

N. van Breemen, C. T. Driscoll²⁾ en J. Mulder

Vakgroep Bodemkunde en Geologie, Landbouwhogeschool, Wageningen

Samenvatting

H⁺-bronnen en -sinks in niet-agrarische ecosystemen (vnl. bossen) worden geïdentificeerd en gekwantificeerd in termen van effect op de zuur neutraliserende capaciteit van de grond en van het percolerend water. In zure, basenarme gronden in het N.O. van de Verenigde Staten en in Midden en West-Europa is de externe H⁺-aanvoer ongeveer even groot of groter dan de interne H⁺-productie. Onder die omstandigheden vindt bodemverzuring gedeeltelijk plaats door oplossen van aluminium en retentie van sulfaat in de bodem. Als gevolg van de daarmee gepaard gaande verhoogde niveaus van H⁺ en Al³⁺ in bodemvocht en drainwater zijn ecologische effecten op terrestrische en aquatische biota te verwachten.

Inleiding

Het effect van "zure regen" op het milieu is een punt van discussie. Volgens sommige onderzoekers veroorzaakt zure atmosferische depositie verzuring van bodems en oppervlakte water met nadelige gevolgen voor vegetatie en aquatisch leven (Ulrich en Matzner, 1981; Baker en Schofield, 1980). Volgens anderen overschaduwde de interne zuurproductie in de bodem het effect van atmosferische depositie (Krug en Frink, 1983). Daarom is het van belang vast te stellen welke de aard en relatieve bijdragen zijn van atmosferische depositie en van natuurlijke bodemverzuring, en in hoeverre ecosystemen in staat zijn om zuur te neutraliseren. In dit artikel wordt een recentelijk ontwikkelde methode voor het identificeren en kwantificeren van protonenfluxen en deelprocessen van bodemverzuring (Van Breemen et al., 1983) toegepast op een aantal niet-agrarische (en wel vnl. bos-) ecosystemen.

De begrippen bodem- en waterverzuring

Bij het bestuderen van verzuringsprocessen is het essentieel onderscheid te maken tussen intensiteitspara-

eters (bijv. pH: hoe zuur is het?) en capaciteitsparameters (bijv. zuur- en base neutraliserende capaciteit, resp. ZNC en BNC: hoeveel base of zuur is er?). In waterige oplossingen wordt de zuur neutraliserende capaciteit ($ZNC_{(aq)}$) bepaald door titratie met sterk zuur tot een referentie pH van ongeveer 4.5, en gedefinieerd als volgt (Stumm & Morgan, 1970):

$$ZNC_{(aq,pH\ 4.5)} = [HCO_3^-] + 2[CO_3^{2-}] + [A^-] + [OH^-] - [H^+] \quad (1)$$

Hierin stellen de haakjes molaire concentraties voor; A⁻ heeft betrekking op opgeloste organische anionen.

Op analoge wijze wordt de zuur neutraliserende capaciteit van het anorganische deel van de grond ($ZNC_{(s)}$) gedefinieerd (haakjes geven molaire concentraties aan):

$$\begin{aligned} ZNC_{(s)} = & 6(Al_2O_3) + 6(Fe_2O_3) + 2(FeO) \\ & + 4(MnO_2) + 2(MnO) + 2(CaO) + 2(MgO) \\ & + 2(Na_2O) + 2(K_2O) - 2(SO_3) \\ & - 2(P_2O_5) - (HCl) \end{aligned} \quad (2)$$

Componenten met een zwak zuur karakter ($CO_{2(s)}$, $SiO_{2(s)}$ en $H_2S_{(s)}$) dragen niet bij tot de $ZNC_{(s)}$ omdat zij geen H⁺ afstaan of opnemen bij referentie pH-waarden van gronden (pH 2 tot 5). Deze referentie pH is het eindpunt van een (in dit geval hypothetische) titratie van de anorganische fractie van de grond met sterk zuur. De hoeveelheid toegevoegd zuur is dan gelijk aan de $ZNC_{(s)}$. Omdat de meeste bodemmineralen relatief langzaam oplossen is een titratie onpraktisch, en wordt de $ZNC_{(s)}$ bepaald door middel van chemische (totaal-) analyse van de componenten in vergelijking (2). Stikstofcomponenten komen gewoonlijk in zulke lage concentraties in het anorganische deel van de grond voor dat zij een verwaarloosbare bijdrage aan de $ZNC_{(s)}$ leveren.

De capaciteitsgrootte $ZNC_{(s)}$, niet de intensieve grootte pH, wordt direct beïnvloed door toevoeging

¹⁾ Bewerkte versie van een elders gepubliceerd artikel (Van Breemen et al., 1984).

²⁾ Huidig adres: Dept. of Civil Engineering, Syracuse University, N.Y., U.S.A.

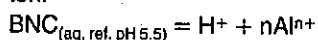
of onttrekking van protonen, en is daarom de meest wezenlijke parameter voor verzuring (en alkalinisatie). De pH is daarvoor ongeschikt. Deze zal, afhankelijk van bufferingsprocessen, meestal, maar niet altijd dalen bij toevoeging van H^+ -ionen, en meestal, maar niet altijd, toenemen bij onttrekking van H^+ . Anderzijds is de pH in tegenstelling tot de $ZNC_{(s)}$ van direct ecologisch belang. De relatie tussen pH en ZNC , die in principe door een titratiekromme kan worden weergegeven, blijft hier verder buiten beschouwing.

We definiëren bodemverzuring als een verlaging van de zuur neutraliserende capaciteit $ZNC_{(s)}$ ($\Delta ZNC_{(s)} < 0$).

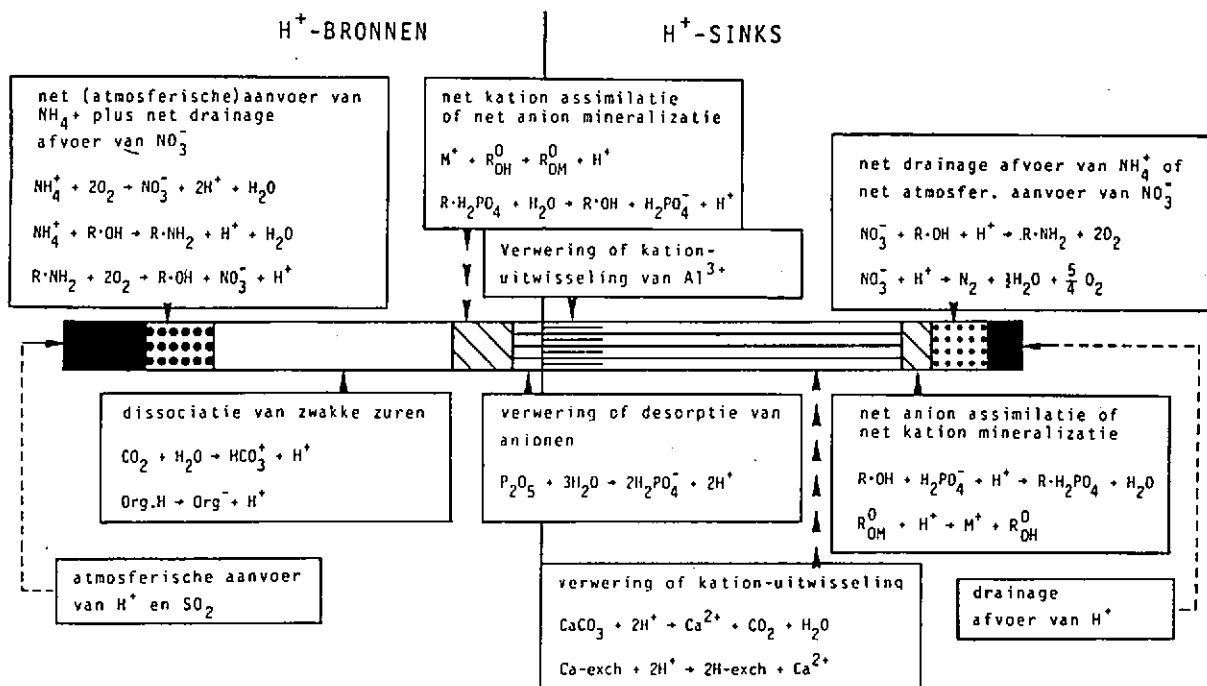
Bodemverzuring wordt dus teweeggebracht door verwijdering van kationische componenten (bijv. CaO) uit het minerale deel van de grond of door toevoeging van zure componenten (bijv. SO_3). Bodemalkalinisatie is het omgekeerde proces (verhoging van de $ZNC_{(s)}$). Veranderingen in ZNC kunnen zich uiten in verwerking of nieuwvorming van mineralen, en adsorptie- of desorptie-processen. Fe_2O_3 , dat vrijwel onoplosbaar is bij pH-waarden boven 3, is praktisch van geen belang bij verzuringsprocessen en zal in onze berekeningen ook buiten beschouwing worden gelaten.

Bodemverzuring vindt plaats als een onomkeerbare flux van H^+ van of naar de grond. Wanneer de grond de aangevoerde H^+ volledig neutraliseert, komen basische kationen (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+) vrij die via opname door de vegetatie of afvoer met het drainage water kunnen worden verwijderd. Terwijl de grond ver-

zuurd wordt dus het percolerende water gealkaliniseerd of "ontzuurd": H^+ uit zuur regenwater wordt door grond geneutraliseerd, of H^+ gebonden in zwakke zuren (bijv. H_2CO_3) wordt door de grond opgenomen en het drainagewater wordt verrijkt met alkaliniteit (HCO_3^- plus begeleidende basische kationen). Echter, indien (a) de H^+ -aanvoer zeer hoog is, (b) basische kationen in mineralen in lage concentraties voorkomen of slechts langzaam door verwerking vrij kunnen komen, of (c) het water slechts korte tijd in de grond verblijft, kan de neutralisatie van de aangevoerde H^+ onvolledig zijn, zodat nog vrije H^+ in het drainagewater voorkomen. Hierdoor zal de pH laag genoeg kunnen worden voor het oplossen van aluminium ($pH < 5.5$) waardoor het drainagewater zowel H^+ als aluminium-base neutraliserende capaciteit zal bevatten.



Verhoogde concentraties aan opgelost aluminium zijn ecologisch van belang in verband met hun toxische werking op aquatische organismen en planten (Baker & Schofield, 1980; Ulrich & Matzner, 1983). De bodemverzuring kan via een H^+ -budget worden berekend. De benodigde metingen betreffen a) de flux aan opgeloste bestanddelen die het ecosysteem binnenkomen of verlaten, b) de netto assimilatie (of mineralisatie) van elementen door levende en dode biomassa, c) de netto uitwisseling van potentieel zure gassen en aerosolen tussen het ecosysteem en de atmosfeer, en d) de netto sorptie (inclusief, bijv. precipitatie) of desorp-



Figuur 1 H^+ -budget van de bodem met voorbeelden van de belangrijkste categorieën H^+ -bronnen en -sinks.

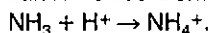
tie van elementen in de grond. Meestal kan een H⁺-budget al goed worden benaderd met de metingen van categorieën a en b (Van Breemen et al., 1983).

H⁺-boekhouding

Bij elk H⁺-budget worden verschillende categorieën H⁺-bronnen en -sinks onderscheiden (figuur 1). Tot de bronnen behoren a) atmosferische aanvoer, b) H⁺ die vrijkomt bij stikstofomzettingen, c) dissociatie van CO₂ en organische zuren, d) netto assimilatie van kationen (behalve NH₄⁺) door de vegetatie plus netto mineralisatie van anionen (behalve NO₃⁻) uit dood organisch materiaal en e) vertering van anionische componenten uit mineralen (plus "omgekeerde vertering" van kationen).

H⁺-sinks zijn onderverdeeld in a) vertering van kationen (plus eventuele omgekeerde vertering – precipitatie – van anionen), b) biomassa assimilatie van anionen (behalve NO₃⁻), c) neutralisatie van H⁺ als gevolg van N-omzettingen (i.e. netto nitraat aanvoer plus netto ammonium afvoer) en d) afvoer van H⁺ met het percolerend water (figuur 1).

We definiëren externe H⁺-aanvoer (die waarschijnlijk grotendeels antropogeen is) als de atmosferische aanvoer van H⁺ en SO₂ plus de H⁺ bron min de H⁺-sink door N-omzettingen (netto ammonium aanvoer min netto nitraat aanvoer). De overige H⁺-bronnen (c, d en e) worden als intern beschouwd. De H⁺-bron als gevolg van N-omzettingen vereist enige toelichting. Atmosferische NH₄⁺ vindt zijn oorsprong voornamelijk in uit bodem of mest vervluchtigde NH₃ die door zure atmosferische bestanddelen (bijv. H₂SO₄ uit SO₂, HNO₃) van H⁺ is voorzien:



H⁺ gevormd bij assimilatie of oxidatie van atmosferische NH₄⁺ komt dus duidelijk uit een externe bron. H⁺ gevormd bij nitrificatie van gemineraliseerde organische stikstof afkomstig uit de biomassa van het ecosysteem is daarentegen van interne oorsprong. Echter, verreweg de meeste ecosystemen die hier worden beschouwd, vertonen een toename aan biomassa of verkeren in een stationaire toestand, waarbij de aanvoer van (atmosferische) ammonium steeds de afvoer van (opgelost) nitraat overtreft. In die gevallen kan de H⁺-productie als gevolg van N-omzettingen gevoegelijk als externe bron worden beschouwd.

De totalen van H⁺-bronnen en -sinks zijn, in werkelijkheid, gelijk. Afwijkingen daarvan kunnen het gevolg zijn van meetfouten of van processen die over het hoofd zijn gezien. De snelheid van bodemverzuring $\Delta\text{ZNC}_{(s)}$ (bijv. uitgedrukt in kmol.ha⁻¹.j⁻¹), i.e. de snelheid van de afname in ZNC_(s), is gelijk aan de H⁺-flux als gevolg van de anionvertering verminderd met de H⁺ flux behorend bij de vertering van kationen.

Snelheid van bodemverzuring, H⁺-sinks en samenstelling van het drainage water

De ecosystemen waarin bodemverzuring plaatsvindt, zijn onderverdeeld in systemen met:

- langzame bodemverzuring ($\Delta\text{ZNC}_{(s)} < 2.5 \text{ kmol.ha}^{-1}.\text{j}^{-1}$)
 - matig snelle bodemverzuring ($\Delta\text{ZNC}_{(s)}$ 2.5-7.5 kmol.ha⁻¹.j⁻¹)
- en
- snelle bodemverzuring ($\Delta\text{ZNC}_{(s)} > 7.5 \text{ kmol.ha}^{-1}.\text{j}^{-1}$).

De H⁺-budgetten van deze systemen zijn weergegeven in de figuren 2 t/m 4, waarbij het "wereld gemiddelde systeem" steeds als referentie wordt getoond (merk op dat de schaal in elk figuur steeds anders is!). De hier beschouwde ecosystemen met een langzame bodemverzuring hebben podzolgronden afkomstig van basenarm moedermateriaal (figuur 2).

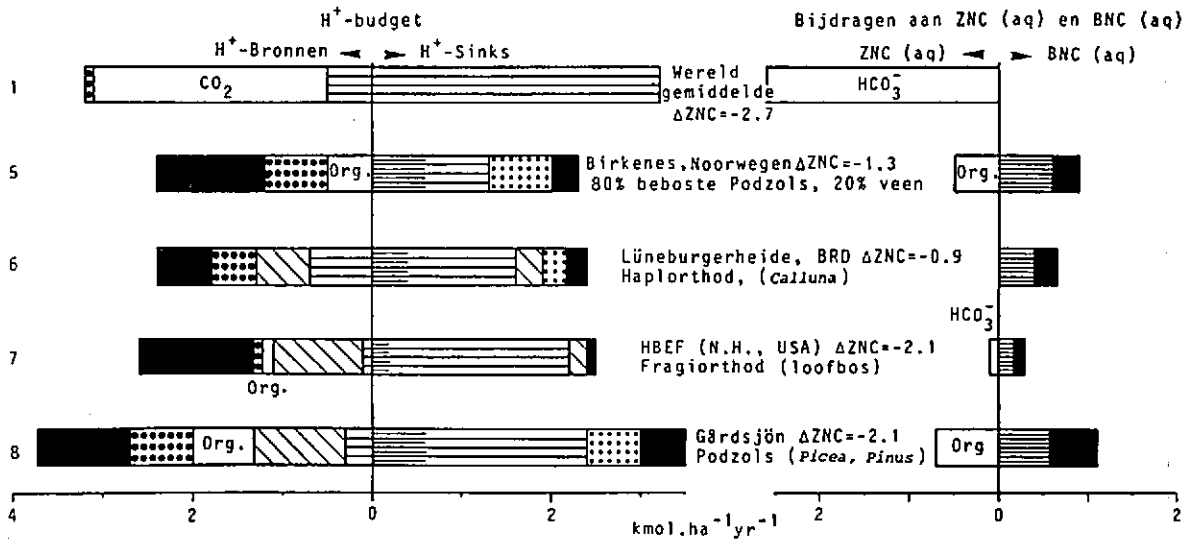
Ecosystemen met matig snelle bodemverzuring (figuur 3) hebben meestal zure bodems met relatief hoge gehalten aan verweerbare silikaten, zoals bodems ontwikkeld in vrij jong vulkanisch materiaal (nr. 15), ont-kalkte rivierafzettingen (nrs. 12-14) en löss (nrs. 10, 11). Bodems met een hoge verzuringssnelheid (figuur 4) zijn meestal kalkrijk en hebben dus een hoge pH (nrs. 17-20). Een uitzondering vormt het Northern Cascades Systeem (nr. 16). Daar zijn de gronden dun en vnl. afkomstig van schist en kwarts-dioriet, maar de verzuringssnelheid is zeer hoog ($\Delta\text{ZNC}_{(s)} = -9.3 \text{ kmol.ha}^{-1}.\text{j}^{-1}$). Deze anomalie is toe te schrijven aan gletscher activiteit en hoge drainage afvoer.

Neutralisatie van H⁺ vindt steeds voornamelijk plaats door vertering van kationen. In gronden met gemakkelijk verweerbare mineralen (en dus met een snelle bodemverzuring, figuur 4) zijn andere H⁺-sinks vrijwel verwaarloosbaar. Deze worden relatief belangrijker naarmate de bodemverzuring langzamer verloopt (en dus de verweerbaarheid van bodemmineralen afneemt en de grond zuurder is) (figuur 3 en figuur 2).

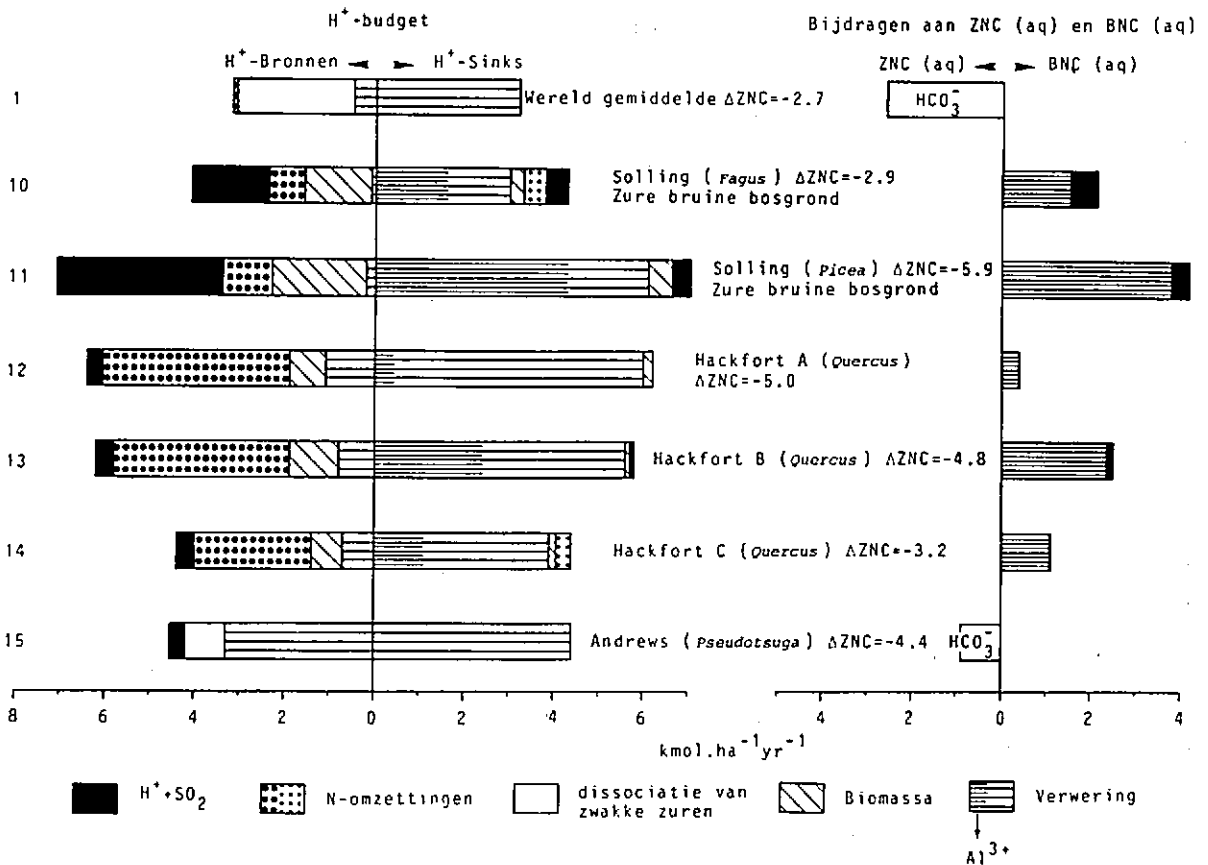
De figuren 2-4 tonen ook het effect van H⁺-omzettingen in de grond op de samenstelling van het drainage water. Bij een snelle bodemverzuring wordt alkaliniteit afgevoerd (zuur neutraliserende capaciteit in de vorm van HCO₃⁻) en bij een langzamere bodemverzuring wordt aciditeit afgevoerd (H⁺ en Al-base neutraliserende capaciteit). De H⁺ en Al-base neutraliserende capaciteit in het drainage water wordt in sommige podzolgronden gedeeltelijk gecompenseerd door zuur neutraliserende capaciteit in de vorm van organische anionen (figuur 2).

Interne H⁺-productie

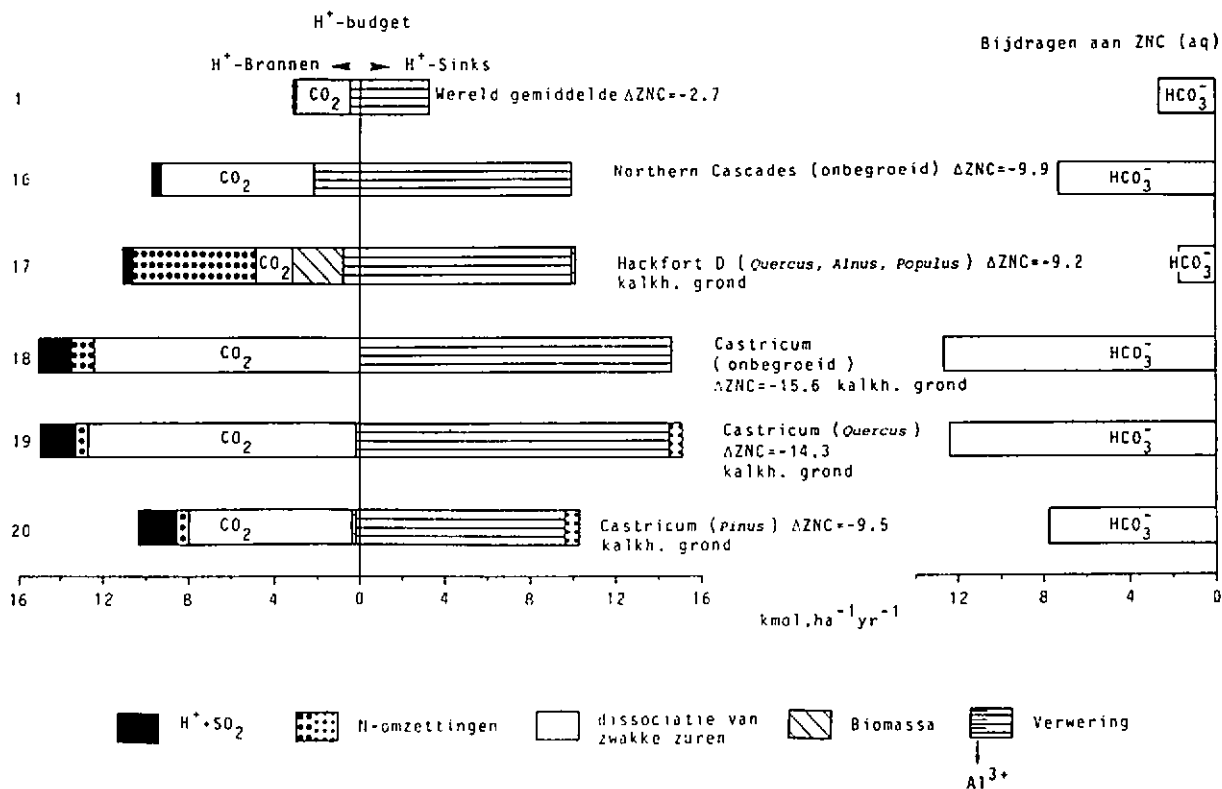
In ecosystemen met een snelle bodemverzuring (n.b.:



Figuur 2 H⁺-budget en met het drainage water afgevoerde ZNC of BNC voor ecosystemen met een langzame bodemverzuring (legenda zie figuur 3). Voor de bronnen van de gegevens die ten grondslag liggen aan de budgetberekeningen zie Van Breemen et al., 1984.



Figuur 3 H⁺-budget en met het drainage water afgevoerde ZNC of BNC voor ecosystemen met een matig snelle bodemverzuring.



Figuur 4 H⁺-budget en met drainage water afgevoerde ZNC of BNC voor ecosystemen met een snelle bodemverzuring.

dit is een snelle afname van ZNC_(s), niet een snelle pH-daling!) is dissociatie van CO₂ meestal de belangrijkste H⁺-bron (figuur 4). CO₂ dissociatie wordt bevorderd door pH's nabij of boven de dissociatie constante van CO₂ (pH > pK_a = 6.3).

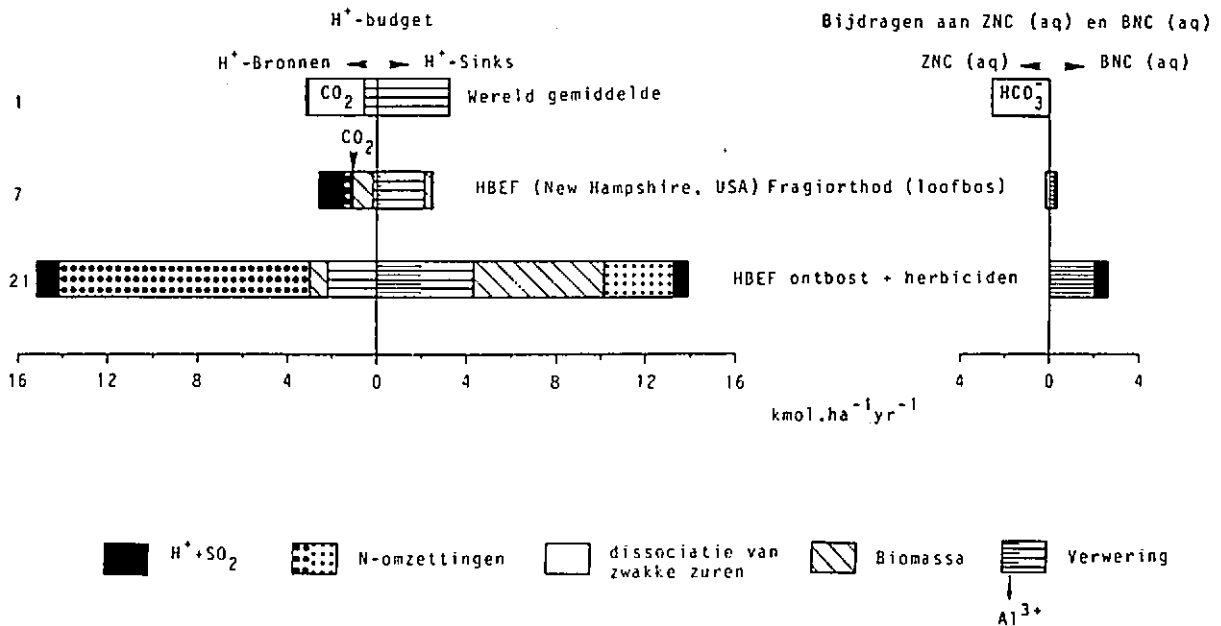
Opgeloste organische zuren kunnen H⁺ bij een lage pH (pK 4-5) afstaan, zoals bijvoorbeeld in twee van de vier beschouwde podzolen (nrs. 5 en 8). Merk op dat afvoer van organische anionen slechts bodemverzuring veroorzaakt bij gelijktijdige afvoer van kationen. Afvoer van gedeeltelijk gedissocieerde organische zuren (HA + A⁻ + H⁺) kan zorgen voor een relatief lage pH in het drainwater maar heeft in feite geen effect op ZNC_(s) of ZNC_(aq). In tegenstelling tot beweringen van andere onderzoekers (Krug & Frink, 1983) speelt organische stof in de grond geen directe rol bij bodemverzuring. Het effect van kationen omwisseling aan organische stof is verrekend onder "verwerking".

In terrestrische systemen met zure bodems en langzame matig tot snelle bodemverzuring kunnen biologische processen een belangrijke bijdrage leveren aan de interne productie van protonen. De meeste planten assimileren meer (niet N-) kationen dan (niet N-) anionen. Neemt het ecosysteem toe in biomassa (zoals bijv. in vrijwel alle niet-natuurlijke bossen) dan resulteert dit in een net protonen-productie (nrs. 6-8, 10-

14). In een ontbost stroomgebied binnen het Hubbard Brook Experimental Forest (HBEF) in New Hampshire (nr. 21, figuur 5) werd gedurende drie jaar na de kap vegetatie onderdrukt door gebruik van herbiciden, terwijl wel afbraak van organisch materiaal (gekapt hout + strooisellaag) plaatsvond.

Voornamelijk door vertering van de strooisellaag gevolgd door nitrificatie vond een zeer sterke H⁺-productie plaats, zelfs hoger dan in kalkrijke gronden (zie figuur 4). Merk op dat slechts een vrij klein deel (31%) van deze H⁺ bij vertering van mineralen werd geneutraliseerd, terwijl het grootste deel werd geneutraliseerd door mineralisatie van kationen uit de strooisellaag en door verwijdering van nitraat (waarschijnlijk voornamelijk door denitrificatie). Onder het niet gekapte bos in het HBEF (nr. 7) vond neutralisatie van protonen voornamelijk (88%) plaats door vertering van kationen. De omstandigheden bij het ontbossingsexperiment waren weliswaar extreem, maar hierdoor wordt de rol van mineralisatieprocessen bij de H⁺-huishouding goed geïllustreerd.

De biomassa reguleert de H⁺-flux ook indirect via vermindering van de waterbeweging door de grond. Gegevens voor de Castricum lysimeters werden gebruikt voor het berekenen van H⁺-budgetten van kalkrijk duinzand onder den (*Pinus nigra*, nr. 18), onder



Figuur 5 H⁺-budget van een ontbost stroomgebied en van twee referentiesystemen.

eik (*Quercus robur*, nr. 19) en zonder vegetatie (nr. 20). Het drainage water bevatte de hoogste concentraties aan opgeloste stoffen onder dennen en het minst in de onbegroeide lysimeter. Deze trend werd echter meer dan gecompenseerd door verschillen in waterflux: door sterke transpiratie door dennen werd de percolatie van water zodanig belemmerd dat de snelheid van bodemverzuring hierdoor aanmerkelijk werd gereduceerd. De waterafvoer was het hoogst in de onbegroeide lysimeter en lag tussen beide uitersten onder eik; de snelheden van bodemverzuring vertoonden hetzelfde patroon.

Externe H⁺-bronnen

Zoals blijkt uit de H⁺-budgetten voor het wereldgemiddelde systeem (nr. 1) en voor een min of meer ongestoord ecosysteem (nr. 16) speelt externe aanvoer van protonen een ondergeschikte rol onder natuurlijke omstandigheden. Nabij centra van industriële activiteit, zoals in het noordoosten van de VS (nr. 7) en in centraal en noordwest Europa (nrs. 5-6, 10-14, 17-20) kan de atmosferische aanvoer van H⁺ aanzienlijk zijn. Bij een relatief lage snelheid van bodemverzuring vormt deze externe H⁺-aanvoer dikwijls het leeuwendeel van de H⁺-belasting. In het noordoosten van de VS en Scandinavië is de externe aanvoer voornamelijk vrij H⁺ in regenwater en is droge depositie gering. In centraal Europa is de totale zure depositie aanzienlijk hoger en is het aandeel van droge depositie daarin belangrijker. In Midden-Nederland (Hackfort 12-14, 17) nemen omzettingen van atmosferisch aangevoerd

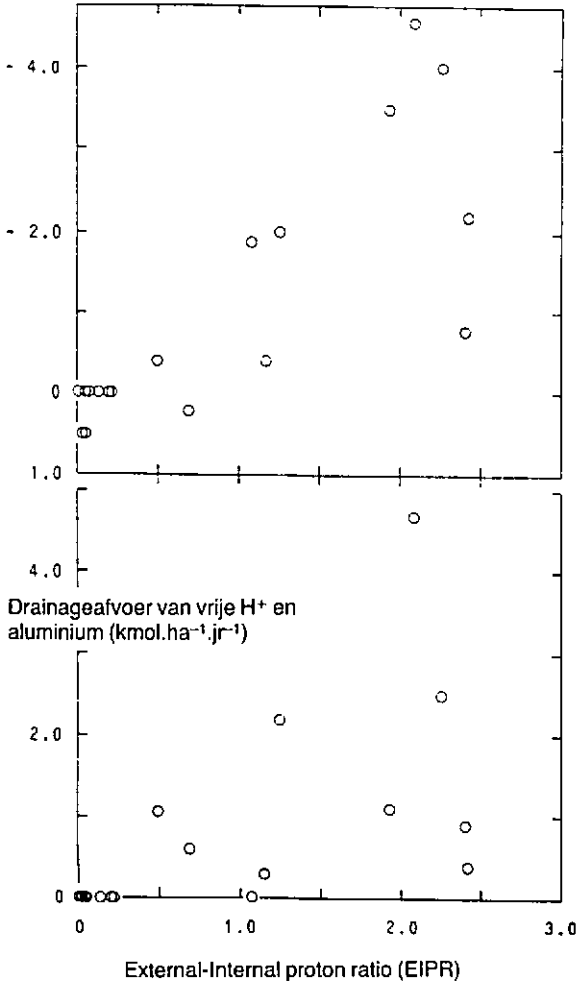
(NH₄)₂SO₄ 53 tot 66% van alle H⁺-bronnen voor hun rekening.

In Solling, BRD (nrs. 10, 11) is de snelheid van bodemverzuring groter onder fijnspaar (-5.9 kmol.ha⁻¹.j⁻¹) dan onder beuk (-2.9 kmol.ha⁻¹.j⁻¹). Het verschil is voornamelijk toe te schrijven aan het feit dat fijnspaar meer SO₂ uit de lucht invangt dan beuk (equivalent met resp. 2.8 en 0.9 kmol.ha⁻¹.j⁻¹ aan H⁺).

De grootte van de externe proton input op zich zegt weinig over de mogelijke beïnvloeding van ecosystemen door zure depositie. Een maat voor het vermogen van een ecosysteem tot het "veilig" verwerken van de (huidige) externe H⁺-aanvoer is de verhouding tussen H⁺ van externe en van interne oorsprong (EIPR).

Gronden met lage waarden voor ΔZNC_(s) zoals Birkeness in Noorwegen (nr. 5), Lüneburgerheide, BRD (nr. 6), Hubbard Brook Experimental Forest (nr. 7) en Gardsjön, Zweden (nr. 8) zijn zeer proton-gevoelig. Hier ligt de aanvoer van zure en potentieel zure stoffen (1.1-1.7 kmol.ha⁻¹.j⁻¹) in dezelfde grootteorde als de interne H⁺-productie (EIPR = 0.5-2.4). Onder die omstandigheden vindt bodemverzuring gedeeltelijk plaats door het oplossen van aluminium uit mineralen, en bevat het bodemvocht en het drainage water relatief hoge concentraties aan H⁺ en opgelost (anorganisch) aluminium. In bodems met een grote ΔZNC_(s), bijv. Castricum, kan de atmosferische H⁺-aanvoer hoog zijn (2.2-2.5 kmol.ha⁻¹.j⁻¹), maar klein vergeleken bij de interne H⁺-productie als gevolg van CO₂-dissociatie (EIPR = 0.13-0.21). Zulke kalkhoudende gronden kunnen de zure atmosferische depositie gemakkelijk verwerken via het oplossen van Ca²⁺ uit CaCO₃.

Δ ANC (s) door oplossen van Al_2O_3
en retentie van SO_3 ($kmol \cdot ha^{-1} \cdot jr^{-1}$)



Figuur 6 De snelheid van bodemverzuring door oplossen van Al_2O_3 en retentie van SO_3 (a) en de afvoer van BNC als functie van de externe-interne proton verhouding (EIPR) in de hier beschouwde ecosystemen.

In bosccosystemen in West-Europa (nrs. 10-14 en 18-20) is de externe H^+ -aanvoer extreem ($2.2-6.3 kmol \cdot ha^{-1} \cdot jr^{-1}$) wat in gronden met lage tot matig hoge snelheden van mineraalverwerking aanleiding kan ge-

ven tot hoge EIPR waarden (nrs. 10-14). In zulke gevallen is, naast oplossen van aluminium, retentie van sulfaat karakteristiek voor het bodemverzuringproces.

De variatie in het vermogen van terrestrische ecosystemen om externe H^+ -aanvoer veilig te verwerken wordt geïllustreerd in figuur 6. Hierin is de bodemverzuringssnelheid als gevolg van oplossen van aluminium en retentie van sulfaat (figuur 6a) en de drainageflux aan base neutraliserend vermogen, BNC, figuur 6b) afgezet als functie van de EIPR.

Bij lage EIPR-waarde (< 0.3) wordt de H^+ -aanvoer grotendeels door het oplossen van basische kationen verwerkt. In de meeste gevallen met een EIPR boven 0.5 worden aanzienlijke hoeveelheden aluminium opgelost en sulfaat vastgehouden, resulterend in export aan vrij H^+ en aluminium.

Uit figuur 6 blijkt echter ook een aanzienlijke variatie in de reactie van de ecosystemen op externe H^+ -aanvoer; verschillende ecosystemen compenseren een verhoogde proton-input kennelijk via verschillende mechanismen. Het is duidelijk dat een beter inzicht nodig is in deze mechanismen om redelijk te kunnen voorspellen op welke wijze een ecosysteem reageert op zure atmosferische depositie.

Literatuur

- Baker, J. & C. L. Schofield. 1980. Aluminium toxicity to fish as related to acid precipitation and Adirondack surface water quality. In: D. Drablos & A. Tollan (eds). Proc. Int. Conf. Ecol. Impact Acid precipitation SNSF Project, Oslo, Norway, 292-293.
- Breemen, N. van, J. Mulder & C. T. Driscoll. 1983. Acidification and alkalization of soils. Plant and Soil 75, 283-308.
- Breemen, N. van, C. T. Driscoll & J. Mulder. 1983. The role of acidic deposition and internal proton sources in acidification of soils and waters. Nature, 307, 599-604.
- Krug, E. C. & C. R. Frink. 1983. Acid rain on acid soil: a new perspective. Science 221, 520-525.
- Stumm, W. & J. J. Morgan. 1981. Aquatic chemistry. J. Wiley, Inc. N.Y.
- Ulrich, B. & E. Matzner. 1983. Abiotische Folgewirkungen der weiträumigen Ausbreitung von Luftverunreinigungen. Umweltforschungsplan der Bundesministers des Innern. Luftreinhalte. Forschungsbericht 104 02615, BRD.