysis reveals differential effects of soil nitrogen and nitrogen dioxide on the water use efficiency of hybrid poplar leaves. *New Phytologist* 149: 233-246.

Steinmann K, Siegwolf RTW, Saurer M, Körner C (2004) Carbon fluxes to the soil in a mature temperate forest assessed by C-13 isotope tracing. *Oecologia* 141:489-501

ANHANG:

Koordinaten der Proben, welche für das Mapping in Kap. 4.8 verwendet wurden

Standort	Jahr	x-coord	y-coord
Affoltern am Albis	2003	675.091	237.022
Aiolo,Ciass-Rive	2003	691.000	153.000
Ambri sopra	2003	696.100	151.525
Ariolo,A2 Rastplatz	2003	692.070	152.850
Ariolo,Coiss-Rive	1983	691.000	153.000
Basel	2003	615.979	265.379
Cadepiano	2003	715.350	91.350
Cresciano	2003	719.854	127.076
Dagmarsellen	2003	641.432	228.604
Eptingen	2003	628.000	247.800
Eptingen	1983	628.000	247.800
Erstfeld	2003	691.300	187.538
Frenkendorf	2003	620.400	263.300
Frenkendorf	1983	620.400	263.300
Grancia	2003	715.490	92.324
Gurtellen	2003	692.000	176.900
Gurtellen	2003	690.809	176.040
Gurtellen	1983	692.000	176.900
Gurtellen,Wiler	2003	691.000	176.000
Hinterrhein	2003	740.000	156.000
Hoehe Waldiberg	2003	695.400	182.700
Hoehe Waldiberg	1983	695.400	182.700
Klosters	2003	786.050	193.400
Klosters	2003	785.631	195.807
Klosters	2003	785.498	195.594
Klosters/Bueel	2003	784.000	196.000
Klosters/Bueel	1983	784.000	196.000
Langnau b.Reiden	2003	639.000	231.000
Langnau b.Reiden	1983	639.000	231.000
Mettmenstetten	2003	676.300	233.675
Mettmenstetten	2003	675.600	235.925
Mettmenstetten	2003	674.850	236.900
Obfelden	2003	676.175	234.700
Ottenbach	2003	674.000	238.000
Ottenbach	1983	674.000	238.000
Paspels	2003	752.000	180.000
Paspels	1983	752.000	180.000
Pedemonte	2003	719.450	87.600
Piotta	2003	694.300	152.400
Prato	2003	701.684	149.429
Preda,Autobahnparkplatz	2003	714.560	94.925
Quinto,Varenzo	2003	699.350	150.450
Riggstaefeli	2003	696.200	181.900
Riggstaefeli	1992	696.200	181.900
Riggstaefeli	1995	696.200	181.900
Riggstaefeli	1999	696.200	181.900
Roetiboden	2003	687.350	168.450
Roetiboden	1992	687.350	168.450

Roetiboden	1995	687.350	168.450
Roetiboden	1999	687.350	168.450
Rongellen	2003	754.000	171.000
San Bernardino	2003	735.000	144.000
Schattdorf	2003	692.400	189.200
Schattdorf	2003	691.372	190.537
Schattdorf	1983	692.400	189.300
Silenen	2003	693.700	182.340
Silenen/Schuepfenbach	2003	696.200	181.900
Silenen/Schuepfenbach	1992	694.440	182.850
Silenen/Schuepfenbach	1995	694.440	182.850
Silenen/Schuepfenbach	1999	694.440	182.850
Sils,Campi	2003	755.300	173.900
Sils,Campi	1983	755.300	173.900
Spluegen	2003	750.000	159.000
Strengelbach	2003	636.000	236.000
Strengelbach	1983	636.000	236.000
Sursee	2003	649.125	225.725
Waldiberg	2003	695.350	181.700
Waldiberg	1992	695.350	181.700
Waldiberg	1995	695.350	181.700
Waldiberg	1999	695.350	181.700
Wassen	2003	688.500	171.600
Wassen	1983	688.500	171.600