

Abschlußbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben
298 41 252 auf dem Gebiet des Umweltschutzes
„Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung
der Belastung durch Ozon“

Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID

Rainer Stern



**Freie Universität Berlin
Institut für Meteorologie
Troposphärische Umweltforschung**

Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10
12165 Berlin

Februar 2003

Berichts-Kennblatt

Berichtsnummer	UBA-FB	2.	3.
4. Titel des Berichts Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID			
5. Autor(en), Name(n), Vorname(n)	Stern, Rainer	8. Abschlußdatum Februar 2003	9. Veröffentlichungsdatum
6. Durchführende Institution (Name, Anschrift)	Freie Universität Berlin Institut für Meteorologie Troposphärische Umweltforschung Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10 12165 Berlin	10. UFOPLAN-Nr. 298 41 252	11. Seitenzahl 180
7. Fördernde Institution (Name, Anschrift)	Umweltbundesamt, Postfach 33 00 22, D-14191 Berlin	12. Literaturangaben 74	13. Tabellen und Diagramme 25
15. Zusätzliche Angaben		14. Abbildungen 125	
16. Kurzfassung	<p>Es wird die Entwicklung eines chemischen Transportmodells beschrieben, das zur Berechnung der langfristigen Schadstoffbelastungen in der europaweiten, der nationalen sowie der regionalen Skala (Ballungsgebiet) geeignet ist. Dieses Modell, genannt REM/CALGRID (RCG), soll gleichzeitig den in der EU-Rahmenrichtlinie über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität sowie deren Tochterrichtlinien definierten Anforderungen an die Ausbreitungsrechnung genügen.</p> <p>Das Modell entstand aus der Verschmelzung des ursprünglich für die großräumige Skala entwickelten REM3 und des für die urbane Skala entwickelten CALGRID-Modells. Die Parametrisierungen der physikalisch-chemischen Prozesse einschließlich der Aerosolmodellierung erfolgte mit Ansätzen mittlerer Komplexität, um die auf Langfristberechnungen abzielende Anwendung des Modells gewährleisten zu können. Die Modellevaluierung erfolgte für die großräumige Skala durch den Vergleich der Berechnungen mit Ozon, NO₂- und PM10-Messungen und den Ergebnissen anderer Modelle. Der in den Jahren 1995, 1997 und 1999 beobachtete Ozonverlauf wird vom Modell an den zur Evaluierung geeigneten Stationen im Allgemeinen gut nachvollzogen. Auch bei den NO₂-Tagesmittelwerten wird der gemessene Jahresverlauf an den Landstationen mit hohen Werten im Winter und niedrigeren Werten im Sommer vom Modell gut wiedergegeben. PM10 wird im Sommer generell unterschätzt, was wahrscheinlich auf die noch nicht berücksichtigte Bildung der organischen Aerosole und die ebenfalls nicht berücksichtigten Prozesse der Staubaufwirbelung zurückzuführen ist.</p> <p>Die Anwendung des großräumigen Modellsystems im Rahmen planerischer Fragestellungen erfolgte für zwei europaweite Emissionsszenarien, die die Emissionssituation 2005 bzw. 2010 beschreiben. Nach den Berechnungen ist davon auszugehen, dass die Grenzwerte der EU-Richtlinien in Deutschland zum Teil bis 2010 nicht eingehalten werden können.</p>		
17. Schlagwörter	REM/CALGRID Ausbreitungsmodell, urbanes, regionales chemisches Transportmodell, Modellvergleich, EU-Richtlinien zur Luftqualität, Emissionsszenarien, Aerosolmodellierung, Modellevaluierung, EU-Grenzwerte		
18. Preis	19.	20.	

Report Cover Sheet

Report No.UBA-FB	2.	3.
<p>4. Report Title</p> <p style="margin-left: 20px;">Development and application of the chemical transport model REM/CALGRID Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID</p>		
5. Autor(s), Family Name(s), First Name(s) Stern, Rainer	8. Report Date February 2003	
6. Performing Organisation (Name, Address) Freie Universität Berlin Institut für Meteorologie Troposphärische Umweltforschung Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10 12165 Berlin	10. UFOPLAN-Ref. No. 298 41 252	
7. Sponsoring Agency (Name, Address) Umweltbundesamt, Postfach 33 00 22, D-14191 Berlin	11. No. of Pages 180	
	12. No. of Reference 74	
	13. No. of Tables, Diagrams 25	
	14. No. of Figures 125	
<p>15. Supplementary Notes</p> <p>16. Abstract</p> <p>The development of the chemical transport model REM/CALGRID (RCG), that focuses on the EU framework directive species (i.e., O₃, CO, SO₂, NO₂ and PM10) and target time scales (i.e., hour, day, year) is described. The premise was to design a Eulerian grid model of medium complexity that can be used on the regional, as well as the urban, scale for short-term and long-term simulations of oxidant and aerosol formation. Model evaluation was performed along two lines: Comparison of RCG results with measurements of the years 1995, 1997 and 1999, and with the results of other models. Overall, the model is able to reproduce the observed regional pattern of ozone, NO₂ and the aerosol components quite well. PM10 is underestimated in summer probably because the current aerosol treatment does not include the formation of secondary organic aerosols and because the emissions data base does not include biogenic sources or wind blown dust from agricultural sources and natural surfaces. The comparison of the RCG results with the results of other models of two model intercomparison studies shows that the RCG medium complexity model is performing very well in comparison to other models.</p> <p>The model was applied to two European wide emissions scenarios, which describe the expected situation in 2005, respectively 2010. According to the calculations it cannot be expected for 2010 that Germany will be in compliance with all limit values described in the EU-daughter directives.</p> <p>17. Keywords</p> <p style="margin-left: 20px;">REM/CALGRID dispersion model, urban scale, regional scale chemical transport model, aerosol modules, EU-directives, emissions scenarios, dispersion model intercomparison, EU limit values</p>		
18. Price	19.	20.

Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252
auf dem Gebiet des Umweltschutzes
„Modellierung und Prüfung von Strategien zur
Verminderung der Belastung durch Ozon“

Zusammenfassender Abschlussbericht:

Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID

für:

Umweltbundesamt
II 6.1
Postfach 33 00 22
14191 Berlin

Rainer Stern

Institut für Meteorologie
Freie Universität Berlin

Februar 2003

Inhaltsverzeichnis

1. EINLEITUNG.....	1
2. DIE REM/CALGRID-MODELLENTWICKLUNG.....	5
2.1. Die numerische Struktur.....	5
2.2. Die Gasphasenchemie	6
2.3. Die Aerosolbehandlung	6
2.3.1. Überblick	6
2.3.2. PM2.5- und PM10-Messungen	6
2.3.3. Die Modellierung von PM10 und PM 2.5	7
2.3.4. Das Aerosolmodul in REM/CALGRID	8
2.4. Das trockene Depositionsmodul in REM/CALGRID.....	10
2.4.1. Die Widerstandsanalogie.....	10
2.4.2. Atmosphärische Widerstände.....	11
2.4.3. Oberflächenwiderstände.....	14
2.5. Nasse Deposition	20
2.6. Berechnung der biogenen Emissionen	21
2.6.1. Biogene Kohlenwasserstoffemissionen.....	21
2.6.2. Biogene Stickoxidemissionen	25
2.7. Datenanforderungen	25
2.7.1. Meteorologische Daten	25
3. DATENBASEN.....	28
3.1. Meteorologisches Datenaufbereitungssystem	28
3.2. Emissionsdatenbasis	29
3.2.1. Überblick.....	29
3.2.2. Basisemissionen 1995	30
3.2.3. Emissionsszenarien 2005 und 2010	35
3.3. Landnutzungsdatenbasis.....	36
4. MODELLEVALUIERUNG.....	38
4.1. Überblick	38
4.2. Statistische Maße	41
4.3. Anwendung von REM/CALGRID auf das Jahr 1995	42
4.3.1. Vergleich mit Messungen in Deutschland.....	42
4.3.2. Der GLOREAM-Aerosol-Vergleich	68

4.4. Anwendung von REM/CALGRID auf das Jahr 1997	76
4.4.1. Vergleich mit Messungen in Deutschland.....	76
4.4.2. Der TOR-Ozon-Vergleich.....	88
4.5. Anwendung von REM/CALGRID auf das Jahr 1999.....	96
4.5.1. Vergleich mit Messungen in Deutschland.....	96
4.5.2. Flächendarstellungen.....	111
5. EMISSIONSZENARIEN.....	123
5.1. Überblick	123
5.2. Szenario 2005 und 2010: Ozon	123
5.3. Szenario 2005 und 2010: NO2	140
5.4. Szenario 2005 und 2010: PM10	150
6. KLIMATISCHE AUSWERTUNG VON MODELLIERTEN UND BEOBACHTETEN ZEITREIHEN.....	161
7. ZUSAMMENFASSUNG.....	166
7.1. Überblick	166
7.2. Modellevaluierung: Vergleich mit Messungen der Jahre 1995, 1997 und 1999	167
7.3. Modellevaluierung: Internationale Modellvergleiche im Rahmen von GLOREAM und TOR	169
7.4. Prognose der Luftqualität 2005 und 2010 auf der Basis von Emissionsszenarien.....	170
7.5. Ausblick	173
8. LITERATURVERZEICHNIS.....	175

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abbildung 1:	Jahresemissionen 1995 für NO _x in kt/a.....	32
Abbildung 2:	Jahresemissionen 1995 für NMVOC in kt/a.....	32
Abbildung 3:	Jahresemissionen 1995 für SO ₂ in kt/a.	33
Abbildung 4:	Jahresemissionen 1995 für NH ₃ in kt/a.	33
Abbildung 5:	Jahresemissionen 1995 für PM10 in kt/a.	34
Abbildung 6:	Prozentuale Aufteilung der NMHC-Emissionen in Deutschland in Kohlenwasserstoffe oder Kohlenwasserstoffgruppen. Die Aufteilung wurde durch Anwendung der verursachergruppenspezifischen Kohlenwasserstoffprofile auf die NMHC-Emissionen ermittelt.....	34
Abbildung 7	: PELINDA-Landnutzungsdaten. Quelle: Builtjes et al. (2002)	37
Abbildung 8:	Dominierende Landnutzungsklasse im Raster 0.25° Breite und 0.5° Länge. Die 15 Klassen entsprechen: 0-1 Urban_area, 1-2 Arable_land, 2-3 Irrigated arable land, 3-4 Permanent crop, 4-5 Pasture, 5-6 Natural_grassland, 6-7 Shrubs and herbs, 7-8 Coniferous forest, 8-9 Mixed forest, 9-10 Deciduous forest, 10-11 Bare soil, 11-12 Permanent ice and snow, 12-13 Wetlands, 13-14 Inland water, 14-15 Sea, >15 Not_classified. Weiße Gebiete bedeuten keine Daten verfügbar.	37
Abbildung 9:	REM/CALGRID-Modellgebiet mit einer Maschenweite von 0.25° Breite und 0.5° Länge.....	40
Abbildung 10:	Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Waldhof, 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.....	43
Abbildung 11	Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Deuselbach, 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.....	44
Abbildung 12:	Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in der Berliner Nansenstr., 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Städtische Hintergrundstation Berlin.....	45
Abbildung 13:	Berechnete und beobachtete NO ₂ -Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1995. NO ₂ -Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	46
Abbildung 14:	Berechnete und beobachtete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1995. PM10-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: PM10= 0.8 TSP.....	47
Abbildung 15:	Gemessene und berechnete Verteilung der Ozontageswerte 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert, in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen Ozonstationen der Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	50
Abbildung 16:	Gemessene und berechnete Ozonmonatsmittel 1995 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	51
Abbildung 17:	Wie Abbildung 16, aber zusätzlich für die Stationen der Kategorie Stadt („urban“).	51
Abbildung 18:	Gemessene und berechnete Verteilung der NO ₂ -Monatsmittel 1995 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO ₂ -Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	52
Abbildung 19:	Gemessene und berechnete Verteilung der NO ₂ -Jahresmittel 1995 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO ₂ -Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	52
Abbildung 20:	Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Jahresmittel 1995 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie Land (rural) und Stadt (urban). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: PM10= 0.8 TSP.....	53
Abbildung 21:	Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Monatsmittel 1995 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, getrennt nach Winter- und Sommermonaten. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie	

Land (rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: PM10= 0.8 TSP.....	53
Abbildung 22: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere Ozontagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Ländliche Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	55
Abbildung 23: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere Ozontagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Städtische Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	56
Abbildung 24: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere NO_2 -Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Ländliche Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	57
Abbildung 25: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere NO_2 -Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Städtische Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	58
Abbildung 26: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere PM10-Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Ländliche Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	59
Abbildung 27: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere PM10-Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Städtische Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	60
Abbildung 28: Berechnete (Raster) und gemessene NO_2 -Jahresmittel (Punkte) im Großraum Berlin. Alle Angaben in ppb. Die farbigen Raster entsprechen der für die REM/CALGRID-Anwendung verwendeten Maschenweite von 0.5° Länge und 0.25° Breite. Jahresrechnung 2001. Weitere Erläuterungen im Text. Quelle : Flemming, 2003, pers. Mitteilung.....	67
Abbildung 29: Die im GLOREAM-Modellvergleich verwendeten Modellgebiete. Weitere Erläuterungen im Text. (Quelle: Hass et al., 2003).....	71
Abbildung 30: Lage der im GLOREAM-Modellvergleich zur Modellevaluierung verwendeten EMEP-Messstationen. Weitere Erläuterungen im Text. (Quelle: Hass et al., 2003).....	71
Abbildung 31: Beobachtete und berechnete SO_2 -(oben) und SO_4 -Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. MATCH-Ergebnisse standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung	72
Abbildung 32: Beobachtete und berechnete NO_2 -(oben) und HNO_3 -Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Ergebnisse nicht angeführter Modelle standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung.....	73
Abbildung 33: Beobachtete und berechnete NO_3 -Aerosol- (oben) und TN_3 -Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Ergebnisse des MATCH-Modells standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung.....	74
Abbildung 34: Beobachtete und berechnete NH_3 - (oben) und NH_4 -Aerosol-Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Ergebnisse des MATCH-Modells standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung. In EUROS ist der NH_3/NH_4 -Zyklus nicht enthalten.	75
Abbildung 35: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Waldhof, 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.....	77
Abbildung 36: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Deuselbach, 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.....	78
Abbildung 37: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in der Berliner Nansenstr., 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Städtische Hintergrundstation Berlin.....	79
Abbildung 38: Berechnete und beobachtete NO_2 -Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1997. NO_2 -Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	80
Abbildung 39: Berechnete und beobachtete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1997. PM10-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: PM10= 0.8 TSP.....	81

Abbildung 40: Gemessene und berechnete Verteilung der Ozontageswerte 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert, in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen Ozonstationen der Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an	83
Abbildung 41: Gemessene und berechnete Ozonmonatsmittel 1997 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an	84
Abbildung 42: Gemessene und berechnete Ozonjahresmittel 1997 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY) und Stationen in den anderen Bundesländern (rural). Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an	84
Abbildung 43: Gemessene und berechnete Verteilung der NO_2 -Monatsmittel 1997 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO_2 -Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an	85
Abbildung 44: Gemessene und berechnete Verteilung der NO_2 -Jahresmittel 1997 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO_2 -Stationen der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an	85
Abbildung 45: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Monatsmittel 1997 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie Land ($\text{PM10}=.8*\text{TSP}$). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an	86
Abbildung 46: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Jahresmittel 1997 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen ($\text{PM10}=.8*\text{TSP}$) der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an	86
Abbildung 47: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Waldhof, 1999. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts	97
Abbildung 48: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Deuselbach, 1999. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts	98
Abbildung 49: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in der Berliner Nansenstr., 1999. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Städtische Hintergrundstation Berlin	99
Abbildung 50: Berechnete und beobachtete NO_2 -Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1999. NO_2 -Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	100
Abbildung 51: Berechnete und beobachtete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach (TSP) und Berlin-Nansenstr., 1999. PM10-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Messungen in Waldhof und Nansenstr. basieren auf gravimetrischen 24 Stunden-Sammeln. Für Waldhof ist noch die zeitlich hoch aufgelöste TSP-Messung (Beta-Absorption) angegeben	101
Abbildung 52: Berechnete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1999. Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ unterteilt in primäre Komponenten PM10 prim (PMCO+PM2.5) und sekundäre Komponenten PM10 sec ($\text{SO}_4+\text{NO}_3+\text{NH}_4$)	102
Abbildung 53: Gemessene und berechnete Ozonmonatsmittel 1999 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an	105
Abbildung 54: Gemessene und berechnete Ozonjahresmittel 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), alle Bergstationen und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Ozonstationen der Kategorie Land (mit Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an	105
Abbildung 55: Wie Abbildung 54, aber Klassifizierung der nicht-städtischen Stationen nach der Clustermethode von Flemming (2003a). Weitere Erläuterungen im Text	105

Abbildung 56: Berechnete und gemessene Anzahl der Tage im Jahr 1999, an denen der tägliche höchste gleitende Ozon-8-Stundenmittelwert größer als $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ist. Oben: Ländliche, Küsten- und Bergstationen nach der alten UBA-Kategorisierung, unten nach der Flemming'schen Neueinteilung (Flemming, 2003a). BY Bayerische Stationen, COASTAL: Stationen an der Küste oder auf Inseln, MOUNTAIN: Bergstationen. Weitere Erläuterungen im Text.....	106
Abbildung 57: Berechnete und gemessene AOT40-Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$ für Pflanzen (oben) und Wälder (unten). Stationskategorisierung nach der Flemming'schen Neueinteilung (Flemming, 2003a). Die gestrichelten Linien kennzeichnen die Grenzwerte der EU-Tochterrichtlinie für Ozon. Weitere Erläuterungen im Text.....	107
Abbildung 58: Gemessene und berechnete Verteilung der NO_2 -Monatsmittel 1999 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO_2 -Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	108
Abbildung 59: Gemessene und berechnete Verteilung der NO_2 -Jahresmittel 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO_2 -Stationen der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	108
Abbildung 60: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10 -Monatsmittel 1999 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie Land ($\text{PM10} = 8 \cdot \text{TSP}$). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	109
Abbildung 61: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10 -Jahresmittel 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen ($\text{PM10} = 8 \cdot \text{TSP}$) der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.....	109
Abbildung 62: Berechnete Ozon-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	113
Abbildung 63: Berechnete Ozon-Sommermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	113
Abbildung 64: Berechnete Ozon-Wintermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	114
Abbildung 65: Höchste berechnete Ozonwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	114
Abbildung 66: Berechnete Anzahl der Tage in 1999, in denen der höchste tägliche 8-Stundenmittelwert von Ozon größer als $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt.....	115
Abbildung 67: Berechnete AOT40-Werte für Pflanzen normiert mit dem Grenzwert ($18000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Bezugsjahr 1999.....	115
Abbildung 68: Berechnete AOT40-Werte für Wälder normiert mit dem Grenzwert ($20000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Bezugsjahr 1999.....	116
Abbildung 69: Berechnete NO_2 -Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	116
Abbildung 70: Berechnete NO_2 -Sommermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	117
Abbildung 71: Berechnete NO_2 -Wintermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	117
Abbildung 72: Berechnete PM10 -Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	118
Abbildung 73: Berechnete PM10 -Sommermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	118
Abbildung 74: Berechnete PM10 -Wintermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	119
Abbildung 75: Berechnete primäre PMCO (PM10-PM2.5)-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	119
Abbildung 76: Berechnete primäre PM2.5-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	120
Abbildung 77: Berechnete SO_4 -Aerosol-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	120
Abbildung 78: Berechnete NO_3 -Aerosol-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	121
Abbildung 79: Berechnete NH_4 -Aerosol-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	121
Abbildung 80: Berechneter Anteil (%) der Primärkomponenten PM2.5 und (PM10-PM2.5) an den gesamten PM10 -Konzentrationen (Jahresmittelwert 1999).....	122
Abbildung 81: Berechneter Anteil (%) der Sekundärkomponenten SO_4 , NO_3 , NH_4 an den gesamten PM10 -Konzentrationen (Jahresmittelwert 1999).....	122
Abbildung 82: Berechnete tägliche Ozonmaxima an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmaxima (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmaxima 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	127

Abbildung 83: Berechnete tägliche Ozonmittelwerte an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	128
Abbildung 84: Berechnete tägliche Ozonmaxima an der Station Deuselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmaxima (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmaxima 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	129
Abbildung 85: Berechnete tägliche Ozonmittelwerte an der Station Deuselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	130
Abbildung 86: Berechnete tägliche Ozonmaxima an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmaxima (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmaxima 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	131
Abbildung 87: Berechnete tägliche Ozonmittelwerte an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	132
Abbildung 88: Berechnete Änderung der Ozon-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 62)	133
Abbildung 89: Berechnete Änderung der Ozon-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 62)	133
Abbildung 90: Berechnete Änderung der Ozon-Wintermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 64)	134
Abbildung 91: Berechnete Änderung der Ozon-Wintermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 64)	134
Abbildung 92: Berechnete Änderung der Ozon-Sommermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 63)	135
Abbildung 93: Berechnete Änderung der Ozon-Sommermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 63)	135
Abbildung 94: Änderung der höchsten berechneten Ozonkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 65)	136
Abbildung 95: Änderung der höchsten berechneten Ozonkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 65)	136
Abbildung 96: Berechnete Anzahl der Tage in 2005, in denen der höchste tägliche 8-Stundenmittelwert von Ozon größer als $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt	137
Abbildung 97: Berechnete Anzahl der Tage in 2010, in denen der höchste tägliche 8-Stundenmittelwert von Ozon größer als $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt	137
Abbildung 98: Berechnete AOT40-Werte für Pflanzen normiert mit dem Grenzwert ($18000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2005	138
Abbildung 99: Berechnete AOT40-Werte für Pflanzen normiert mit dem Grenzwert ($18000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2010	138
Abbildung 100: Berechnete AOT40-Werte für Wälder normiert mit dem Grenzwert ($20000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2005	139
Abbildung 101: Berechnete AOT40-Werte für Wälder normiert mit dem Grenzwert ($20000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2010	139
Abbildung 102: Berechnete tägliche NO_2 -Mittelwerte an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der NO_2 -Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen NO_2 -Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	142
Abbildung 103: Berechnete tägliche NO_2 -Mittelwerte an der Station Deuselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der NO_2 -Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen NO_2 -Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	143
Abbildung 104: Berechnete tägliche NO_2 -Mittelwerte an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der NO_2 -Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen	

NO ₂ -Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	144
Abbildung 105: Berechnete NO ₂ -Jahresmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999	145
Abbildung 106: Berechnete 99.79-Perzentile der NO ₂ -Stundenwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999.....	145
Abbildung 107: Berechnete Änderung der NO ₂ -Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 105).....	146
Abbildung 108: Berechnete Änderung der NO ₂ -Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 105).....	147
Abbildung 109: Berechnete Änderung des 99.79-Perzentils der NO ₂ -Stundenwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 106)	148
Abbildung 110: Berechnete Änderung des 99.79-Perzentils der NO ₂ -Stundenwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 106)	149
Abbildung 111: Berechnete tägliche PM10-Mittelwerte an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der PM10-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen PM10-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	152
Abbildung 112: Berechnete tägliche PM10-Mittelwerte an der Station Deuselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der PM10-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen PM10-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	153
Abbildung 113: Berechnete tägliche PM10-Mittelwerte an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der PM10-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen PM10-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	154
Abbildung 114: Berechnete PM10-Jahresmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999	155
Abbildung 115: Berechnete 90.14-Perzentile der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999	155
Abbildung 116: Berechnete Änderung der PM10-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 114).....	156
Abbildung 117: Berechnete Änderung der PM10-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 114).....	157
Abbildung 118: Berechnete Änderung des 90.41-Perzentils der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 115)	158
Abbildung 119: Berechnete Änderung des 90.41-Perzentils der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 115)	159
Abbildung 120: Berechnete 90.14-Perzentile der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999 (oben) und Jahr 2005 (unten). Deutschlandausschnitt.....	160
Abbildung 121: Interannuale Variation von Ozon (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes B, R, U1, U2, U3 und S.....	163
Abbildung 122: Interannuale Variation von NO ₂ (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.....	164
Abbildung 123 Interannuale Variation von NO (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.....	164
Abbildung 124 Interannuale Variation von PM10 (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.....	165
Abbildung 125 Interannuale Variation von SO ₂ (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.....	165

TABELLENVERZEICHNIS

Tabelle 1: Die für die verschiedenen Landnutzungsklassen in REM/CALGRID benutzten Werte für den Referenzwiderstand R_i in Abhängigkeit von 4 Wachstumsphasen: (1) Hauptwachstumsphase, (2) Frühe Wachstumsphase, (3) Kein Wachstum ohne Schnee, (4) Kein Wachstum mit Schnee.....	15
Tabelle 2: Die für die verschiedenen Landnutzungsklassen in REM/CALGRID benutzten Werte für den Blattflächenindex LAI in Abhängigkeit von 4 Wachstumsphasen: (1) Hauptwachstumsphase, (2) Frühe Wachstumsphase, (3) Kein Wachstum ohne Schnee, (4) Kein Wachstum mit Schnee.....	18
Tabelle 3: Die für die verschiedenen Landnutzungsklassen in REM/CALGRID benutzten Werte für die Rauhigkeitslänge z_0 in Abhängigkeit von 4 Wachstumsphasen: (1) Hauptwachstumsphase, (2) Frühe Wachstumsphase, (3) Kein Wachstum ohne Schnee, (4) Kein Wachstum mit Schnee	19
Tabelle 4: Gegenwärtige zeitliche REM/CALGRID-Zuordnung der Wachstumsphasen zu den einzelnen Monaten. Diese Zuordnung gilt gegenwärtig für das gesamte REM/CALGRID-Gebiet...	19
Tabelle 5: Prozentuale Anteile von 6 Baumsorten an der gesamten Waldbedeckung pro Land im REM/CALGRID-Modellgebiet. Quelle: Simpson et al. 1995.....	24
Tabelle 6: Biomassendichte BM in g m^{-2} , VOC-Emissionsfaktoren in $\mu\text{g C}/(\text{g BM h})$, ISOP= Isopren, TERP=Terpene, OVOC= andere Kohlenwasserstoffe. Die Klasse nicht-dominante Vegetation bezeichnet den Anteil an Bäumen und Sträuchern, die nicht zu den 6 ausgewiesenen Klassen gehören, aber ebenfalls Kohlenwasserstoffemittenten sind. 15% der Biomasse in den Gebieten mit Laubbäumen, 3% der Fichtenbiomasse und 5% der Biomasse anderer Coniferen wird dieser Kategorie zugeordnet. Quellen: Simpson et al., 1995, 1999, Guenther et al., 1995.	25
Tabelle 7: Jahresemissionen 1995 in kt/a basieren auf CORINAIR und CEPMEIP. k.A.= keine Angaben. Details können in Stern (2003) gefunden werden.	31
Tabelle 8: Emissionsänderungen in Deutschland für das Jahr 2005 und 2010 (CLE-Szenario und MFR-Szenario) bezogen auf die Emissionen 1995. Weitere Erläuterungen im Text und in Stern (2003).....	35
Tabelle 9: Anzahl der vorliegenden Jahreszeitreihen, deren Vollständigkeit größer als 85% ist für Deutschland (D) und für Europa (EU), ausgenommen Deutschland. Quelle: Flemming (2003a)	40
Tabelle 10: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher Ozonmittelwert 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge.....	63
Tabelle 11: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Tägliches Ozonmaximum 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge.....	64
Tabelle 12: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher NO ₂ -Mittelwert 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge.....	65
Tabelle 13: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher PM10-Mittelwert 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge..	66
Tabelle 14: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der Kategorie ländlich. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher Ozonmittelwert 1997, Tägliches Ozonmaximum 1997, Täglicher NO ₂ -Mittelwert 1997, Täglicher PM10-Mittelwert 1997. Auswertung in zeitlicher Abfolge.....	87
Tabelle 15: Normierter Bias in % für die berechneten täglichen Ozonmaxima Mai bis August 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. Quelle: Roemer et al. (2003).....	90
Tabelle 16: Normierter Mittlerer quadratischer Fehler NRMSE in % für die berechneten täglichen Ozonmaxima Mai bis August 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. Quelle: Roemer et al. (2003).....	91
Tabelle 17: Korrelationskoeffizient in % für die berechneten täglichen Ozonmaxima Mai bis August 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. Quelle: Roemer et al. (2003).....	92
Tabelle 18: Normierter Bias in % für die berechneten Ozontagesmittelwerte in Januar, Februar, November, Dezember 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. nd= No Data. Quelle: Roemer et al. (2003) .	93

Tabelle 19: Mittlerer Fehler NRMSE in % für die berechneten Ozontagesmittelwerte in Januar, Februar, November, Dezember 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. nd= No Data. Quelle: Roemer et al. (2003). .94	
Tabelle 20: Korrelationskoeffizient in % für die berechneten Ozontagesmittelwerte in Januar, Februar, November, Dezember 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. nd= No Data. Quelle: Roemer et al. (2003). .95	
Tabelle 21: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der Kategorie ländlich. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher Ozonmittelwert 1999, Tägliches Ozonmaximum 1999, Täglicher NO ₂ -Mittelwert 1999, Täglicher PM10-Mittelwert 1999. Ozon wurde mit der alten Stationseinteilung des Umweltbundesamt (alt) und mit der neuen Einteilung von Flemming (2003a) ausgewertet. Weitere Erläuterungen im Text. Auswertung in zeitlicher Abfolge.....	110
Tabelle 22: Mittlere Ozonabnahmen in den oberen 5% der Summenhäufigkeitsverteilung als Folge der europaweiten Emissionsveränderungen bis 2005, bzw. 2010 an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstraße.....	125
Tabelle 23: Berechnete NO ₂ -Jahresmittelwerte für den Basislauf 1999 und die Szenarien 2005 und 2010.....	140
Tabelle 24: Berechnete PM10-Jahresmittelwerte für den Basislauf 1999 und die Szenarien 2005 und 2010. Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstraße.....	150
Tabelle 25: Anteil (in %) der berechneten Tageswerte, die innerhalb eines Bereiches von +/-50% um die gemessenen Tageswerte der Stationen vom Typ „Land“ liegen. Ozon: Maximum (O3-Max), Tagesmittelwert (O3-Mean), höchster täglicher gleitender 8-Stundenmittelwert (O3-M8M); NO ₂ und PM10 Tagesmittelwerte. 1999 alt: Auswahl der ländlichen Stationen nach der alten UBA-Klassifizierung. 1999 neu: Auswahl der ländlichen Stationen nach der neuen Cluster-Klassifizierung (siehe Kap.6). Alle Messwerte sind berücksichtigt. Auswertung in zeitlicher Abfolge von Messung und Rechnung.....	169

1. Einleitung

Im Rahmen des Vorhabens wurde ein Modellinstrumentarium entwickelt, das zur Berechnung der langfristigen Schadstoffbelastungen in der europaweiten, der nationalen sowie der regionalen Skala geeignet ist und den in der EU-Rahmenrichtlinie (EU, 1996) über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität sowie deren Tochterrichtlinien (EU, 1999, 2000, 2002) genannten Anforderungen an die Ausbreitungsrechnung genügt.

Nach den EU-Richtlinien spielen Ausbreitungsrechnungen zur flächendeckenden Bestimmung der Luftqualität in folgenden vier Raumskalen eine wesentliche Rolle:

- europaweit,
- großräumig (national)
- regional (Ballungsraum)
- lokal/städtisch (Stadtquartier, Straßenschlucht).

Das Modellsystem ermöglicht es, die in der EU-Rahmenrichtlinie definierten Luftqualitätswerte zu bestimmen. Betrachtet werden die Schadstoffe SO₂, NO_x, Benzol, Ozon, PM10 und CO. Ge-rechnet wird in stündlicher Auflösung für das ganze Jahr.

Das Modellsystem enthält folgende Ausbreitungsmodelle:

- Das dreidimensionale photochemische Transportmodell REM/CALGRID, das zur Behandlung der PM10-Problematik um ein Aerosolmodul ergänzt wurde. Die Entwicklung dieses Modells und die Bereitstellung der zur Betreibung notwendigen Datenbasen war Schwerpunkt dieses Projekts. REM/CALGRID wird zur Bestimmung der Luftqualität in der europaweiten und der nationalen Raumskala in einer Auflösung von ca. 30x30 km² und in der urbanen Raumskala (Ballungsgebiet) bis zu einer Auflösung von ca. 2x2 km² verwendet. Die aus dem großräumigen Modell berechnete Hintergrundbelastung wird als Randbedingung für die urbane Skala verwendet („one-way-nesting“).
- Das Canyon-Plume-Box-Modell (CPB). Das CPB-Modell ist ein 2-dimensionales analytisch-empirisches Modell, mit dem die Luftschadstoffimmissionen in einer Straßenschlucht berechnet werden können. Die Hintergrundbelastung wird dazu von den urbanen Ausbreitungsrechnungen bereit gestellt („one-way-nesting“).
- AUSTAL2000, ein Lagrange'sches Partikelsimulationsmodell zur Beschreibung von Immissionsbelastungen ausgehend von industriellen Quellen. Die Hintergrundbelastung dazu wird ebenfalls von den urbanen Ausbreitungsrechnungen bereit gestellt („one-way-nesting“).

Ausgangspunkt für die Modellentwicklung war das von Stern (1994) entwickelte großräumige photochemische Transportmodell REM3 (**R**egional **E**ulerian **M**odel with **3** different chemical mechanisms). In einer Vorstudie (Stern und Builtjes, 1998) wurde die Anwendbarkeit des REM3 zur Bestimmung von Jahresmittelwerten der Ozon- und Stickoxidbelastung und von AOT40-Werten untersucht. Insgesamt hat die erste Anwendung des REM3 auf die Langfristproblematik gezeigt, dass das ursprünglich für sommerliche Episoden entwickelte Modell imstande ist, auch die über das Jahr gemessenen Oxidantienverläufe zu reproduzieren. Nach den Ergebnissen der Vorstudie mussten das Modell und seine Datenbasen für die Berechnung von Ozon-Langfristwerten sowie der in der EU-Tochterrichtlinien (EU, 1999, 2000, 2002) definierten Beurteilungsgrößen (Lang- und Kurzfristgrößen) aber in mehreren Punkten erweitert bzw. verbessert werden.

Im Rahmen des Aktionsprogramms und Maßnahmenplans Ozon (AMPO, Motz et al., 1997) wurde das REM3 bereits zusammen mit dem urbanen Modell CALGRID (Yamartino et al.,

1992) für die europaweite bzw. die urbane Skala angewandt. Die Koppelung zweier unterschiedlicher Modelle führt aber zu Randwertproblemen. Daher wurden die Modelle REM3 und CALGRID in Abstimmung mit den Projektarbeiten des ebenfalls an die FUB vergebenen Projekts „Entwicklung eines Modellsystems für das Zusammenspiel von Messung und Rechnung für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien“ (FE-Vorhaben 299 43 246) soweit miteinander verschmolzen, dass das neue Modell mit dem Titel REM/CALGRID sowohl in der großräumigen als auch in der urbanen Skala eingesetzt werden kann. Diese Verschmelzung ermöglicht es, die Anforderungen der EU-Rahmenrichtlinie und ihrer Tochterrichtlinien in einer Modellschale zu erfüllen, ohne die spezifischen Vorteile eines der beiden Ausgangsmodelle zu verlieren, und gestattet gleichzeitig ein „one-way-nesting“ ohne die Randwertprobleme, die bei der Koppelung unterschiedlicher Modelle auftreten.

Im Einzelnen wurden in dem Vorhaben folgende Arbeiten durchgeführt:

I Modellentwicklung REM/CALGRID

- Entwicklung des Horizontal- und Vertikalkoordinatensystems. Das neue Koordinatensystem umfasst das Drei-Schichtensystem des REM3, erlaubt aber die Erweiterung auf mehr dynamische Schichten oder den Wechsel zu festen Schichten. In der Horizontalen besteht die Wahl zwischen einem geographischen oder einem rechtwinkligen Koordinatensystem
- Entwicklung eines neuen, massenerhaltenden „operator-splitting“-Verfahrens
- Einarbeitung und Verbesserung eines im Vergleich zum bisher verwendeten Advektionsverfahren sehr genauen und trotzdem nicht-rechenintensiven neuen Algorithmus für die Horizontaladvektion
- Überarbeitung des Moduls für die trockene Deposition
- Überarbeitung der chemischen Module CBM4 und SAPRC
- Überarbeitung des Moduls zur Bestimmung der biogenen Emissionen
- Einarbeitung eines existierenden Aerosol-Moduls zur Berechnung der anorganischen Aerosole, das für die Anwendung in einem Langfrist-Modell geeignet ist
- Erweiterung der Palette der Modellspezies zur Behandlung der PM10- und PM2.5-Problematik
- Entwicklung von Auswerte-Modulen zur Berechnung der in den EU-Richtlinien zur Luftqualität festgeschriebenen Beurteilungsgrößen
- Anpassen der Emissionsmodule und des Emissionsmanagementsystems an die neue Emissionsdatenbasis und Erstellen einer Schnittstelle zu REM/CALGRID

II Datenbasen

- Überarbeitung und Erweiterung der Methoden zur Erzeugung der meteorologischen Eingangsdaten des REM/CALGRID insbesondere für die Variablen Mischungsschichthöhe, Wolkenbedeckung, Niederschlag und Vertikalgeschwindigkeit
- Erstellen einer dem neuesten verfügbaren Stand entsprechenden Emissionsdatenbasis
- Erstellen einer neuen Landnutzungsdatenbasis abgeleitet aus Satelliteninformationen

II Entwicklung von Datenassimilationsverfahren zur Integration von Messdaten in berechnete Konzentrationsfelder mit unterschiedlicher Komplexität

- Einbringen von Modell-Information in interpolierte (gemessene) Konzentrationsfelder, speziell in Gebieten ohne Messungen: **Postprocessing**
- Anpassung berechneter Konzentrationsfelder an die Ergebnisse einer Messnetze: **Assimilation während des Modellaufs**
- Berücksichtigung von Unsicherheiten in Modellparametern, Datenbasen und Messungen. Bestimmung des besten Fits zwischen berechneten und gemessenen Konzentrationsfeldern: **KALMAN-Filterung**.

IV Anwendung

- Vorabinwendung des REM3-Modellsystems für laufende Fragestellungen
- Anwendung des neuen REM/CALGRID-Systems für Basisläufe 1995, 1997 und 1999 sowie für Emissionszenarien 2005 und 2010 in der großräumigen Skala.
- Evaluierung des Modells durch Teilnahme an den internationalen Modellvergleichen im Rahmen von GLOREAM (Schwerpunkt sekundäre anorganische Aerosole) und TOR (Schwerpunkt Ozon).

Dieser Bericht gibt eine Zusammenfassung der im Rahmen des Vorhabens durchgeführten Arbeiten und beschreibt insbesondere die Entwicklung des Modells REM/CALGRID sowie die Anwendung des Modells in der großräumigen (europaweiten) Skala.

Neben diesem zusammenfassenden Abschlussbericht sind die im Rahmen dieses Projekts ausgeführten Arbeiten noch in folgenden Berichten dokumentiert:

Stern, R. (2003), Erstellung einer europaweiten Emissionsdatenbasis mit Bezugsjahr 1995 und die Erarbeitung von Emissionsszenarien für die großräumigen Ausbreitungsrechnungen mit REM/CALGRID. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Buitjes, P., M. van Loon, M. Schaap, S. Teeuwisse, A. Visschedijk, P. Bloos (2002), The development of an emission data base over Europe and further contributions of TNO-MEP. TNO-Report R2002/322. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Schaap, M. (2000), Aerosols in Lotos, TNO-Report R 2000/405 (2000). Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Flemming, J. (2003a), Klimatische Auswertung von modellierten und beobachteten Zeitreihen für Ozon, NO₂, NO, SO₂ und PM10 in Deutschland für die Jahre 1995-2001 und deren Charakterisierung nach Immissionsregimes mit einem Clusterverfahren. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Flemming, J. (2003b), OI und Kalman-Filtertechniken für Ausbreitungsrechnungen mit dem chemischen Transportmodell REM/CALGRID - Grundlagen –. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Fath, J. (2003), Beschreibung und Benutzeranleitung eines auf GRADS basierenden graphischen Moduls zur Darstellung von Immissionsfeldern. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Oestreich, A. und Reimer, E. (2003), Bestimmung von Bedeckungsgrad und Wolkentyp aus METEOSAT-Daten. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Yamartino, R. (2003), Refined 3-d Transport and Horizontal Diffusion for the REM/CALGRID Air Quality Model. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Builtjes, P. (2003), Aerosols over Europe with focus on black carbon. Abschlussbericht im Rahmen des FE-Vorhabens.

Ergebnisse des FE-Vorhabens wurden schon in folgenden Veröffentlichungen vorgestellt:

Stern, R. and R. J. Yamartino (2001), Dispersion Modelling within the European Community's Air Quality Framework Directive: Long Term Modelling of PM10, Fifth GLOREAM Workshop, Wengen, Switzerland, Sept. 24-26. (2001)

http://people.web.psi.ch/keller_j/GLOREAM/WS2001/WS01_frameset_proceedings.html

Stern, R. and R.J. Yamartino (2002), Development and first results of a new photochemical model for simulating ozone and PM-10 over extended periods. 25th Conference on Agricultural and Forest Meteorology, 20-24 May 2002 in Norfolk, VA

Flemming, J., Reimer, E. und Stern, R. (2002), Data assimilation for CT-Modelling based on optimum interpolation, in ITM Air pollution modelling and its applications XXIV, eds. C. Borrego und G. Schayes, NATO CMS, Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York.

Flemming, J. (2003c)

Immissionsfelder aus Beobachtung, Modellierung und deren Kombination. Dissertation am Fachbereich Geowissenschaften der FU Berlin. <http://www.diss.fu-berlin.de/2003/71>

In Stern (2003) ist eine detaillierte Beschreibung der europaweiten Emissionsdatenbasis und der Ableitung der Emissionsszenarien zu finden. Builtjes et al. (2002) fassen die Arbeiten der TNO für dieses Vorhaben zusammen. Die TNO erstellte auf der Basis von CORINAIR-Informationen die europaweite Emissionsdatenbasis für die Stoffe NO_x, VOC, CO, NH₃, CH₄ und SO₂ und auf der Basis von CEPMEIP-Informationen diejenige für PM10 und PM2.5 (siehe Kap. 3.2). Die Fortschreibungsfaktoren von 1995 bis 2001 sowie die Kohlenwasserstoffprofile für die verschiedenen Verursachergruppen wurden ebenfalls von der TNO erarbeitet. Die Eigenschaften des in REM/CALGRID verwendeten Aerosol-Moduls (siehe Kap. 2.3.4) werden von Schaap (2000) untersucht. In Builtjes (2003) sind erste Abschätzungen für die europaweiten Anteile des elementaren Kohlenstoffs (EC) an den anthropogenen PM-Emissionen zu finden. In späteren Modellanwendungen soll dieser Stoff wegen seiner gesundheitsgefährdenden Aspekte getrennt behandelt werden. In Yamartino (2003) ist die ausführliche Beschreibung der für REM/CALGRID entwickelten numerischen Struktur zu finden. Erste Anwendungen mit dem neuen Modell REM/CALGRID werden in Stern und Yamartino (2001) und Stern und Yamartino (2002) präsentiert. Flemming (2003a) liefert eine klimatische Gegenüberstellung mit REM/CALGRID berechneter und gemessener Konzentrationszeitreihen für die Jahre 1995-2001 und entwickelt eine stationsbezogene Klassifikation in verschiedene Regime auf der Basis von Clusterverfahren. Diese Regimeeinteilung ist auch die Grundlage zur Anwendung von Assimilationstechniken wie der Optimalen Interpolation oder dem Kalman-Filter und soll auch als skalenbezogenes Kriterium zur Auswahl von Messstationen für die Zwecke der Modellevaluierung verwendet werden. Diese Techniken werden im Detail in Flemming (2003b) beschrieben. In Oestreich (2003) wird der mögliche Einsatz von Satellitendaten zur Erstellung von Eingangsdaten für REM/CALGRID untersucht. In Fath (2003) wird das zur Darstellung von Immissionsfeldern entwickelte graphische Modul präsentiert.

2. Die REM/CALGRID-Modellentwicklung

2.1. Die numerische Struktur

Im alten REM3-Koordinatensystem wird der Ausbreitungsraum in drei Schichten aufgeteilt, wobei die vertikale Ausdehnung der beiden oberen Schichten zeitlich und räumlich variabel ist. Dieses Koordinatensystem ist fest im Modell verdrahtet. Die bisherigen Anwendungen haben gezeigt, dass es im Bereich starker räumlicher oder zeitlicher Gradienten der Mischungsschichthöhe durch die damit verbundenen starken Vertikalbewegungen des Gitters zu künstlichen Vertikalbewegungen kommt, die zu einer Nichteinhaltung der Massenbilanz führen, falls nicht sehr kleine Zeitschritte gewählt werden. Dies ist vor allem der Fall im Bereich des Überganges See-Land und am Abend beim Zusammenbruch der Mischungsschicht.

Dieses Problem wurde durch Ersetzen des jetzigen numerischen Verfahrens zur horizontalen und vertikalen Transports von Schadstoffen durch ein von Yamartino (2003) entwickeltes Verfahren gelöst, das absolut massenerhaltend ist und gleichzeitig alle numerischen Fehler infolge des sog. „operator-splittings“ unterdrückt. In diesem Verfahren wird die durch die Bewegung des Vertikalgitters hervorgerufene nicht-physikalische Vertikalgeschwindigkeit von der echten, durch die großräumigen Divergenzen oder Konvergenzen des Windfeldes verursachten physikalischen Vertikalgeschwindigkeit sowie der Diffusionsgeschwindigkeit getrennt. In einem ersten Schritt erfolgt für jede Änderung des Vertikalgitters eine Umverteilung der Masse von dem alten Gitter auf das neue Gitter mit einem einfachen Donor-Cell-Verfahren. Dieses Verfahren garantiert eine 100%ige Massenerhaltung. In einem zweiten Schritt erfolgt die numerische Lösung der vertikalen Diffusionsgleichung mit einem Crank-Nicolson-Verfahren, in der der vertikale Transport nur noch von der physikalischen Vertikalgeschwindigkeit und der Diffusionsgeschwindigkeit bestimmt wird. Die Verwendung eines impliziten Crank-Nicolson-Verfahrens erlaubt in Verbindung mit den jetzt relativ geringen Vertikalgeschwindigkeiten sehr viel größere Zeitschritte als das numerische Verfahren des REM3, das die Vertikalverteilung der Masse auf Basis der Summe aus der künstlichen, durch die Bewegung des Gitters hervorgerufenen Vertikalgeschwindigkeit und der physikalischen Vertikalgeschwindigkeit vornimmt.

Im Modell REM/CALGRID erfolgt eine numerische Lösung der dreidimensionalen Advektions-Diffusionsgleichung in der folgenden Form:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V} C_i - \mathbf{K} \rho \nabla (\frac{1}{\rho} C_i)) = 0$$

mit C_i der Massenkonzentration eines Spezies i , \mathbf{V} dem Windvektorfeld, \mathbf{K} dem Diffusionstensor, und ρ der atmosphärischen Dichte. Die numerische Lösung der horizontalen Transportterme erfolgt mit einer Weiterentwicklung des flusserhaltenden Walcek-Verfahrens (Walcek, 2000), der Vertikaltransport und die Massenverlagerung durch Schichtbewegung wird mit Hilfe der oben beschriebenen Verfahren bewerkstelligt. Die Massenerhaltung dieser Verfahren ist im Rahmen der Rechengenauigkeit zu 100% erfüllt. Das Koordinatensystem ist flexibel und hat folgende Optionen für den Aufbau des Vertikalgitters:

- Dynamische Schichten mit einer beliebigen Anzahl von Schichten unterhalb und oberhalb der Mischungsschichthöhe (REM3-Modus ist in dieser Option enthalten). Die Schichtbewegung wird durch die Änderung der Mischungsschichthöhe gesteuert.
- Feste Schichten mit einer beliebigen Anzahl von Schichten.

Die numerischen Details des Verfahrens können in Yamartino (2003) gefunden werden.

2.2. Die Gasphasenchemie

Das Modell kann mit zwei verschiedenen chemischen Gasphasenmechanismen betrieben werden, die sich grundsätzlich in der Art und Weise, wie die Vielfalt der chemischen Reaktionen vereinfacht bzw. diese zusammengefaßt werden, unterscheiden. Jeder der Mechanismen ist dabei ein moderner Vertreter einer bestimmten Art der Klassifizierung der für die Oxidantienbildung relevanten Luftbeimengungen und deren Reaktionen.

Die zwei Gasphasenmechanismen sind:

- der CBM-IV (Carbon Bond-IV-Mechanismus)
- der SAPRC-93-Mechanismus, ein Mechanismus des Statewide Air Pollution Research Centers (SAPRC) der Universität Kalifornien

Der SAPRC-Mechanismus ist ein sogenannter "lumped-molecule-general"-Mechanismus, bei dem die Kohlenwasserstoffe in Molekularklassen mit ähnlicher Struktur und ähnlicher Reaktivität zusammengefaßt und durch verallgemeinerte Spezies, die aus den verschiedenen in einer Klasse enthaltenen Kohlenwasserstoffen gebildet werden, repräsentiert werden (Carter, 1990, 1996). Der von Systems Applications Inc. in den USA entwickelte Carbon-Bond-IV-Mechanismus (CBM-IV) ist ein "lumped-structure"-Mechanismus, bei dem die Kohlenwasserstoffe in symbolische Gruppen entsprechend den Bindungseigenschaften der C-Atome aufgeteilt werden (Gery et al., 1989). Beide Mechanismen wurden in etwas älteren Versionen bereits im REM3-Modell verwendet. In der neuen Modellversion REM/CALGRID enthalten beide Mechanismen die von Carter (1996) entwickelte 1-Produkt-Isopren-Chemie. Der CBM-IV-Mechanismus in REM/CALGRID entspricht der im CMAQ-Modellsystem der US EPA verwendeten Form (Gipson and Young, 1999).

Als numerischer Lösung wird der QSSA-Algorithmus verwendet. Die Implementierung des Lösers wurde direkt vom CALGRID-Modell übernommen (Yamartino et al., 1992).

2.3. Die Aerosolbehandlung

2.3.1. Überblick

Neben den klassischen Luftschadstoffen betrachtet die neue EU-Rahmenrichtlinie auch Aerosole in dem Größenbereich kleiner 10 µm (PM10). Die Modellierung von PM10 ist aus vielfältigen Gründen noch nicht auf dem Entwicklungsstand der Modellierung klassischer Schadstoffe wie SO_x, NO_x und Ozon. In diesem Kapitel wird zuerst ein kurzer Überblick gegeben zum gegenwärtigen Stand der Aerosolmodellierung. Danach erfolgt die Beschreibung der für REM/CALGRID gewählten Vorgehensweise. In Anbetracht der Bedeutung von PM2.5-Aerosolen, die als Leitsubstanz bei der US-amerikanischen Grenzwertbetrachtung dienen und möglicherweise auch in der Europäischen Union nach Revision der PM10-Richtlinie in 2003 die PM10-Aerosole ersetzen werden, wird im Folgenden auch die Modellierung von PM2.5-Aerosolen betrachtet.

2.3.2. PM2.5- und PM10-Messungen

Messungen in Deutschland und auch den meisten anderen europäischen Ländern liegen in großer Zahl nur für Gesamtstaub (TSP), in geringerer Anzahl für PM10 und in sehr geringer Anzahl für PM2.5 vor. Die erfasste Masse stellt dabei die Summe aus den Beiträgen chemisch sehr unterschiedlicher Aerosole dar.

PM2.5 besteht hauptsächlich aus

- Sulphat, Nitrat und Ammonium (anorganische sekundäre Aerosole, die in der Atmosphäre aus anthropogenen Primär-Emissionen gebildet werden, ca. 50% der Gesamtmasse von PM2.5)
- Organischen Aerosolen (anthropogene als auch biogene sekundäre Aerosole, ca. 25% der Gesamtmasse von PM2.5)
- Primären Aerosolen (Elementarer Kohlenstoff, Ruß, ca. 25% der Gesamtmasse von PM2.5)

PM10 umfasst die gesamte PM2.5-Masse, die ca. 60% bis 70% der gesamten PM10-Masse stellt. Die Partikel größer 2.5 μm sind hauptsächlich primär emittierte Aerosole aus anthropogenen und natürlichen Quellen (See-Salz, Pollen, aufgewirbelter Bodenstaub). Insgesamt besteht die PM10-Masse zu ca. 50% aus primären Aerosolen.

2.3.3. Die Modellierung von PM10 und PM 2.5

Eine dem Problem angemessene Modellierung der Entstehung und Ausbreitung von Aerosolen kann nur unter folgenden Randbedingungen erfolgen:

Betrachtung aller Raumskalen, beginnend von der globalen/hemisphärischen über die kontinentale/nationale zu der urbanen bis zur lokalen Skala auf Straßenschluchtniveau zur Analyse sog. „hot-spots“.

Die physikalisch-chemischen Prozesse der Aerosolbildung erzwingen eine zeitliche Auflösung in der Größenordnung von einer Stunde, die Grenzwertbetrachtung der EU-Richtlinien, die auf Tages- und Jahreswerten beruht, erfordert Berechnungen über einen Zeitraum von einem bis mehrere Jahre mit einer Auflösung von einer Stunde.

Zur Erfassung der Beiträge einzelner Verursachergruppen an der Gesamtmasse der primären und sekundären Aerosole muss die Entstehung und Ausbreitung aller Aerosole betrachtet werden, die einen relevanten Anteil an der Gesamtmasse stellen. In Anbetracht dieser Randbedingungen hat sich allgemein die Ansicht durchgesetzt, dass von der globalen bis zur urbanen Raumskala nur Eulersche Gittermodelle die geeigneten Modellierungsinstrumentarien sein können. Lediglich für die lokale Skala können auch einfache Modelle, wie z.B. das zweidimensionale Straßenschluchtmödell CPB, eingesetzt werden, da in der kleinsten Raumskala die chemisch-physikalischen Prozesse nur eine untergeordnete Rolle spielen. Allerdings müssen solche Modelle auch für Jahresberechnungen auf Stundenbasis geeignet sein.

Im Rahmen dieses Vorhabens kommt demnach auch ein solches Gittermodell zum Einsatz. Das REM/CALGRID-Modell wurde auf die speziellen Anforderungen von Jahresrechnungen unter Beibehaltung stündlicher Auflösung ausgerichtet. In der praktischen Anwendung bedeutet dies, dass insbesondere für die sehr aufwendige Aerosolmodellierung die physikalisch-chemischen Parametrisierungen so gewählt wurden, dass einerseits eine dem Problem angemessene Darstellung der relevanten Prozesse gewährleistet ist und andererseits der Rechenzeitbedarf der Modelle eine Anwendung auf Zeiträume von einem oder von mehreren Jahren erlaubt. Dies unterscheidet die hier verwendeten Modelle von Modellen wie dem EURAD-Modell (Fries et al., 2002), in dem der gegenwärtige Stand des Wissens im Sinne einer Grundlagenforschung umgesetzt ist, wodurch die praktische Anwendbarkeit eher in den Hintergrund rückt.

Die gegenüber dem EURAD-Modell einfacheren Modellierungsansätze des REM/CALGRID-Modells betreffen hauptsächlich die Behandlung der Wolken, die damit verbundene heterogene Chemie und vor allem die Aerosolbildung. Während EURAD die Nassphasenprozesse sehr detailliert betrachtet, begnügt sich REM/CALGRID mit einfachen Auswaschansätzen. Das EU-RAD'sche Aerosolmodul simuliert den dynamischen Übergang von Spezies aus der Gasphase in

die Aerosolphase. In dem weiter unten beschriebenen Aerosolmodul von REM/CALGRID wird dagegen immer von einem Gleichgewichtszustand zwischen Aerosol- und Gasphase ausgegangen. Es sei dabei angemerkt, dass das Aerosolmodul von REM/CALGRID aus dem komplexeren MADE/MARS-Modul des EURAD-Modells abgeleitet wurde. In diesem Modul werden nur die anorganischen Aerosole behandelt. Insgesamt muss man aber auch bei den komplexeren Ansätzen zur Aerosolmodellierung im Auge behalten, dass die Kenntnisse über die Aerosolbildung immer noch große Lücken aufweisen.

Dies gilt auch für die zur Aerosolmodellierung benötigten Emissionsdaten. Die Güte der primären Aerosolemissionen ist geringer als diejenige der anderen Stoffe. Primäremissionen, die zu organischen Aerosolen führen, stehen nur zum Teil zur Verfügung (z.B. Isoprene und Terpene). Die Modellierung dieser Aerosole ist daher zur Zeit noch unvollständig. Emissionen größerer Partikel, wie z.B. Staubaufwirbelung oder See-Salz sind noch nicht in den Datenbasen enthalten, da diese Emissionen zum Teil stark von den meteorologischen Bedingungen und der Beschaffenheit des Untergrunds abhängig sind. Hier ist noch weitere Entwicklungsarbeit erforderlich.

Ein physikalisch-chemischer Überblick zur Bildung von Aerosolen in der Atmosphäre ist in Schaap (2000) zu finden.

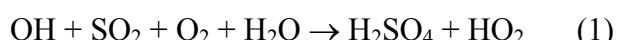
2.3.4. Das Aerosolmodul in REM/CALGRID

Das in REM/CALGRID integrierte Aerosolmodul ist ein sog. Gleichgewichtsmodul, d.h. es wird immer von einem thermodynamischen Gleichgewichtszustand zwischen der Aerosol- und der Gasphase ausgegangen. Dynamische Prozesse, die zur Größenänderung von Aerosolen beitragen, wie die Koagulation und die Kondensation, werden nicht betrachtet. Dieses Aerosolmodul, das lediglich die anorganischen Sulphat-, Nitrat- und Ammoniumaerosole betrachtet, ist ein Teil des komplexeren MADE-Aerosolmoduls, das in EURAD verwendet wird (Ackermann et al., 1995, 1998). Das Modul wurde in einer von Schaap (2000) leicht verbesserten Version von der TNO übernommen. Im Folgenden wird kurz die Funktionsweise des Moduls beschrieben. Details können in Schaap (2000) gefunden werden.

Die Bildung sekundärer Aerosole wird durch chemische Reaktionen in der Gasphase ausgelöst. Eine wichtige Aerosolquelle ist die Neutralisierung von gasförmiger Schwefelsäure und Salpetersäure durch Ammoniak. Dabei entstehen Ammoniumbisulphat- und Ammoniumnitrataerosole. Konzentrationen und Phasenzustand der Aerosole sind dabei eine Funktion der Konzentrationen der Reaktionspartner, der Feuchte und der Temperatur. Die in dem Modul (und der Gasphasenchemie) behandelten Aerosolprozesse sind:

Schwefelsäure- bzw. Sulfatbildung:

H_2SO_4 entsteht aus der Oxidationskette des Schwefeldioxids initiiert durch das OH-Radikal:



Wegen seines niedrigen Dampfdrucks ist die Gasphasenkonzentration H_2SO_4 sehr niedrig. Die gebildete Schwefelsäure kondensiert sofort oder reagiert mit einer Base. Nahezu das gesamte oxidierte Schwefeldioxid wird dadurch zu Sulfataerosol. Das leicht lösliche SO_2 oxidiert auch in Wolkenwasser. Die in den Wolkentröpfchen ablaufenden Nassphasenreaktionen tragen wesentlich zu den Sulfatkonzentrationen bei. Die dominierenden Nassphasenoxidationsmittel sind die in der Gasphase gebildeten Peroxide und Ozon sowie O_2 in der Gegenwart der Katalysatoren Eisen und Mangan. Die Entstehung von Sulfat aus der Oxidation des Schwefeldioxids mit dem OH-Radikal wird im Gasphasenmechanismus simuliert. Die Nassphasenreaktionen werden in REM/CALGRID nicht explizit modelliert sondern durch eine simple Reaktion erster Ordnung parametrisiert.

Aerosolchemie

Wie schon ausgeführt beruht das Aerosolmodul auf der Annahme eines thermodynamischen Gleichgewichts zwischen Gasphase und Aerosolphase ohne Berücksichtigung der Größenverteilung der Aerosole. Folgende Reaktionen werden berücksichtigt:



(Index s: fester Phasenzustand, Index aq: flüssiger Phasenzustand)

Ammoniak reagiert mit der Schwefelsäure. In diesem Reaktionsschritt wird Sulfataerosol gebildet. Diese Reaktion ist irreversibel, d.h. das an das Sulfat gebundene Ammoniak verbleibt in der Aerosolphase. Wird das gesamte zur Verfügung stehende Ammoniak in den Reaktionen (2) und (3) verbraucht, ist die Aerosolbildung in dem Modul beendet. Bleibt noch Ammoniak übrig, kommt es zu folgender Gleichgewichtsreaktion zwischen Ammoniak und Salpetersäure wodurch das Nitrataerosol gebildet wird:



Reaktion (4) ist reversibel, d. h. das Ammoniak kann wieder freigesetzt werden und damit für weitere Reaktionen zur Verfügung stehen. Das Überschussammoniak wird freies Ammoniak genannt, da es nicht irreversibel an das Sulfataerosol gebunden ist. Den obigen Gleichungen kann man entnehmen, dass das Nitrataerosol nur gebildet werden kann, falls das Verhältnis Ammoniak/Sulfat größer als zwei ist.

Ob es überhaupt zur Nitratbildung kommt und ob und wie viel Ammoniak dann wieder freigesetzt werden kann, hängt von der Gleichgewichtskonstante der Reaktion (4) ab, die eine Funktion der Feuchte und der Temperatur ist. Ein weiterer wichtiger Parameter ist der Luftfeuchtwert RH_d (Relative Humidity of deliquescence), bei dem das Aerosol seine Phase wechselt (flüssig oder fest).

Im Aerosolmodul werden damit grundsätzlich zwei Zustände unterschieden:

- Verhältnis von Ammoniak zu Sulfat größer zwei
- Verhältnis von Ammoniak zu Sulfat kleiner zwei

Im Zustand a) ist das gesamte Sulfat in $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (s, aq) gebunden. Das Überschussammoniak und die Salpetersäure stehen im Gleichgewicht mit dem Ammoniumnitrat NH_4NO_3 (s, aq).

Im Zustand b) steht nicht genug Ammoniak zur Verfügung, um die gesamte Schwefelsäure zu neutralisieren. Die Nassphase der Aerosole ist daher sauer. Es wird kein Ammoniumnitrat gebildet wodurch die Salpetersäurekonzentration in der Gasphase höher sein wird als im Zustand a). Dieser Effekt wird noch verstärkt, da HNO_3 bei niedrigeren pH-Werten schlechter löslich ist.

Eine detaillierte Diskussion der beiden Zustände einschließlich der Anwendung des Moduls in einem Boxmodell kann in Schaap (2000) gefunden werden.

Die sekundären Aerosole stellen nur einen Teil des PM10, das alle Partikel mit einem Durchmesser von weniger als 10 μm umfasst, unabhängig von deren chemischen Zusammensetzung, deren Entstehungsgeschichte oder deren Ursprung. Da die Aerosolbehandlung in REM/CALGRID relativ einfach gehandhabt wird und viele der chemischen und physikalischen Prozesse vernachlässigt werden müssen, um den Charakter eines operationell einsetzbaren Langfristmodells nicht zu verlieren, setzt sich PM10 im Modell nur aus relativ wenigen Spezies zusammen. Die Emissionsdatenbasis liefert die primären PM10-Emissionen aufgeteilt in zwei Kategorien, PM10 gesamt und Partikel mit einem Durchmesser kleiner 2.5 μm (PM2.5). Diese

Emissionen werden den beiden Modellspezies $PMCO_{prim} = PM10 - PM2.5$ und $PM25_{prim} = PM2.5$ zugeordnet.

Der photochemische Gasphasenmechanismus enthält die Gasphasenoxidation des Schwefeldioxids zu Schwefelsäure einschließlich einer einfachen Parametrisierung der Nassphasenoxidation.

Das Aerosolmodul behandelt die thermodynamischen Gleichgewichtsreaktionen der Sulfat-, Nitrat- und Ammoniumaerosolkomponenten SO_4 , NO_3 , NH_4 , in Abhängigkeit von Temperatur, Feuchte und den Gasphasenkonzentrationen von Salpetersäure, Schwefelsäure und Ammoniak.

Damit setzt sich das PM10 insgesamt aus 5 Komponenten zusammen:

$$PM10 = PM25_{prim} + PMCO_{prim} + SO_4(A) + NO_3(A) + NH_4(A)$$

Sekundäre organische Aerosole (SOA), die durch die Kondensation von Kohlenwasserstoffoxidationsprodukten biogenen und anthropogenen Ursprungs entstehen, werden in der gegenwärtigen Modellversion nicht betrachtet.

Alle PM10-Komponenten werden transportiert und unterliegen der nassen und trockenen Deposition. Durch die Aerosolbehandlung erhöht sich die Anzahl der zeitabhängig behandelten Spezies um die 5 neuen Partikel-Spezies $PM25_{prim}$, $PMCO_{prim}$, $SO_4(A)$, $NO_3(A)$, $NH_4(A)$ sowie um das Ammoniak.

2.4. Das trockene Depositionsmodul in REM/CALGRID

2.4.1. Die Widerstandsanalogie

REM/CALGRID enthält ein detailliertes Modul zur Berechnung der Entfernung von Schadstoffen aus der Atmosphäre durch trockene Deposition. Die trockene Ablagerung von Gasen und Partikeln erfolgt durch Transport aus der atmosphärischen Grenzschicht zur Oberfläche, wo die Schadstoffe aufgenommen werden. Die Entfernung der Luftbeimengungen aus der Atmosphäre wird mit Hilfe der sogenannten Depositionsgeschwindigkeit v_d beschrieben, die als das Verhältnis des in Bodennähe höhenkonstanten Flusses der Luftbeimengung zu deren Konzentration definiert ist:

$$v_d = F_i / c_i(z)$$

mit

F_i Fluß der Luftbeimengung i zum Boden;

v_d Depositionsgeschwindigkeit

$c_i(z)$ Konzentration der Luftbeimengung i in der Höhe z

Konzeptionell wird die trockene Ablagerung in REM/CALGRID damit analog zum Stromfluss durch einen elektrischen Schaltkreis über Widerstandsgesetze behandelt. Der Transport von Gasen durch die bodennahe Atmosphäre zu einer Oberfläche wird danach durch einen "atmosphärischen Widerstand" und einen "Oberflächenwiderstand" bestimmt. Der atmosphärische Widerstand setzt sich zusammen aus dem turbulenten Widerstand, der vom Turbulenzzustand der bodennahen Atmosphäre abhängt, und dem quasi-laminaren oder viskosen Widerstand, der eine Funktion des Zustandes der Oberfläche und der molekularen Diffusivität der Luftbeimengung ist. Der Oberflächenwiderstand charakterisiert den Transfer durch die Oberfläche von Pflanzen, Böden oder Wasser und wird durch Größen wie dem Öffnungszustand der Stomata, Reifegrad

der Pflanzen und der Feuchtigkeit der Unterlage gekennzeichnet. Die Summe dieser Widerstände ist gleich dem Reziprokwert der Depositionsgeschwindigkeit:

$$R = R_a + R_d + R_c = 1 / v_d$$

mit

R_a turbulenter Transferwiderstand,

R_d quasi-laminarer Transferwiderstand,

R_c Oberflächenwiderstand

Bei der trockenen Deposition von Partikeln muß die Sedimentationsgeschwindigkeit v_g berücksichtigt werden, womit sich für den Gesamtwiderstand der Deposition von Aerosolen folgender Ausdruck ergibt:

$$R = (R_a + R_d + R_a R_d v_g) + 1 / v_g = 1 / v_d$$

Für Partikel wird der Oberflächenwiderstand Null gesetzt, d.h. erreicht ein Partikel die Oberfläche, wird es dort aufgenommen.

Im Rahmen dieses Vorhabens wurden die Parametrisierungsansätze für die Widerstände in REM/CALGRID an die neuesten Erkenntnisse auf diesem Gebiet angepasst.

2.4.2. Atmosphärische Widerstände

Die folgenden Ansätze zur Bestimmung der Widerstände beruhen im Wesentlichen auf der in Padro (1993) beschriebenen Vorgehensweise. Die Berechnung des turbulenten Transferwiderstands erfolgt für Gase und Partikel aus der Monin-Obuchov-Theorie in Analogie zur Bestimmung der turbulenten Flüsse von Impuls, Wärme und Feuchte in der Prandtl-Schicht. Eingangsgrößen für die Berechnungen sind die Rauhigkeitslänge z_0 , die Monin-Obuchov-Länge L und die Schubspannungsgeschwindigkeit u_* .

Der turbulente atmosphärische Widerstand R_a gegen den Transport einer Luftbeimengung i durch die Prandtl-Schicht zum Boden lässt sich analog zum Wärmetransport aus der in der Prandtl-Schicht geltenden Beziehung zwischen dem Konzentrationsfluß und dem vertikalen Konzentrationsgradienten ableiten (Wesely und Hicks, 1977):

$$F_i = K_z \frac{\partial c_i}{\partial z} \quad \text{mit} \quad K_z = \frac{ku_* z}{\Theta_H \left(\frac{z}{L} \right)}$$

wobei Θ_H eine im diabatischen Fall auftretende Korrekturfunktion ist und k die von Karman-Konstante bezeichnet. Unter Verwendung der Beziehung $1 / R_a = F_i / c (Z_R)$ lässt sich durch Integration von der Höhe z_0 bis zur Referenzhöhe Z_R für R_a folgender Ausdruck ableiten

$$R_a = \frac{1}{u_* k} \left[\ln \left(\frac{z_R}{z_0} \right) - \Psi_h \right]$$

Ψ_H bezeichnet die integrierte Form der Stabilitätsfunktion Θ_H , die die Abweichungen vom neutralen Fall korrigiert. Dieser Korrekturfaktor ist Null im neutralen Fall, positiv unter labilen Bedingungen und negativ unter stabilen Bedingungen. Die Bestimmung dieses Korrekturfaktors erfolgt mit Hilfe der von Wesely und Hicks (1977) vorgeschlagenen Beziehungen:

$$\Psi_H = \exp \left[.598 + .39 \ln \left(-\frac{z_R}{L} \right) - .09 \ln^2 \left(-\frac{z_R}{L} \right) \right] \quad \text{für } -1 < \frac{z_R}{L} < 0$$

$$\Psi_H = 0 \quad \text{für } \frac{z_R}{L} = 0$$

$$\Psi_H = -5 \frac{Z_R}{L} \quad \text{für } 0 < \frac{z_R}{L} < 0$$

Da die Konzentration der untersten Modellschicht ein vertikales Mittel über die vertikale Ausdehnung der Schicht darstellt, müsste streng genommen auch der atmosphärische Widerstand als Schichtmittel bestimmt werden. Die Lösung des sich daraus ergebenden Integralausdrucks ist aber sehr rechenintensiv und kann nach den Untersuchungen von Pleim et al. (1984) durch Bestimmung des atmosphärischen Widerstands in folgender Referenzhöhe approximiert werden (siehe auch Padro, 1993):

$$Z_R = \frac{Z_o - Z_u}{e} + Z_u$$

- Z_o Obergrenze der 1. Modellschicht,
- Z_u Untergrenze der 1. Modellschicht (1 m),
- e Basis des natürlichen Logarithmus

Der Transport durch die laminare Grenzschicht direkt an einer Oberfläche erfolgt für Gase durch molekulare Diffusion. Der quasi-laminare Transferwiderstand für Gase wird als Funktion der Schubspannungsgeschwindigkeit u_* und des Verhältnisses der kinematischen Zähigkeit γ von Luft zur molekularen Diffusivität D_i des betrachteten Gases i in Luft (Schmidt-Zahl Sc) bestimmt (Hicks, 1982):

$$R_d = \frac{2}{k} \frac{Sc^{\frac{2}{3}}}{u_*}$$

Für Partikel ist der Transport durch die laminare Grenzschicht abhängig vom Durchmesser. Bei einem Durchmesser kleiner $0,1 \mu\text{m}$ wirkt die Brownsche Molekularbewegung (Nukleationsmodus). Im Bereich größer $1,0 \mu\text{m}$ wird die Deposition hauptsächlich von der Sedimentation und der Trägheitsabscheidung bestimmt (Dispersionsmodus). In dem Zwischenbereich von $0,1 \mu\text{m}$

bis $1,0 \mu\text{m}$ (Akkumulationsmodus) halten sich die Beiträge von Diffusion und Trägheitseffekten die Waage, wobei allerdings der Transfer in diesem Bereich am geringsten ist.

Zur Berücksichtigung der gemeinsamen Wirkung von diffusiven und Trägheitseffekten wird der laminare Widerstand bei Partikeln als Funktion der Schmidtzahl Sc und der Stokeszahl St berechnet (Pleim et al., 1984).

Die Stokeszahl St ist definiert als

$$St = \frac{v_g}{g} \frac{u_*^2}{\nu}$$

γ	kinematische Zähigkeit der Luft	$[\text{m}^2/\text{s}]$
v_g	Sedimentationsgeschwindigkeit	$[\text{m/s}]$
g	Erdbeschleunigung	$[\text{m/s}^2]$

Die Sedimentationsgeschwindigkeit v_g wird in Abhängigkeit von den Eigenschaften des Partikels unter der Annahme einer Kugelform aus der Stokes-Gleichung berechnet:

$$v_g = \frac{[d_p^2 g (\rho_p - \rho_L) C]}{18 \nu}$$

d_p	Partikel Durchmesser [m]
ρ_p	Partikel Dichte $[\text{g/m}^3]$
ρ_L	Luft Dichte $[\text{g/m}^3]$
C	Cunningham Korrekturfaktor für kleine Partikel

$$C = 1 + \left(\frac{2\lambda}{d_p} \right) \left(a_1 + a_2 \exp \left[-a_3 \frac{d_p}{\lambda} \right] \right)$$

$$\lambda \quad \text{mittlere freie Weglänge von Luftmolekülen } (6.53 * 10^{-6} \text{ cm}) \\ a_1 = 1.257; a_2 = 0.4; \quad a_3 = 0.55$$

Da die Partikel polydispers sind, d.h. verschiedene Größen besitzen, wird die Fallgeschwindigkeit für eine Anzahl von Größenkategorien berechnet und unter der Annahme einer Normalverteilung der Teilchengrößen aus diesen einzelnen Fallgeschwindigkeiten eine gewichtsgemittelte Gravitationsgeschwindigkeit bestimmt. Für Sulfat und die anderen anorganischen Aerosole wird dabei von einem mittleren Durchmesser von $0.5 \mu\text{m}$ mit einer Standardabweichung von $2 \mu\text{m}$ ausgegangen.

Damit ergibt sich für den laminaren Widerstand bei Partikeln folgender Ausdruck:

$$R_d = \left[Sc^{-\frac{2}{3}} + 10^{-\frac{3}{St}} \right]^{-1} u_*^{-1}$$

2.4.3. Oberflächenwiderstände

Die hier beschriebene Formulierung der Oberflächenwiderstände folgt im Wesentlichen der Vorgehensweise von Erisman und Van Pul (1994). Die Berechnung des Oberflächenwiderstandes für Gase erfolgt getrennt für Pflanzen, Böden und Wasser. Für Partikel ist der Oberflächenwiderstand Null, d.h. erreicht das Partikel den Boden, wird es sofort abgelagert.

Der Oberflächenwiderstand R_c für Gase über einer mit Pflanzen bedeckten Einheitsfläche („Big leaf model“) setzt sich zusammen aus den Widerständen gegen die Ablagerung an den nassen oder trockenen Blattoberflächen sowie am Boden und kann durch folgende parallel wirkende Einzelwiderstände beschrieben werden:

$$R_c = \left[\frac{1}{Rst + Rm} + \frac{1}{Rcut} + \frac{1}{Rsoil + Rinc} \right]^{-1}$$

Mit

- Rst Diffusionswiderstand durch die Stomata-Öffnung von Pflanzenblättern und Nadeln
- Rm Mesophyllwiderstand, der bei der Lösung und dem Transport von Gasen im wässrigen Milieu der Zellwand und im Protoplasma entsteht
- Rinc Widerstand im Pflanzenbestand gegen den Transport von Luft in Richtung Boden
- Rcut Widerstand gegen die Ablagerung oder Zerstörung auf der Blattoberfläche
- Rsoil Widerstand gegen die Ablagerung oder Zerstörung am Boden oder an Wasserflächen (Rw bei Wasser, Rsnow bei Schneebedeckung)

Stomata- und Mesophyllwiderstandwiderstand

Der Stomatawiderstand Rst wird für Wasserdampf als Funktion der Globalstrahlung Q und der Oberflächentemperatur Ts nach einer Parametrisierung von Wesley (1989) und Baldocchi (1988) bestimmt:

$$Rst = Ri \cdot \{ 1 + (200/(Q+0.1))^2 \} \cdot \{ 400/(Ts(40-Ts)) \}$$

mit

- Q Globalstrahlung in W/m^2
- Ts Oberflächentemperatur in $^{\circ}\text{C}$

Der Referenzwiderstand Ri (s/m) kann der Tabelle 1 entnommen werden. Der für Wasserdampf geltende Widerstand Rst wird für die einzelnen Schadstoffe mit Hilfe des Verhältnisses des Diffusionskoeffizienten des betreffenden Gases zum Diffusionskoeffizienten von Wasser modifiziert und ergibt zusammen mit dem Mesophyllwiderstand Rm den gesamten Stomatawiderstand des betreffenden Gases:

$$Rst(\text{Gas}) = Rst \cdot D(\text{H}_2\text{O})/D(\text{Gas}) + Rm$$

Der Mesophyllwiderstand Rm wird für alle Gase Null gesetzt, da keine genauen Kenntnisse vorliegen.

Widerstand Ri in s/m	(1)	(2)	(3)	(4)
Landnutzungsklasse				
Urban areas	9999	9999	9999	9999
Arable land	60	120	9999	9999
Irrigated arable land	60	120	9999	9999
Permanent crop	60	120	9999	9999
Pasture	120	240	9999	9999
Natural grassland	120	240	9999	9999
Shrubs and herbs	150	300	250	400
Coniferous forest	130	250	250	400
Mixed forest	100	190	500	800
Deciduous forest	70	140	9999	9999
Bare soil	9999	9999	9999	9999
Permanent ice and snow	9999	9999	9999	9999
Wetlands	9999	9999	9999	9999
Inland waters	9999	9999	9999	9999
Sea	9999	9999	9999	9999

Tabelle 1: Die für die verschiedenen Landnutzungsklassen in REM/CALGRID benutzten Werte für den Referenzwiderstand Ri in Abhängigkeit von 4 Wachstumsphasen: (1) Hauptwachstumsphase, (2) Frühe Wachstumsphase, (3) Kein Wachstum ohne Schnee, (4) Kein Wachstum mit Schnee

Interner Widerstand des Pflanzenbestands

Die Deposition im Pflanzenbestand erfolgt an den Pflanzen selbst und am Boden unter dem Bestand. Der Transport von Schadstoffen zum Boden erfolgt im Pflanzenbestand über Wirbel mittlerer Größe, die die Vegetation durchdringen können. Der aerodynamische Widerstand R_{inc} im Pflanzenbestand wird mit Hilfe des Blattflächenindex LAI parametrisiert:

$$R_{inc} = b \cdot LAI \cdot h/u_*$$

mit

u_* Schubspannungsgeschwindigkeit in m/s

LAI Blattflächenindex (siehe Tabelle 2)

b empirische Konstante 8 m^{-1}

h Vegetationshöhe

Die Vegetationshöhe wird für Wälder auf 20 m, für Pflanzenwuchs und Grasland auf 1 m gesetzt.

Kutikulawiderstand

Der Widerstand der Kutikula, der die externe Deposition direkt auf die Epidermis steuert, spielt insbesondere nachts eine Rolle, wenn die Stomata-Öffnungen geschlossen sind. Bei nasser

Blattoberfläche wird dieser externe Widerstand für wasserlösliche Gase sehr klein, so dass die externe Deposition die Gesamtdeposition dominiert.

SO₂

Für SO₂ erfolgt die Parametrisierung des externen Widerstands für alle Vegetationstypen nach den Ergebnissen von Messungen in Heidekraut (Erisman und Van Pul, 1994):

Rcut=10 s m⁻¹ während oder kurz nach Regen, in allen anderen Fällen:

Rcut = 2500 exp {-0.0693 · rh} sm⁻¹ für relative Feuchte rh < 80.0%

Rcut = 0.58 · 10¹² exp {-0.278 · rh} sm⁻¹ für relative Feuchte rh > 80.0%

Diese Beziehungen werden für alle Temperaturen größer -1°C angewandt. Unter dieser Temperatur wird angenommen, dass die Deposition abnimmt und Rcut wird dann auf 500 s m⁻¹ gesetzt.

O₃

Die Aufnahme von Ozon durch die Vegetation erfolgt hauptsächlich über die Stomataöffnungen. Der Kutikelwiderstand ist deutlich größer und wird hier für trockene und nasse Blattoberflächen auf

Rcut= 1500 s m⁻¹

gesetzt.

NO und NO₂

Die Deposition von NO ist insgesamt sehr gering und wird daher vernachlässigt. NO₂ wird im Wesentlichen über die Stomataöffnungen aufgenommen. Die externe Ablagerung auf der Blattoberfläche wird durch eine Widerstand von

Rcut = 2000 s m⁻¹

für trockene und nasse Blätter kontrolliert.

HNO₃

Die Deposition von HNO₃ wird durch den atmosphärischen Widerstand kontrolliert. Der Kutikelwiderstand wird aus rechnerischen Gründen auf den Mindestwert von

Rcut = 10 s m⁻¹

für trockene und nasse Blätter gesetzt.

NH₃

Ammoniak wird über natürlichen Flächen sowohl deponiert als auch emittiert. Insbesondere über gedüngten Ackerland oder Viehweiden kann der Ammoniakfluss in die Atmosphäre gerichtet sein. Über Wäldern überwiegt die Deposition. Das gegenwärtige Wissen über die sich zum Teil kompensierenden Flüsse ist so unzureichend, dass eine Quantifizierung auf Basis der vorhandenen Datenbasis (Landnutzung) nicht möglich ist. Deshalb wird hier der nach oben gerichtete Emissionsfluß aus Böden nur über die direkten NH₃-Emissionen berücksichtigt. Der Kutikelwiderstand wird auf

Rcut = 10 s m⁻¹

für trockenen und nassen Pflanzenbewuchs gesetzt.

Für alle anderen Spezies wird keine Kutikeldeposition betrachtet.

Die Nässe von Oberflächen infolge Taubildung wird in der gegenwärtigen Modellversion noch nicht berücksichtigt. Bei Regen wird angenommen, dass durchschnittlich 75% der Blätter mit Wasser bedeckt sind.

Deposition auf Wasseroberflächen

Der Transport von Gasen durch eine Luft-Wasser-Grenzfläche wird durch zwei in Reihe wirkende Widerstände, den Gasphasen- und den Nassphasenwiderstand bestimmt, wobei bei den meisten Gasen einer der beiden Widerstände dominiert. Der Nassphasenwiderstand ist die dominierende Einflussgröße bei allen schlecht wasserlöslichen Gasen wie z.B. O₃ oder NO. Bei schnell löslichen Gasen wie SO₂ oder H₂O₂ ist der Nassphasenwiderstand verschwindend gering und die Depositionsraten wird durch den Gasphasenwiderstand, d. h. die atmosphärischen Widerstände, kontrolliert.

Der Nassphasenwiderstand r_w durch eine Luft-Wasser-Grenzfläche kann in Abhängigkeit von der Löslichkeit der Gase in Wasser berechnet werden (Sehmel, 1980):

$$R_w = \frac{1}{2.54 \times 10^{-4} H T_s u_*}$$

mit

- H Henry-Konstante, ein Maß für die physikalische Löslichkeit von Gasen, das die Proportionalität der Konzentration des Spurenstoffes im Tropfen zu dessen Partialdruck in der Gasphase angibt
- u_* Schubspannungsgeschwindigkeit in m/sec.
- T_s Temperatur an der Oberfläche in K

Deposition auf Böden

SO₂

Der Bodenwiderstand für SO₂ wird auf 500 s m⁻¹ gesetzt. Bei nassen Böden verringert sich der Widerstand auf 10 s m⁻¹. Bei Schneebedeckung wird ein höherer Widerstand von 500 s m⁻¹ angesetzt.

O₃

Der Bodenwiderstand von Ozon hängt ab vom Bodentyp und dem Wassergehalt des Bodens. Wegen der schlechten Wasserlöslichkeit wird Ozon auf nassen Oberflächen nur wenig zerstört. Bei trockenen Böden wird der Widerstand auf 100 s m⁻¹ gesetzt, für nasse Böden oder Schneebedeckung wird ein Wert von 1500 s m⁻¹ gewählt.

NO und NO₂

Bei NO überwiegt die Emission von Böden die Deposition. Daher wird NO-Deposition vernachlässigt. Der Bodenwiderstand für NO₂ wird auf 1500 s m⁻¹ gesetzt. Bei nassen Böden und Schneebedeckung erhöht sich der Widerstand auf 2000 s m⁻¹.

HNO₃

Der Bodenwiderstand von HNO₃ ist sehr klein und wird daher für alle Bodenzustände auf einen Wert von 10 s m⁻¹ gesetzt.

NH₃

Die Deposition von NH₃ auf Böden ist ähnlich derjenigen von SO₂. Der Bodenwiderstand wird für trockene Böden auf 100 s m⁻¹ gesetzt. Für nasse Flächen wird ein Wert von 10 s m⁻¹, über Schnee ein Wert von 500 s m⁻¹ gewählt.

Alle zur Berechnung der Widerstände notwendigen Oberflächendaten wie Rauhigkeitslänge (über Land) z_0 oder der Blattflächenindex LAI müssen als Funktion einer Anzahl von Landnutzungsklassen und der Wachstumsphasen für das gesamte Modellgebiet vorgegeben werden (Tabelle 2, Tabelle 3). Über Wasseroberflächen wird die Rauhigkeitslänge z_0 im Modell selbst als Funktion der Windgeschwindigkeit berechnet. Die mittlere Depositionsgeschwindigkeit in einer Gitterfläche ergibt sich dann aus der Berechnung der Depositionsgeschwindigkeit für jede auftretende Landnutzungsklasse und anschließender anteilsgewichteter Mittelung.

Die im REM/CALGRID verwendeten Landnutzungskategorien werden aus der PELINDA-Landnutzungsdatenbasis (Builtjes et al., 2002) übernommen. Die Definition der 10 Klassen kann den Tabelle 1 bis 3 entnommen werden. Zur Eindeutigkeit wurden die englischen Bezeichnungen beibehalten. Tabelle 4 zeigt die monatliche Zuordnung der Wachstumsphasen.

Blattflächenindex LAI				
Landnutzungsklasse	(1)	(2)	(3)	(4)
Urban areas	0.3	0.2	0.05	0.01
Arable land	2.8	2.2	0.3	0.3
Irrigated arable land	2.8	2.8	2.8	0.3
Permanent crop	2.8	2.2	0.3	0.3
Pasture	3	0.5	0.3	0.3
Natural grassland	3	0.5	0.3	0.3
Shrubs and herbs	2.8	2.2	0.3	0.3
Coniferous forest	5.2	5.2	2.3	2.3
Mixed forest	4.5	3.3	2	2
Deciduous forest	3.5	2	1	1
Bare soil	0.01	0.01	0.01	0.01
Permanent ice and snow	0	0	0	0
Wetlands	0	0	0	0
Inland waters	0	0	0	0
Sea	0	0	0	0

Tabelle 2: Die für die verschiedenen Landnutzungsklassen in REM/CALGRID benutzten Werte für den Blattflächenindex LAI in Abhängigkeit von 4 Wachstumsphasen: (1) Hauptwachstumsphase, (2) Frühe Wachstumsphase, (3) Kein Wachstum ohne Schnee, (4) Kein Wachstum mit Schnee

Rauhigkeitslänge z_0 in m	(1)	(2)	(3)	(4)
Landnutzungsklasse				
Urban areas	1	1	1	1
Arable land	0.25	0.1	0.03	0.005
Irrigated arable land	0.25	0.1	0.03	0.005
Permanent crop	0.25	0.25	0.25	0.2
Pasture	0.03	0.03	0.03	0.005
Natural grassland	0.03	0.03	0.03	0.005
Shrubs and herbs	0.25	0.25	0.25	0.2
Coniferous forest	1.5	0.7	0.7	0.7
Mixed forest	1	1	1	1
Deciduous forest	1	1	1	1
Bare soil	0.005	0.005	0.005	0.005
Permanent ice and snow	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002
Wetlands	0.005	0.005	0.005	0.005
Inland waters	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002
Sea	0.0002	0.0002	0.0002	0.0002

Tabelle 3: Die für die verschiedenen Landnutzungsklassen in REM/CALGRID benutzten Werte für die Rauhigkeitslänge z_0 in Abhängigkeit von 4 Wachstumsphasen: (1) Hauptwachstumsphase, (2) Frühe Wachstumsphase, (3) Kein Wachstum ohne Schnee, (4) Kein Wachstum mit Schnee

Monat	Wachstumsphase
Januar	Kein Wachstum, Kein Schnee
Februar	Kein Wachstum, Kein Schnee
März	Kein Wachstum, Kein Schnee
April	Frühe Wachstumsphase
Mai	Frühe Wachstumsphase
Juni	Hauptwachstumsphase
Juli	Hauptwachstumsphase
August	Hauptwachstumsphase
September	Kein Wachstum, Kein Schnee
Oktober	Kein Wachstum, Kein Schnee
November	Kein Wachstum, Kein Schnee
Dezember	Kein Wachstum, Kein Schnee

Tabelle 4: Gegenwärtige zeitliche REM/CALGRID-Zuordnung der Wachstumsphasen zu den einzelnen Monaten. Diese Zuordnung gilt gegenwärtig für das gesamte REM/CALGRID-Gebiet.

2.5. Nasse Deposition

Die komplexen physikalischen Prozesse innerhalb ("in-cloud-scavenging") und unterhalb ("below-cloud-scavenging") von Wolken, die zur nassen Deposition führen, werden mit Hilfe einfacher Auswaschkoeffizienten parametrisiert. "In-cloud-scavenging" umfaßt alle innerhalb einer Wolke ablaufenden Prozesse wie Tröpfchenbildung durch Anlagerung von Wasser an Aerosolen und die Aufnahme von Spurenstoffen in Wolkentröpfchen. Die Effektivität der Spurenstoffaufnahme in Tropfen wird durch die Löslichkeit der Gase in Wasser sowie durch den pH-Wert und die chemische Zusammensetzung des Tropfens bestimmt. Die mögliche Dissoziation der Spurenstoffe und chemische Reaktionen in der Naßphase tragen zur weiteren Komplexität bei. Mit "below-cloud-scavenging" wird das Einfangen von Spurenstoffen durch fallende Hydrometeore unterhalb einer Wolke bezeichnet. Die Wirksamkeit dieses Prozesses wird im Wesentlichen bestimmt durch die Intensität des Niederschlags und die Größenverteilung der Regentropfen. Die gesamte mit dem Niederschlag am Boden deponierte Spurenstoffmenge setzt sich aus den Beiträgen dieser beiden Prozesse zusammen. Mit der Definition von Auswaschkoeffizienten werden alle zur nassen Deposition beitragenden Effekte in einer aus Messungen oder theoretischen Überlegungen abgeleiteten Größe zusammengefasst. Damit lässt sich die Nassdepositionsrate von Gasen und Aerosolen bestimmen aus dem Produkt des spurenstoffabhängigen Auswaschkoeffizienten und der Konzentration des betreffenden Spurenstoffes C_i in der Gasphase:

$$\frac{dC_i}{dt} = -\Lambda_i C_i$$

Die in REM/CALGRID verwendeten Auswaschkoeffizienten Λ_i werden für Gase in Abhängigkeit von der Löslichkeit des Gases mit Hilfe der Henry-Konstante H berechnet:

$$\Lambda_i = 3 \times 10^{-10} \cdot H \cdot R$$

R Regenintensität in mm/h.

Es wird angenommen, dass ein Niederschlagsereignis immer in allen Vertikalschichten des Modells auftritt.

Für Partikel werden konstante Auswaschkoeffizienten verwendet.

2.6. Berechnung der biogenen Emissionen

2.6.1. Biogene Kohlenwasserstoffemissionen

Biogene Emissionen werden in REM/CALGRID während des Modellaufes auf der Basis der Landnutzungsdaten, der Temperatur und der Einstrahlungsverhältnisse ständig berechnet.

Im REM3-Modell (Stern, 1994) wurden die biogenen NMVOC-Emissionen aus Wäldern mit einer von Veldt (1991) entwickelten Methodik berechnet. Dieses, auf dem Konzept der Biomassen basierende Verfahren verlangte neben den Anteilen von Nadel- und Laubbäumen in einer Gitterzelle als weiteren Parameter lediglich die Temperatur. Die Studien von Guenther (1993) und Guenther et al. (1994) zeigten aber, dass neben der Temperatur auch die Einstrahlungsbedingungen eine wichtige Rolle bei der Freisetzung von biogenen Kohlenwasserstoffen spielen. Das Konzept von Guenther (1993) und Guenther et al. (1994) wurde von Simpson et al. (1995) auf europäische Verhältnisse übertragen. Die in Simpson et al. (1995) beschriebene Vorgehensweise zur Bestimmung der biogenen Kohlenwasserstoffemissionen wurde in ihren wesentlichen Komponenten in REM/CALGRID implementiert. Zur Bestimmung der Terpenemissionen, die in Simpson et al. (1995) nicht behandelt wird, wird auf Informationen aus Simpson et al. (1999) und Guenther et al. (1995) zurückgegriffen.

Die gesamte biogene Kohlenwasserstoffemission einer Gitterzelle ist für jede Vegetationsgruppe, die Kohlenwasserstoffe emittiert, eine Funktion der standortabhängigen Biomasse, der Temperatur und der Einstrahlungsverhältnisse. Nach Pierce und Waldruff (1991) kann diese Emission aus folgender Beziehung berechnet werden:

$$E_i = \sum_{j=1}^m [A_j \times EF_{ij} \times ECF_{ij}(PAR, T)]$$

mit

E_i Emissionsrate der chemischen Spezies i pro Zeiteinheit und Gitterzelle

m Anzahl der Vegetationskategorien

A_j Fläche der Vegetationskategorie j in der betreffenden Gitterzelle

EF_{ij} Emissionsfaktor der Vegetationskategorie j für die die emittierte Spezies i, normiert auf 30°C und volle Einstrahlung

ECF_{ij} Korrekturfaktor zur Berücksichtigung der Temperatur- und Strahlungseinflüsse auf die Emission der Spezies i aus der Vegetationskategorie j

T Temperatur

PAR Photosynthetisch wirksame Einstrahlung

Bestimmung von A_j

Die Ableitung der biogenen Kohlenwasserstoffemissionen nach der obigen Beziehung verlangt als Grundlage einen Landnutzungskataster, der die prozentualen Anteile aller für die Kohlenwasserstoffemissionen relevanten Vegetationskategorien in jeder Gitterzelle des Rechengebiets enthält. Eine solche Gesamterhebung existiert seit kurzem für Teile Europas von Köble et al. (2001), die 115 verschiedene Baumarten in den EU-Ländern einem Raster von $1 \times 1 \text{ km}^2$ kategorisierten. Diese Datenerhebung konnte im Zeitrahmen dieses Vorhabens aber nicht mehr genutzt werden. Aus diesem Grunde kommt hier nur die in der von REM/CALGRID verwendeten PE-

LINDA-Landnutzungsdatenbasis enthaltenen Informationen zur Verwendung, die lediglich die Bedeckung einer Gitterzelle mit Nadel-, Laub oder Mischwald angibt.

Diese allgemeine Einteilung ist allerdings nicht ausreichend zur Ableitung biogener Kohlenwasserstoffemissionen, da die Emissionsfaktoren für spezifische Baumsorten sehr unterschiedlich sein können. Aus diesem Grunde werden von Simpson et al. (1995) zusätzlich die von Veldt (1989) erhobene länderspezifische Flächenbedeckung mit den Baumsorten Eiche, andere Laubbäume, Fichte und andere Nadelbäume verwendet. Wegen seines unterschiedlichen Emissionsverhaltens wird zusätzlich der im Mittelmeergebiet vorkommende Eichentyp (*Quercus Ilex*) getrennt von dem mitteleuropäischen Typ (*Quercus Robur*) behandelt. Aus demselben Grund wird der vor allem in Küstenregionen auftretende Fichtentyp *Picea Sitchensis* ebenfalls als Extrakategorie mitgeführt. Die prozentualen Anteile dieser 6 Baumsorten an der gesamten Waldfläche zeigt die Tabelle 5 für alle Länder im Modellgebiet. Innerhalb jedes Landes werden die in Tabelle 5 zusammengestellten nationalen Summen entsprechend der in der Landnutzungsdatenbasis enthaltenen regionalen Zuordnung von Laub- und Nadelwäldern verteilt.

Emissionsfaktoren EF_{ij} für die biogenen Kohlenwasserstoff-Emissionen

Die flächenbezogenen Emissionsfaktoren EF_{ij} werden berechnet aus dem Produkt der Biomassendichte und standardisierten Emissionsfaktoren, die für 30°C und volle Einstrahlungsverhältnisse bestimmt wurden. Die hier verwendeten Werte sind für die 6 Baumtypen in Tabelle 6 zusammengefasst.

Die biogenen Emissionen von Nutzpflanzen werden mit flächenbezogenen Emissionsfaktoren berechnet. Nach Veldt (1991) werden dazu für die Isoprenemissionen 8 $\mu\text{g C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ und für die Emission anderer Kohlenwasserstoffe 12 $\mu\text{g C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ angesetzt.

Korrekturfaktoren ECF_{ij}

Da die Emissionsfaktoren für die einzelnen Vegetationskategorien die Emissionen unter Normbedingungen (30°C und volle Einstrahlung) beschreiben, müssen sie bezüglich der aktuellen Temperatur- und Strahlungsverhältnisse korrigiert werden.

Der Korrekturfaktor ECF besteht aus den beiden Termen C_L und C_T :

$$ECF = C_L \cdot C_T$$

C_L bezeichnet den Korrekturfaktor für die Temperaturabhängigkeit, C_T den Korrekturfaktor für die Abhängigkeit der Emissionen von den Strahlungsbedingungen.

Die Korrekturfaktoren für die Isoprenemissionen lauten nach Simpson et al. (1995):

$$C_T = \frac{\exp\left[\frac{C_{T1}(T - T_s)}{RT_s T}\right]}{1 + \exp\left[\frac{C_{T2}(T - T_M)}{RT_s T}\right]}$$

$$C_L = \frac{\alpha C_{L1} L}{\sqrt{1 + \alpha^2 L^2}}$$

Der Terpen-Temperatur-Korrekturfaktor wird aus Pierce und Novak (1991) übernommen:

$$C_T = \exp[0.0739(T - 30)]$$

Eine Strahlungsabhängigkeit wird bei den Terpenemissionen gegenwärtig nicht berücksichtigt. Allerdings zeigen neuere Studien, z.B. Simpson et al. (1999), dass bei einzelnen Baumtypen auch die Terpenemissionen eine Funktion der Einstrahlung sind. Die Berücksichtigung dieser Abhängigkeit erfordert aber eine Einzelbetrachtung dieser Baumtypen, was auf der Basis der zur Verfügung stehenden Daten nicht möglich ist.

Der Temperatur-Korrekturfaktor für die Emissionen der anderen Kohlenwasserstoffe lautet nach Simpson et al. (1995):

$$C_T = \exp[0.009(T - 30)]$$

Eine eventuelle Strahlungsabhängigkeit dieser Emissionen wird ebenfalls nicht berücksichtigt.

In den obigen Gleichungen bedeutet:

T Blatttemperatur

$C_{T1}=95000.0, C_{T2}=230000.0, T_M=314.0, T_S=303.0$

R Gaskonstante, $8.314 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$

L Photosynthetisch wirksame Einstrahlung PAR (Wellenlängenbereich 400 bis 700 nm) in $\mu\text{mole m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (μE oder $\mu\text{Einsteins}$)

$\alpha=0.0027$ und $C_{L1}=1.066$.

PAR ist derjenige Teil der gesamten kurzweligen Einstrahlung, der die Photosynthese in Pflanzen hervorruft und damit auch die Emission reaktiver Kohlenwasserstoffe initiiert. Die Berechnung von PAR in den hier verlangten Einheiten (Photonenfluss, Anzahl der Photonen pro Fläche und Zeiteinheit) verlangt genau genommen eine wellenlängenabhängige Umwandlung von der üblichen Energieflusseinheit $\text{J m}^{-2}\text{s}^{-1}$ oder W m^{-2} in die den Photonenfluss beschreibende Einheit $\mu\text{Einstein}$. Die Beziehung zwischen dem Energiefluss und dem Photonenfluss ist also wellenlängenabhängig. Für Sonnenlicht in dem Wellenlängenbereich des sichtbaren Lichts kann man in erster Näherung den Umwandlungsfaktor

$$1 \text{ W} = 4.6 \text{ } \mu\text{E s}^{-1}$$

ansetzen. Dieser Umwandlungsfaktor wird in REM/CALGRID benutzt, um aus dem direkten Anteil der Globalstrahlung die photosynthetisch aktive Einstrahlung zu berechnen.

	Mittel- Europäische Eichen	Mediterrane Eichen	Sonstige Laub- bäume	Fichte Picea Sitchensis	Sonstige .Fichten	Sonstige Coniferen
AUSTRIA	2.9	0.0	17.9	0.0	59.1	20.1
ALBANIA	0.0	38.0	55.8	0.0	0.0	6.2
BELGIUM	36.8	0.0	14.7	0.0	30.9	17.7
BULGARIA	37.1	0.0	36.1	0.0	4.0	22.9
SWITZERLAND	1.8	0.0	27.9	0.0	35.1	35.1
CZECH REP.	8.9	0.0	27.0	0.0	44.0	20.0
GERMANY	8.3	0.0	22.8	0.0	32.7	36.2
DANMARK	8.2	0.0	28.6	8.6	34.3	20.4
SPAIN	0.0	43.0	10.0	0.0	0.0	47.0
FINLAND	0.0	0.0	15.0	0.0	31.0	54.0
FRANCE	38.0	0.0	28.0	0.0	5.0	29.0
GREAT BRITAIN	5.0	0.0	36.8	18.8	4.4	35.0
GREECE	0.0	55.0	15.1	0.0	0.0	29.9
HUNGARIA	42.4	0.0	47.5	0.0	1.3	8.9
IRELAND	5.1	0.0	18.0	0.0	35.9	41.0
ICELAND	8.2	0.0	28.6	8.6	34.3	20.4
ITALY	0.0	33.0	46.0	0.0	7.0	14.0
LUXEMBURG	12.5	0.0	62.5	0.0	12.5	12.5
NETHERLANDS	19.4	0.0	19.4	0.7	4.8	55.6
NORWAY	1.0	0.0	27.0	0.0	44.0	28.0
POLAND	4.0	0.0	16.0	0.0	7.0	73.0
PORTUGAL	0.0	45.0	10.0	0.0	0.0	45.0
ROMANIA	22.0	0.0	52.0	0.0	20.0	6.0
SWEDEN	1.0	0.0	25.0	0.0	40.0	34.0
YUGOSLAWIA	0.0	19.0	64.1	0.0	8.0	9.0
ARMENIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
AZERBAIJAN	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
BOSNIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
BELORUSSIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
CYPRUS	0.0	40.0	5.0	0.0	20.0	35.0
ESTONIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
GEORGIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
CROATIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
LITHUANIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
LATVIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
MOLDOVA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
MACEDONIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
MALTA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
RUSSIA	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0
SLOWAKIA	8.9	0.0	27.0	0.0	44.0	20.0
SLOVENIA	0.0	19.0	64.1	0.0	8.0	9.0
TURKEY	0.0	40.0	5.0	0.0	20.0	35.0
UKRAINE	6.0	0.0	31.0	0.0	34.0	29.0

Tabelle 5: Prozentuale Anteile von 6 Baumsorten an der gesamten Waldbedeckung pro Land im REM/CALGRID-Modellgebiet. Quelle: Simpson et al. 1995

	BM	ISOP	TERP	OVOC
Mitteleuropäische Eiche	300	40	0.2	1.5
Mediterrane Eiche	300	4	0.2	1.5
Andere Laubbäume	300	0	0.2	1.5
Fichte Picea Sitchensis	1400	6	3	1.5
Andere Fichten	1400	1	1.5	1.5
Andere Coniferen	1400	0	1.5	1.5
Nicht-dominante Vegetation	3-15%	8	0	1.5

Tabelle 6: Biomassendichte BM in g m^{-2} , VOC-Emissionsfaktoren in $\mu\text{g C}/(\text{g BM h})$, ISOP= Isopren, TERP=Terpene, OVOC= andere Kohlenwasserstoffe. Die Klasse nicht-dominante Vegetation bezeichnet den Anteil an Bäumen und Sträuchern, die nicht zu den 6 ausgewiesenen Klassen gehören, aber ebenfalls Kohlenwasserstoffemittenten sind. 15% der Biomasse in den Gebieten mit Laubbäumen, 3% der Fichtenbiomasse und 5% der Biomasse anderer Coniferen wird dieser Kategorie zugeordnet. Quellen: Simpson et al., 1995, 1999, Guenther et al., 1995.

2.6.2. Biogene Stickoxidemissionen

Stickoxidemissionen aus Böden sind streng genommen nur zum Teil „natürlichen“ Ursprungs. Der jahrzehntelange, anthropogen verursachte Eintrag von Stickstoff aus der Luft über die nasse und trockene Deposition von Stickoxiden sowie die Düngung von landwirtschaftlich genutzten Flächen hat den Stickstoffgehalt der Böden ansteigen lassen.

In Simpson et al. (1995) ist eine relative einfache Methodik zur Abschätzung der Stickoxidemissionen aus Böden beschrieben. Eine deutlich komplexere Vorgehensweise wurde von Yienger and Levy (1995) entwickelt. Allerdings sind die zur Anwendung dieser Methode notwendigen Daten über den Zustand der Böden zum Teil nicht ohne weiteres aus den hier zur Verfügung stehenden Daten ableitbar. Aus diesem Grunde wird in REM/CALGRID vorerst die einfache Methodik von Simpson et al. (1995) verwendet. Eine ausführliche Beschreibung beider Methoden kann in Builtjes et al. (2002) gefunden werden.

Simpson et al. (1995) gehen zur Bestimmung der NO-Emissionen aus Böden von folgender, zuerst von Pierce und Novak (1991) vorgeschlagenen Beziehung aus:

$$\text{Fluss N } (\text{ng m}^{-2} \text{ s}^{-1}) = C \exp [0.071 T_s]$$

mit C einem von der Landnutzung abhängigen Koeffizienten, der experimentell bestimmt wurde, und T_s der Temperatur des Bodens. Für alle nicht-bewaldeten Gebiete wird $C=0.9$, für Wälder $C=0.07$ gewählt. In Wäldern wird die Bodentemperatur mit $T_s=0.84 T_a + 3.6$, T_a Temperatur in 2 m Höhe in $^{\circ}\text{C}$, approximiert. Für alle anderen Gebiete gilt: $T_s=0.67 T_a + 8.8$.

2.7. Datenanforderungen

2.7.1. Meteorologische Daten

Zur Anwendung des REM/CALGRID müssen folgende Größen in mindestens dreistündigem Abständen für jeden horizontalen Gitterpunkt bereitgestellt werden:

- Wind in Anemometerhöhe (15m)
- Temperatur in Hüttenhöhe (2m)
- Wolkenbedeckungsgrad
- Niederschlag (3-stündlich akkumuliert) als Regen oder Schnee
- Schneebedeckung am Boden
- Mischungsschichthöhe
- Schubspannungsgeschwindigkeit u^*
- Monin-Obukovh-Länge L

und

- Horizontale Windkomponenten, Temperatur, Dichte und Feuchte als schichtgemittelte Werte für jeden Gitterpunkt des dreidimensionalen Gitters.

2.7.1.1. Emissionsdaten

Emissionen der Stoffgruppen SO_x , NO_x , CO, NH_3 , Benzol, PM10, PM2.5 und VOC müssen dem Modell in Form von Punkt- oder Flächenquellen vorgegeben werden. Flächenquellen emittieren dabei wahlweise in die Bodenschicht oder in die zweite Modellschicht. Für die Punktquellen wird aus den Kenndaten der Quelle und lokalen meteorologischen Größen eine effektive Schornsteinhöhe bestimmt. Die Übergabe der Emissionen erfolgt dann in die dazugehörige Modellschicht. Flächen- und Punktquellen werden im Modell als Volumenquellen behandelt, d.h. die Emissionen verteilen sich unmittelbar in der betreffenden Gitterzelle.

Das Modell verlangt jahresspezifische Emissionsdaten für alle in den verschiedenen chemischen Mechanismen benötigten Spezies getrennt nach Punkt- und Flächenquellen und unterteilt nach Verursachergruppen. Es ist die Verarbeitung einer beliebigen Anzahl von Verursachergruppen möglich. Die in der hier vorgestellten Modellanwendung benutzten Verursachergruppen beruhen auf den CORINAIR-Verursachergruppen und werden im Kap. 3 definiert.

Für die Verursachergruppen werden im Modell ausgehend von den Jahreswerten stündliche Emissionen abgeleitet. Die dazu verwendeten Monats-, Tages- und Stundenfaktoren müssen ebenfalls vorgegeben werden und berücksichtigen die Zeit- und Temperaturabhängigkeit der Emissionen der einzelnen Verursachergruppen. Diese Faktoren sind in Builtjes et al. (2002) beschrieben.

Bei den Kohlenwasserstoffen verlangt das Modell die Gesamtemissionen für die definierten Verursachergruppen und ein zu jeder Verursachergruppe gehöriges Kohlenwasserstoffprofil, das die prozentualen Anteile der spezifischen Kohlenwasserstoffe an der Gesamtemission der Verursachergruppe angibt. Jeder Kohlenwasserstoff wird dann den entsprechenden Klassen der zwei im Ausbreitungsmodell integrierten Mechanismen zugeordnet. Diese Vorgehensweise vermeidet die Verwendung pauschaler, mechanismusabhängiger Zuordnungsfaktoren und gewährleistet, dass das emittierte Kohlenwasserstoffgemisch exakt entsprechend der von jedem Mechanismus verlangten Klassifizierung behandelt wird. Für die großräumigen Transportberechnungen können für jedes Land im Modellgebiet verschiedene Kohlenwasserstoffprofile verarbeitet werden. Die verwendeten Splitfaktoren können ebenfalls in Builtjes et al. (2002) gefunden werden. Biogene VOC- und NO_x -Emissionen werden stündlich modellintern mit Hilfe von Landnutzungsdaten und entsprechenden Emissionsfaktoren berechnet (siehe Kap.2.6).

2.7.1.2. Geophysikalische Daten

An geophysikalischen Daten werden benötigt:

- Bodenbeschaffenheit in Form von Landnutzungsklassen pro Gitterfläche mit Waldbedeckung unterteilt in Nadel-, Laub- und Mischwälder
- Landnutzungsklassenspezifische Informationen (Rauhigkeitslänge z_0 und Blattflächenindex LAI, Biomassen)

Aus diesen Informationen werden modellintern alle für die trockene Deposition benötigten Größen abgeleitet. Die Waldbedeckung pro Gitterzelle und die Biomassen werden zur Ableitung der biogenen Kohlenwasserstoffemissionen benutzt.

3. Datenbasen

3.1. Meteorologisches Datenaufbereitungssystem

In den früheren Modellanwendungen von REM3 wurden die meteorologischen Daten mit Hilfe des an der Freien Universität Berlin entwickelten diagnostischen Systems erstellt, das aus synoptischen Daten und Radiosondendaten mit Methoden der optimalen Interpolation konsistente meteorologische Felder in einer Gitterauflösung von $0,5^\circ$ Länge und $0,25^\circ$ Breite berechnet (Reimer und Scherer, 1992). Die zeitliche Auflösung beträgt 3 Stunden. Auch die von REM/CALGRID benötigten meteorologischen Daten werden mit diesem System erzeugt. Eine genaue Beschreibung des Systems erfolgt in Kerschbaumer und Reimer (2003). Diese Datenbasis, bzw. die Methodik zur Erstellung der Daten wurde in diesem Vorhaben erweitert, um in der Zukunft mehr meteorologische Information verarbeiten zu können und damit eine Verbesserung einzelner Parametrisierungsansätze zu erreichen. Dies betrifft:

- die Berechnung der Mischungsschichthöhen,
- die Analyse und Interpolation der Niederschläge,
- die Erfassung der Bedeckung und des Bedeckungsgrades mit Schnee,
- die Erfassung weiterer Information zum Bedeckungsgrad und Wolkentyp.

Die Erfassung von mehr meteorologischer Information bezieht sich im ersten Ansatz (Stufe 1) ausschließlich auf die standardmäßig zur Verfügung stehenden Synop- und Radiosondendaten. In einem zweiten Schritt wurde untersucht, wie weit für die Niederschlagsanalyse und die Bestimmung der Schneebedeckung auch Satellitendaten (Meteosat-Satelliten) verarbeitet werden können (Stufe 2).

Die qualitativ größte Veränderung des ursprünglichen Systems betrifft die Niederschlagsfelder. In den REM3-Eingangsdaten wurde Regen nur als ja/nein-Information verarbeitet. In den neuen, von REM/CALGRID verwendeten Feldern erfolgt eine quantitative Bereitstellung des Niederschlags. Dies wird durch die Erstellung von Feldern aus der Interpolation von Beobachtungen ermöglicht. Die beobachteten Niederschlagsereignisse, die als Typen nach WMO aktuell erfasst werden, werden mit Hilfe klimatologischer Beziehungen als ‚first guess‘ in eine Niederschlagshöhe umgerechnet und an die gemessenen Niederschlagsmengen angepasst.

Da die Standard-Daten in vielen Gebieten (z. B. über See) nur eine lückenhafte Beschreibung der Wolkenparameter zulassen, wurde in Stufe 2 die mögliche Verwendung von Meteosat-Satelliteninformationen untersucht. Sowohl die Niederschlagsanalyse als auch die Bestimmung der Schneebedeckung kann durch die Einbeziehung von Satellitenbeobachtungen der Meteosatexperimente weiter verbessert werden. Die Daten der Meteosat- (und der NOAA)-Satelliten liegen am Institut für Meteorologie für die entsprechenden Jahre vor (Koslowsky, 1997). Aus den sichtbaren und infraroten Signalen der Satellitenmessungen soll im Vergleich mit der Analyse des Schnees und des Niederschlags aus den Standardmeldungen eine Konsistenz in der Flächenverteilung erzwungen werden. Die Machbarkeit dieser Vorgehensweise wurde in einer Vorstudie untersucht, deren Ergebnisse in Oestreich (2003) dokumentiert sind. In dieser Studie ist die Erstellung einer Wolken- und Niederschlagsmaske als operationelles Verfahren zur Konsistenzprüfung im REM/CALGRID-Modellgebiet sowie die Einbindung der Ergebnisse in Grenzschichtmodelle beschrieben.

Obwohl der Einsatz von Satelliteninformationen bei der Erstellung von Eingangsdaten für REM/CALGRID prinzipiell möglich ist und auch eine Verbesserung der Wolken- und Niederschlagsdatenbasis bedeuten würde, werden Satelliteninformationen im gegenwärtigen System noch nicht genutzt, da der dazu erforderliche numerische Aufwand den operationellen Charakter des Modells derzeit noch in Frage stellt (Oestreich, 2003).

3.2. Emissionsdatenbasis

3.2.1. Überblick

Im Rahmen dieses Vorhabens wurde von der TNO (Buultjes et al., 2002) eine europaweite Emissionsdatenbasis erstellt, die den Stand der Emissionen von 1995 repräsentiert und für die europaweiten Ausbreitungsrechnungen mit dem chemischen Transportmodell REM/CALGRID verwendet wird. Die neue Emissiondatenbasis basiert auf folgenden Prämissen:

- Das Erfassungsgebiet entspricht Gesamteuropa.
- Grundlage sind die CORINAIR-Daten in der Version 2.2, verfügbar seit Oktober 1999, und die in dieser Datenbasis verwendete Verursachergruppensystematik (SNAP-Codes, level 1).
- Emissionen für Länder, die nicht in der CORINAIR-Datenbasis enthalten sind, wurden aus der bei der TNO für das Ausbreitungsmodell LOTOS verwendeten Datenbasis entnommen.
- Die Gitterauflösung beträgt $0,5^\circ$ Länge und $0,25^\circ$ Breite.
- Die Datenbasis enthält die Jahresemissionen von NO_x , NMVOC, CO, CH_4 , SO_x , NH_3 , PM10 und PM 2.5.
- Die PM10 und PM2.5-Emissionen stammen nicht von CORINAIR, sondern aus der von EMEP initiierten CEPMEIP-Datenbasis.
- Die summarischen Emissionen pro Land der CORINAIR-Datenbasis beschreiben den Zustand 1995.
- Die räumliche Verteilung der CORINAIR-Emissionen innerhalb eines Landes spiegelt nur den Stand von 1990 wieder, da seit 1990 keine Fortschreibung der räumlichen Emissionsstruktur stattgefunden hat. Im Rahmen des CEPMEIP-Projekts¹ wurden von einzelnen Ländern für die Partikelemissionen auch über 1990 fortgeschriebene räumliche Emissionsverteilungen geliefert. Diese Information wurde bei der Erstellung der Emissionsdatenbasis auch für die anderen Schadstoffe verwendet.
- Die originale CEPMEIP-Emissionsdatenbasis liegt im EMEP- $50 \times 50 \text{ km}^2$ -Gitter vor. Für dieses Projekt wurden die CEPMEIP-PM-Emissionen in das hier verwendete $0.25^\circ \times 0.5^\circ$ Breiten-Längen-Gitter umgesetzt.
- Die Emissionsdatenbasis ist unterteilt in Flächen- und Punktquellen. Für Punktquellen liegen keine spezifischen Informationen vor, so dass die Schornsteinhöhe pauschal auf 150 m Höhe für die Verursachergruppe SNAP 1 und auf 50 m Höhe für die Verursachergruppe SNAP 3 gesetzt wurde.
- Für jede Verursachergruppe wurden Kohlenwasserstoffprofile bereitgestellt.
- Für jede Verursachergruppe wurden Monats-, Tages- und Stundenfaktoren zur Berechnung zeitspezifischer stündlicher Emissionen bereitgestellt.

¹ CEPMEIP steht für Co-ordinated European Programme on Particulate Matter Emission Inventories, Projections and Guidance. Das von EMEP initiierte Programm soll den nationalen Experten als Rahmen dienen, innerhalb dessen Partikelemissionen für das EMEP-Programm bereit gestellt werden.

3.2.2. Basisemissionen 1995

Für die Emissionsdatenbasis wurden die sogenannten SNAP-Codes, level 1 verwendet. Diese werden im Folgenden zur Erhaltung der Eindeutigkeit mit ihren englischen Benennungen aufgeführt:

- (1) Combustion in energy and transformation industries (Public ELE, CHP, DH, transf. of solid fuels to gases, petroleum refineries, autoproducers)
- (2) Non-industrial combustion
- (3) Combustion in manufacturing industries
- (4) Production processes (non-combustion)
- (5) Extraction and distribution of fossil fuels (non-combustion)
- (6) Solvents use
- (7a) Road transport petrol
- (7b) Road transport diesel
- (7c) Road transport evaporation
- (8) Off-road transport
- (8a) Air transport (only LTO cycles); this category is already included in (8)
- (9) Waste treatment and disposal
- (10) Agriculture (non-energy)

Tabelle 7 zeigt die Jahresemissionen pro Land im Emissionsgebiet, die Abbildung 1 bis Abbildung 5 zeigen die räumliche Verteilung der Emissionen für NO_x, NMVOC, NH₃, SO₂ und PM10.

Die Angaben von TNO/CORINAIR/CEPMEIP wurden mit den Angaben des Umweltbundesamts für Deutschland sowie den Angaben der IIASA für die anderen europäischen Ländern im Sinne eines qualitätssichernden Schrittes nach Ländersummen und verursachergruppenweise verglichen. Diese Arbeiten sind im Detail in Stern (2003) dokumentiert. IIASA- und Umweltbundesamtangaben stimmen für Deutschland recht gut überein während die TNO-CORINAIR-EPMEIP-Emissionen für NO_x, PM10 und vor allem SO₂ höher sind als die Umweltbundes. Aus diesem Grunde werden die TNO/CORINAIR-Emissionen in Deutschland für die REM-CALGRID-Ausbreitungsrechnungen pro Verursachergruppe an die vom Umweltbundesamt angegebenen Emissionen angepasst. Lediglich beim PM10 werden die Originalemissionen (CEPMEIP) wegen der großen Unsicherheiten beibehalten. Diese Emissionen liegen circa 20% über den Angaben des Umweltbundesamts.

Die in der Emissionsdatenbasis enthaltenen Kohlenwasserstoffemissionen werden im REM/CALGRID-Emissionsverarbeitungssystem mit Hilfe der verursachengruppenspezifischen Profile zuerst in spezifische Kohlenwasserstoffe oder Kohlenwasserstoffgruppen aufgeteilt. Abbildung 6 zeigt dazu die mit dem REM/CALGRID-Emissionssystem für Deutschland berechnete Aufteilung der Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe nach Anwendung der Kohlenwasserstoffprofile auf die SNAP-Verursachergruppen. Die in der Abbildung 6 angeführten Kohlenwasserstoffe werden dann den Stoffgruppen der chemischen Mechanismen zugeordnet. Diese Prozedur wird für das gesamte Modellgebiet durchgeführt.

		COUNTRY	CH4 (kt/a)	CO (kt/a)	NH3 (kt/a)	NMVOCS (kt/a)	NOX (kt/a)	SO2 (kt/a)	PM10 (kt/a)	PM2.5 (kt/a)
1	AUT	AUSTRIA	580.2	1146.7	78.8	282.9	176.3	60.1	46.2	33.5
2	ALB	ALBANIA	66.5	160.98	31.1	62.3	51.6	23.6	8.2	6.1
3	BEL	BELGIUM	602.3	1515.2	95.9	315.5	349.9	252.2	84.2	57.1
4	BGR	BULGARIA	506.0	844.47	99.9	140.9	266.2	1496.7	93.1	37.6
5	CHE	SWITZERLAND	313.3	509.68	60.3	210.8	135.6	34.4	20.5	15.5
6	CZE	CZECH REP.	733.3	874.01	137.3	286.1	412.5	1091.1	125.4	57.4
7	DEU	GERMANY	4848.4	6797.3	622.6	2145.3	2266.4	2998.3	335.5	217.4
8	DNK	DANMARK	428.1	587.58	99.3	131.4	250.2	148.7	33.0	23.4
9	ESP	SPAIN	2259.2	4645	345.3	1079.5	1184.6	2007.5	219.4	153.7
10	FIN	FINLAND	246.0	435.84	35.3	185.9	260.2	96.3	30.0	22.0
11	FRA	FRANCE	2642.5	8420.7	794.6	2174.0	1725.8	947.2	449.9	350.8
12	GBR	GREAT BRITAIN	3817.8	5478.4	323.7	2257.2	2294.8	2364.9	259.8	164.6
13	GRC	GREECE	465.2	1418.2	110.9	450.4	356.5	609.3	62.4	41.9
14	HUN	HUNGARIA	603.2	767.8	61.7	148.1	189.8	883.2	62.2	35.9
15	IRL	IRELAND	813.1	303.63	124.1	149.3	114.5	160.9	22.6	12.8
16	ISL	ICELAND	k.A.	k.A.	k.A.	0.0	0	k.A.	k.A.	k.A.
17	ITA	ITALY	2555.4	7754.5	462.3	2216.3	1848.8	1321.5	319.4	232.4
18	LUX	LUXEMBURG	22.1	104.54	7.1	16.8	20.1	8.6	5.2	2.8
19	NLD	NETHERLANDS	1171.0	892.02	146.6	364.9	497.9	146.7	64.5	41.5
20	NOR	NORWAY	492.3	748.57	29.6	365.8	216.6	37.2	48.4	42.6
21	POL	POLAND	1803.2	4548.1	378.6	770.4	1121.9	2276.3	313.8	126.9
22	PRT	PORTUGAL	816.0	1290.1	96.5	247.1	366	357.6	50.1	36.2
23	ROM	ROMANIA	809.1	2924.4	204.2	477.2	342.4	1063.9	185.7	93.0
24	SWE	SWEDEN	276.2	876.78	62.6	302.8	342.1	84.4	42.0	29.7
25	YUG	YUGOSLAWIA	487.0	1021.3	104.2	281.5	3293.3	155.2	144.4	48.9
26	ARM	ARMENIA	k.A.	k.A.	k.A.	0.0	k.A.	k.A.	6.6	4.8
27	AZE	AZERBAIJAN	k.A.	k.A.	k.A.	0.0	k.A.	k.A.	26.9	18.2
28	BIH	BOSNIA	118.9	249.17	25.5	68.7	363.6	54.3	9.8	5.7
29	BLR	BELORUSSIA	1738.1	2090.6	73.0	901.1	466.9	245.9	62.3	38.5
30	CYP	CYPRUS	k.A.	k.A.	k.A.	0.0	k.A.	k.A.	1.7	1.0
31	EST	ESTONIA	42.6	343.42	12.3	59.5	47.6	123.2	33.3	13.7
32	GEO	GEORGIA	k.A.	k.A.	k.A.	0.0	k.A.	k.A.	10.0	7.0
33	HRV	CROATIA	103.0	479.02	25.1	72.0	55.3	63.2	21.1	13.8
34	LTU	LITHUANIA	625.1	751.92	26.2	324.1	115	108.0	19.9	12.7
35	LVA	LATVIA	423.4	509.24	17.9	219.5	92.8	88.4	13.2	8.6
36	MDA	MOLDOVA	730.1	878.22	30.6	378.5	108.3	59.7	16.4	9.8
37	MKD	MACEDONIA	90.8	190.28	19.4	52.5	94.6	29.5	27.4	9.6
38	MLT	MALTA	6.1	23.708	0.0	5.5	16.3	15.8	0.8	0.6
39	RUS	RUSSIA	21393.0	23585	1067.3	9497.9	2391.1	67.9	1412.1	721.6
40	SVK	SLOWAKIA	313.0	400.07	30.0	41.0	181	238.0	40.6	23.0
41	SVN	SLOVENIA	166.3	91.426	21.6	42.3	66.6	119.3	13.2	6.7
42	TUR	TURKEY	k.A.	k.A.	k.A.	0.0	k.A.	k.A.	390.9	204.6
43	UKR	UKRAINE	8671.2	10430	362.7	4495.4	1893.7	1287.2	608.9	282.2

Tabelle 7: Jahresemissionen 1995 in kt/a basieren auf CORINAIR und CEPMEIP. k.A.= keine Angaben. Details können in Stern (2003) gefunden werden.

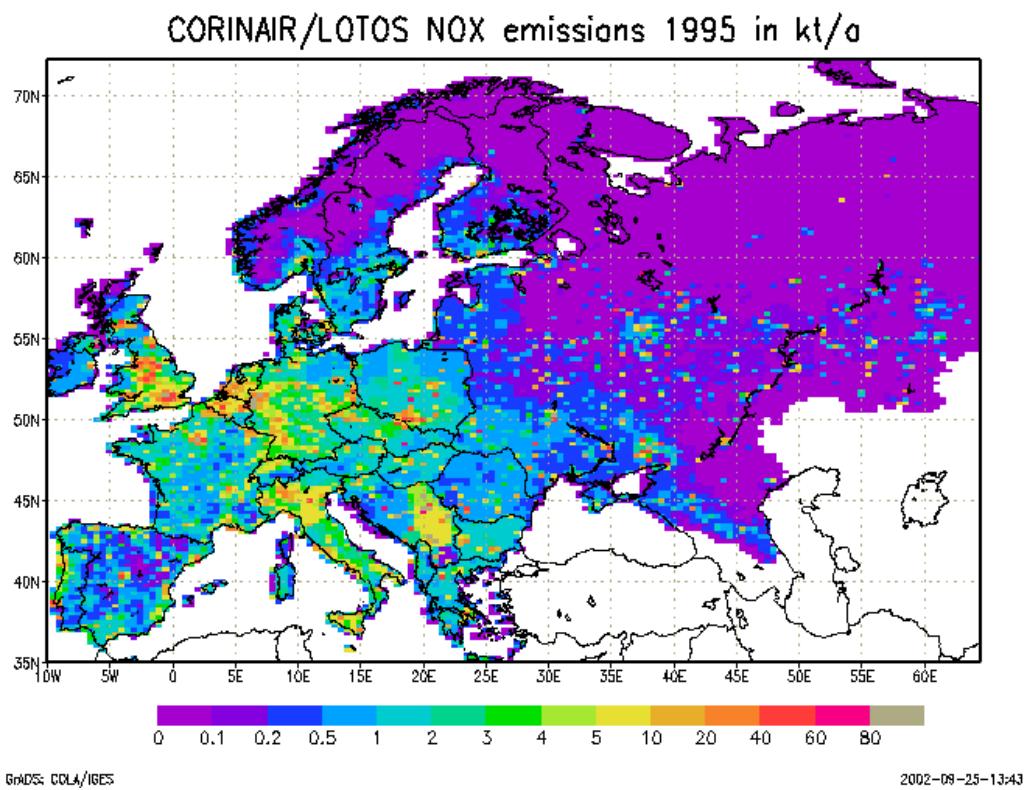


Abbildung 1: Jahresemissionen 1995 für NO_x in kt/a.

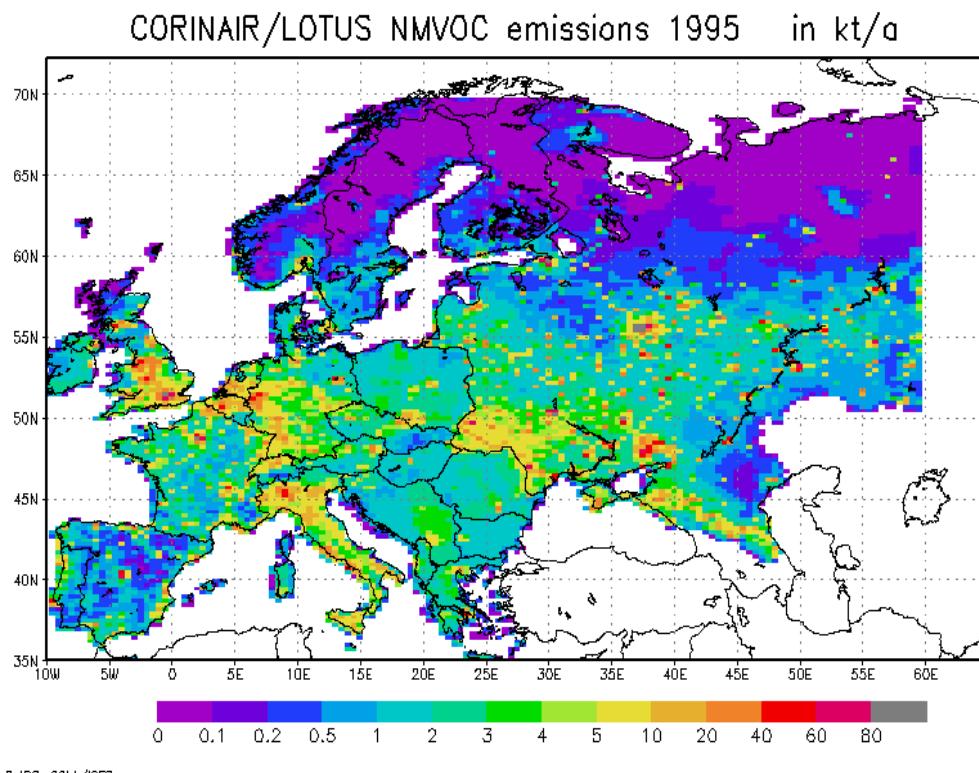


Abbildung 2: Jahresemissionen 1995 für NMVOC in kt/a.

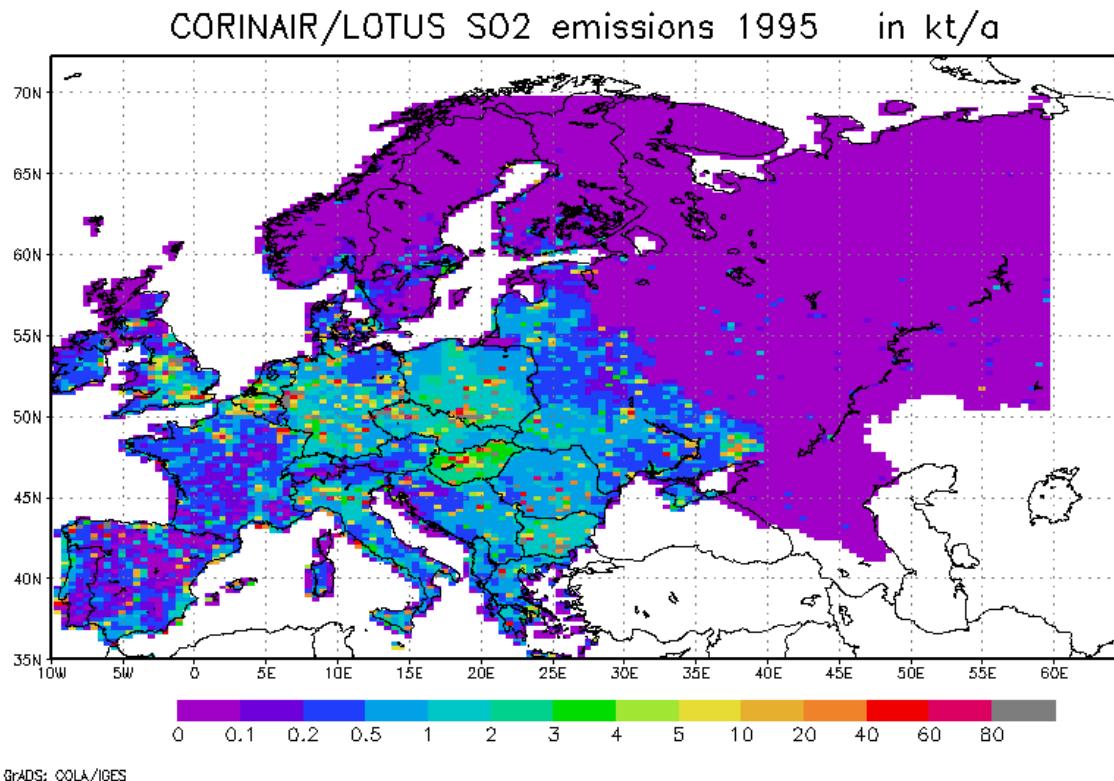


Abbildung 3: Jahresemissionen 1995 für SO₂ in kt/a.

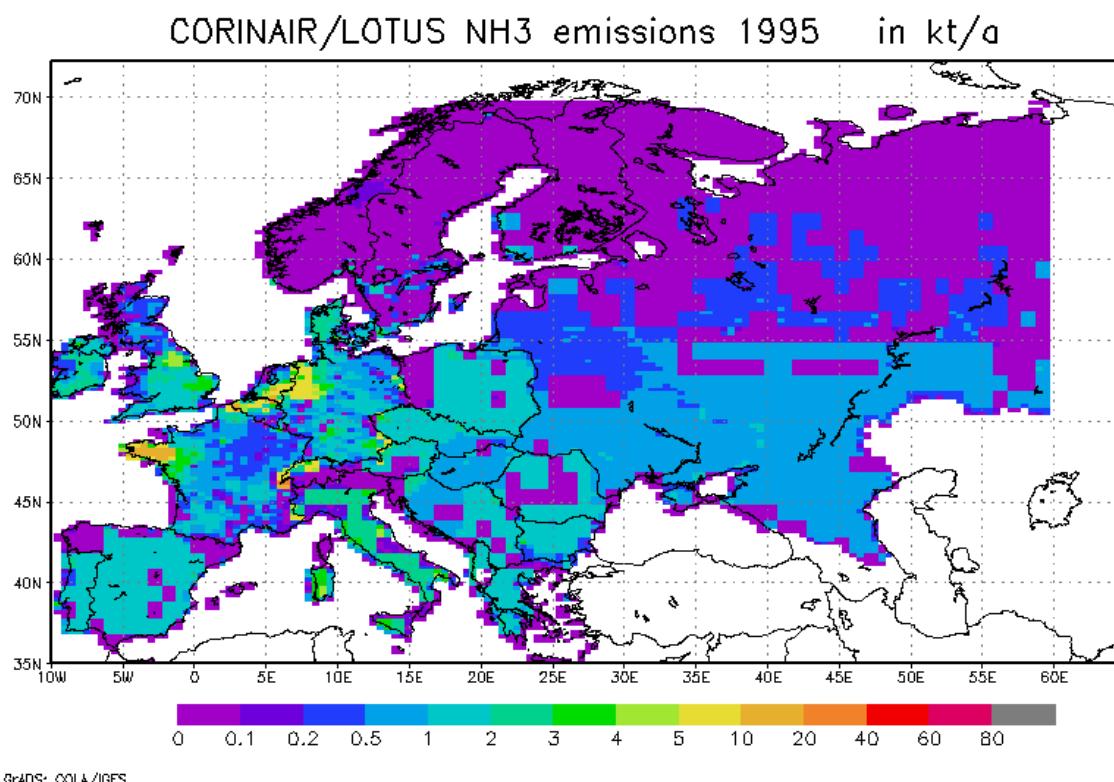


Abbildung 4: Jahresemissionen 1995 für NH₃ in kt/a.

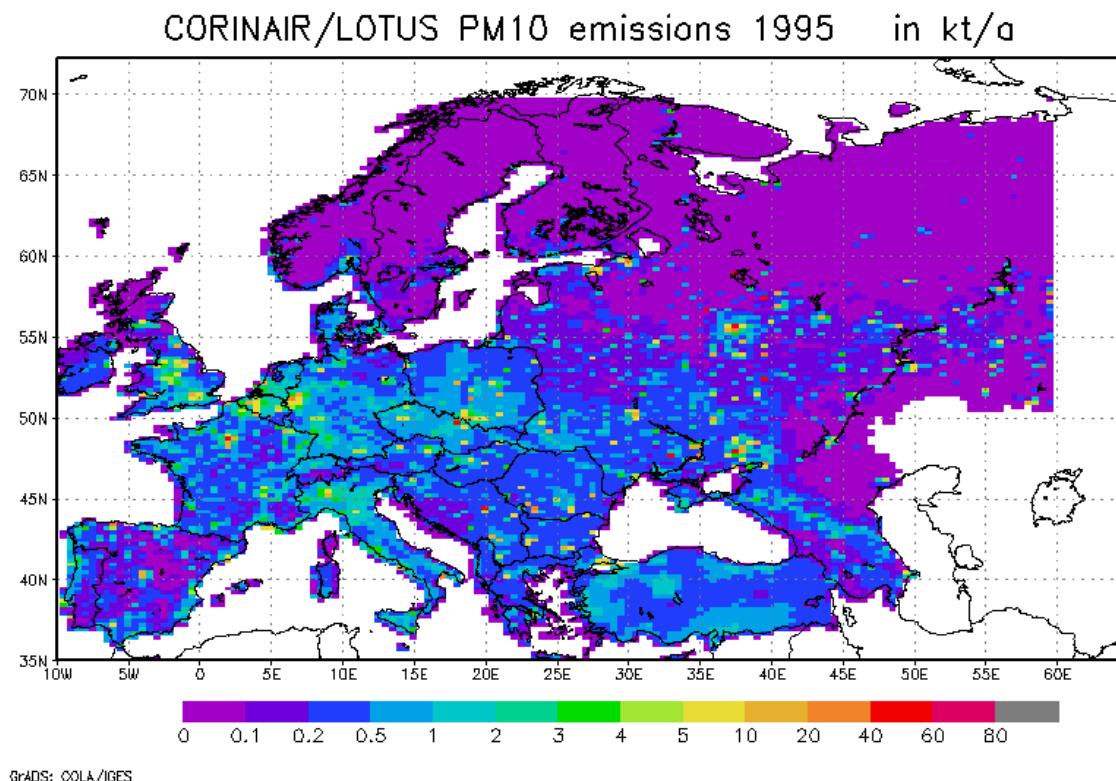


Abbildung 5: Jahresemissionen 1995 für PM10 in kt/a.

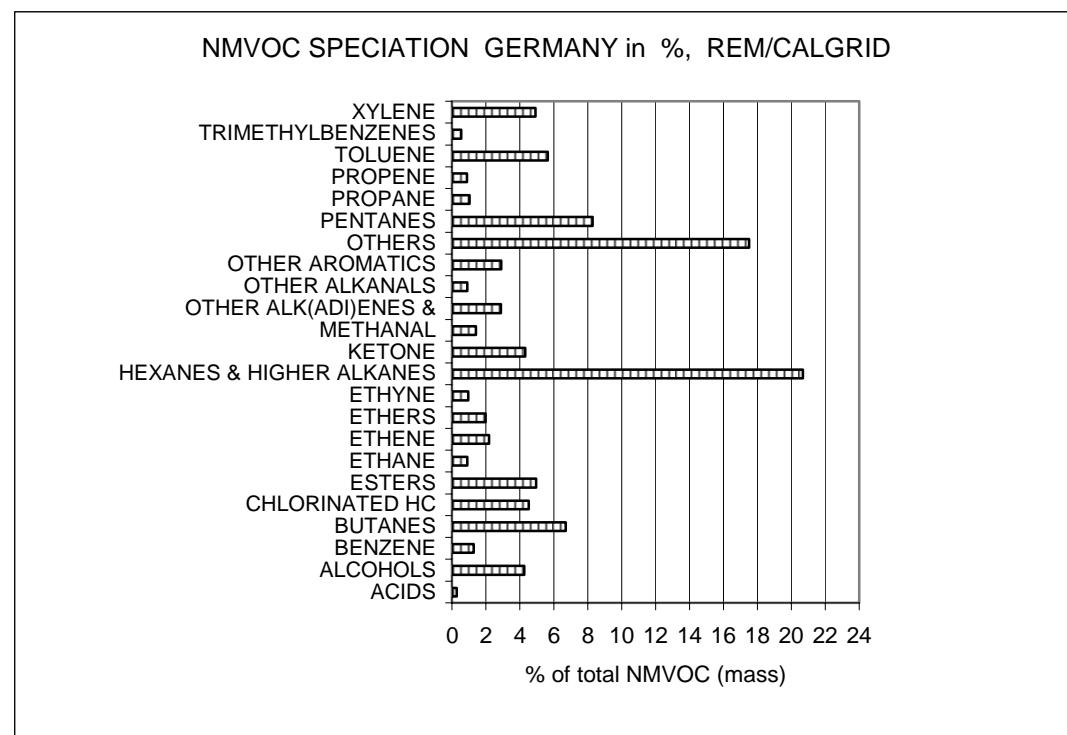


Abbildung 6: Prozentuale Aufteilung der NMHC-Emissionen in Deutschland in Kohlenwasserstoffe oder Kohlenwasserstoffgruppen. Die Aufteilung wurde durch Anwendung der verursachergruppenspezifischen Kohlenwasserstoffprofile auf die NMHC-Emissionen ermittelt.

3.2.3. Emissionsszenarien 2005 und 2010

Die in den Richtlinien 1999/30/EG, 2000/69/EG und 2002/3/EG des Rates über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickoxide, Partikel, Blei, Benzol, Kohlenmonoxid und Ozon in der Luft definierten Zielwerte müssen bis 2005 (PM10, Stufe1) bzw. 2010 eingehalten werden. Es ist daher vorgesehen, mit dem Ausbreitungsmodell REM/CALGRID je ein Emissionsszenario für 2005 und 2010 zu berechnen, um die in Deutschland auf Grund der prognostizierten Emissionsentwicklung zu erwartende Luftqualität abschätzen zu können. In diesem Kapitel werden die dazu notwendigen Emissionsabschätzungen für 2005 und 2010 zusammenge stellt. Grundlage der Abschätzung sind von IIASA für dieses Vorhaben zur Verfügung gestellte Informationen über die zukünftige Emissionsentwicklung. Details zu den Abschätzungen können in Stern (2003) gefunden werden.

Es wurden drei Emissionsszenarien ausgearbeitet:

- Emissionen 2005
- Emissionen 2010 CLE-Szenario
- Emissionen 2010 MFR-Szenario

Das CLE-Szenario basiert auf der sog. „Current Legislation“ und den NEC-Werten („National Emission Ceilings“) der EU. Das MFR-Szenario („Maximum feasible reduction“) geht über das CLE-Szenario noch hinaus. Für diese beiden Szenarien liegen von IIASA berechnete Emissionsmengen vor. Für das Jahr 2005 liegen keine konkreten Emissionsabschätzungen von IIASA vor. Nach Aussage von IIASA kann aber zwischen 1995 und 2010 von einer anähernd linearen Emissionsentwicklung ausgegangen werden.

Da nur die von IIASA erstellten Emissionsentwicklungen für alle relevanten Schadstoffe nach Verursachergruppen unterteilt zur Verfügung stehen, wurden im Sinne einer konsistenten Ableitung der Emissionsänderungen auch nur diese Informationen zur Berechnung der Emissionsänderungsfaktoren verwendet. IIASA- und Umweltbundesamtabschätzungen für 2010 stimmen aber gut überein, so dass sich aus der alleinigen Verwendung von IIASA-Informationen kein Widerspruch zu Abschätzungen des Umweltbundesamts ergibt. Lediglich für 2005 ist die vom Umweltbundesamt erwartende PM10-Emissionsabnahme größer als diejenige, die sich aus der von IIASA vorgeschlagenen Linearitätsannahme zwischen 1995 und 2010 ergibt.

Für Deutschland wurden basierend auf der IIASA-Information bezogen auf die Emissionen von 1995 für die drei Szenarien die in der Tabelle 8 zusammengestellten Emissionsverminderungen berechnet. Die Änderungen pro Verursachergruppe und Land sind in Stern (2003) zusammenge stellt.

Änderung bezogen auf 1995	2005	2010, CLE	2010, MFR
Stickoxide	-23%	-45%	-53%
Kohlenwasserstoffe	-27%	-59%	-59%
Schwefeldioxid	-36%	-72%	-78%
Ammoniak	-8%	-17%	-17%
PM2.5	-22%	-44%	-60%
PM10 - PM2.5	-23%	-47%	-53%

Tabelle 8: Emissionsänderungen in Deutschland für das Jahr 2005 und 2010 (CLE-Szenario und MFR-Szenario) bezogen auf die Emissionen 1995. Weitere Erläuterungen im Text und in Stern (2003).

3.3. Landnutzungsdatenbasis

Im Rahmen dieses Vorhabens wurde von der TNO (Buitjes, 2002) eine neue Landnutzungsdatenbasis erstellt. Diese sogenannte PELINDA-Landnutzungsdatenbasis (Pan European Land Cover Database, de Boer et al., 2000) beruht auf einer Auswertung der NOAA-AVHRR-Daten, die einen Großteil von Europa in einem Satellitenbild erfassen. Die Datenbasis wurde unter dem Projekt INDAVOR (Instrument for Detecting Land Cover Change for Europe) erarbeitet. Ziel dieses Projekts war die Erarbeitung einer Landnutzungsdatenbasis, die einfach und schnell fortschreibbar ist, bei einer allerdings beschränkten Anzahl möglicher Klassen, die für die Anforderungen der Ausbreitungsrechnung aber ausreichend ist.

Für die Modellierung wurden die Daten in 15 Klassen zusammengefasst, die bereits bei der Beschreibung der trockenen Deposition eingeführt wurden (Kap. 2.4, Tabelle 2). Die aus den Satellitendaten abgeleitete Landnutzung für ganz Europa zeigt die Abbildung 7. Die vorherrschende Landnutzungsklasse im Rechenraster von $0,25^\circ$ Breite und $0,5^\circ$ Länge zeigt die Abbildung 8.

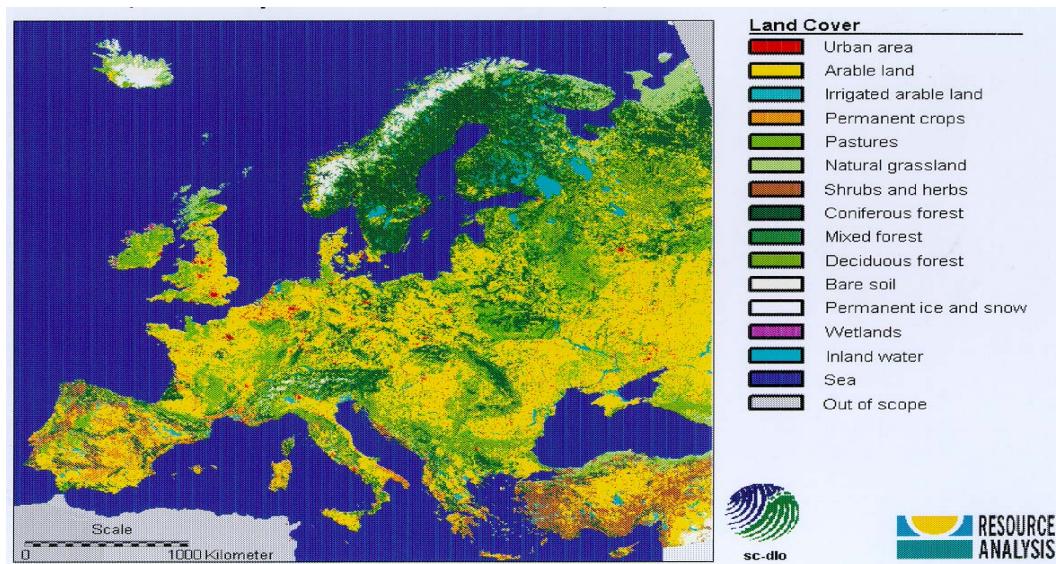


Abbildung 7 : PELINDA-Landnutzungsdaten. Quelle: Builtjes et al. (2002)

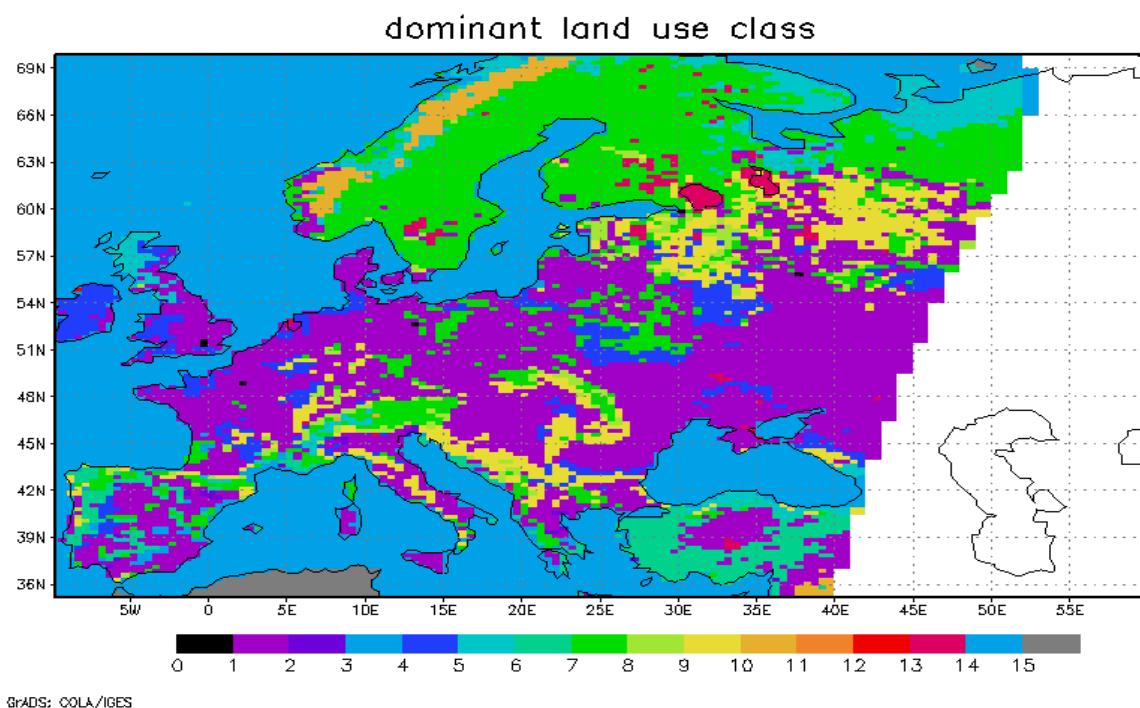


Abbildung 8: Dominierende Landnutzungsklasse im Raster 0.25° Breite und 0.5° Länge. Die 15 Klassen entsprechen: 0-1 Urban_area, 1-2 Arable_land, 2-3 Irrigated arable land, 3-4 Permanent crop, 4-5 Pasture, 5-6 Natural_grassland, 6-7 Shrubs and herbs, 7-8 Coniferous forest, 8-9 Mixed forest, 9-10 Deciduous forest, 10-11 Bare soil, 11-12 Permanent ice and snow, 12-13 Wetlands, 13-14 Inland water, 14-15 Sea, >15 Not_classified. Weiße Gebiete bedeuten keine Daten verfügbar.

4. Modellevaluierung

4.1. Überblick

Zur Modellevaluierung wurden mit REM/CALGRID komplette Jahresläufe für die Jahre 1995, 1997 und 1999 durchgeführt. Dabei wurde eine zweigleisige Vorgehensweise eingeschlagen:

- Vergleich der Modellergebnisse mit verfügbaren Messungen
- Vergleich der Modellergebnisse mit den Ergebnissen anderer Modellrechnungen

Alle Modellläufe wurden in einer Auflösung von 0.25° Breite und 0.5° Länge ausgeführt. Das Modellgebiet umfasst 80x81 Gitterzellen und deckt das gesamte Mitteleuropa ab (Abbildung 9). In der Vertikalen wurde eine Auflösung in 4 Schichten gewählt, mit 3 Schichten unter der Mischungsschichthöhe und einer Reservoirschicht darüber. Das Vertikalgitter ist dabei dynamisch, d. h. die vertikale Ausdehnung der Schichten ändert sich mit der Änderung der Mischungsschichthöhe. Lediglich die Bodenschicht wird mit 20 m vertikaler Ausdehnung konstant gesetzt. Als chemischer Gasphasenmechanismus wurde der CBM-IV-Mechanismus benutzt. Für alle Läufe wurden PM10-Konzentrationen unter Verwendung des Aerosolmoduls berechnet. Die seitlichen und oberen Randbedingungen wurden für alle Spezies außer Ozon auf aus der Literatur übernommene Hintergrundwerte gesetzt. Für Ozon wurden die Randbedingungen aus der von Logan (1998) entwickelten Ozonklimatologie abgeleitet. Diese Ozonklimatologie entstand unter Verwendung aller verfügbaren Ozonsondenaufstiege aus den 90er Jahren und liefert die Monatsmittel der Ozonkonzentration vom Boden bis zu 500 mb in einer horizontalen Auflösung von 4° Breite und 5° Länge.

Der Vergleich mit anderen Modellen erfolgte im Rahmen von zwei internationalen Modellvergleichen:

- a) GLOREAM-Aerosolvergleich. GLOREAM steht für GLObal and REgional Atmospheric Modelling und ist ein Unterprojekt von EUROTRAC-II. Im Rahmen des GLOREAM-Projekts wurden die Aerosol-Ergebnisse von 6 großräumigen chemischen Transportmodellen verglichen. Der Untersuchungszeitraum war der Sommer 1995.
- b) TOR-Modellvergleich. TOR steht für Tropospheric Ozon Research und ist ebenfalls ein Unterprojekt von EUROTRAC-II. Im Rahmen von TOR wurden die Ozonergebnisse von 10 großräumigen chemischen Transportmodellen verglichen. Der Untersuchungszeitraum war das gesamte Jahr 1997.

An beiden Modellvergleichen war das REM/CALGRID-Modell beteiligt.

Alle Berechnungen, auch diejenigen in Flemming (2003a), wurden mit derselben Modellversion durchgeführt. Auch die Erstellung der Eingangsdaten erfolgte für alle berechneten Jahreszeiträume nach derselben Methodik, d. h. weder das Modell noch die Daten wurden speziell an einen gewissen Modellierungszeitraum angepasst. Dies steht im Gegensatz zur Episodenmodellierung, der i. A. eine detaillierte Analyse der meteorologischen Bedingungen des ausgewählten (kurzen) Zeitraums und eine daraus abgeleitete situationsangepasste Erstellung der Eingangsdaten und möglicherweise auch eine Anpassung verschiedener Modellparameter vorausgeht.

Die Modellevaluierung des REM/CALGRID wurde durch den Vergleich der Rechenergebnisse mit Beobachtungen durchgeführt. Die Beobachtungsdaten sind stündliche Zeitreihen der bodennahen Messung für Ozon (O_3), Stickstoffdioxid (NO_2), Stickstoffmonoxid (NO), Schwefeldioxid (SO_2), Feinstaub (TSP^2) und PM10. Die Daten stammen aus den Messnetzen der deutschen

2 Total suspended matter

Bundesländer und des Umweltbundesamtes und wurden im Rahmen dieses Vorhabens für die Zwecke der Ausbreitungsrechnung aufgearbeitet (Flemming, 2003a). Darüber hinaus sind Zeitreihen benachbarter Länder über den Datenaustausch der Europäischen Umweltbehörde bezo gen worden (<http://etc-acc.eionet.eu.int/databases/airbase.html>).

Für die EU-Rahmenrichtlinie ist nur die Fraktion des Staubes mit einem Durchmesser kleiner 10 μm (PM10) von Interesse. PM10-Messungen liegen jedoch erst seit 2000 in größerem Umfang vor. Aus diesem Grund wird die PM10-Konzentration auch aus den TSP-Messungen abgeleitet. Dabei wird ein Anteil von 80% angenommen (Lenschow et al., 2001).

Bei den verwendeten Beobachtungsdaten handelt es sich um offizielle und geprüfte Daten. Eine weitere Datenqualitätsprüfung oder eine Fehlwerterersetzung wurden im Rahmen des Vorhabens nicht vorgenommen. Dies kann bei dem hier verwendeten Ansatz der flächendeckenden Langzeitmodellierung vertreten werden, bei dem die Betrachtung einzelner Stationsmessreihen bei der Vielzahl zur Verfügung stehenden Messungen nicht im Mittelpunkt steht.

In den Tochterrichtlinien (EU, 2002; EU, 2000; EU, 1999) zur EU-Rahmenrichtlinie (EU, 1996) ist festgelegt, dass mindestens 90% der Daten einer kontinuierlichen Jahreszeitreihe (Ozon nur Sommerwerte, siehe EU, 2002) für die Ableitung der Luftgütekriterien vorhanden sein müssen. Um die Anzahl der verwendbaren Zeitreihen zu erhöhen, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Vollständigkeitskriterium von 85% angewendet. Dies ist insbesondere für die Nachtwerte von Bedeutung, da hier die Ausfallquote überproportional hoch ist. Eine Fehlwerterersetzung wurde nicht durchgeführt. Für Ozon³, NO₂, TSP und SO₂ erfüllen mehr als 80% und für PM10 und NO weniger als die Hälfte der Zeitreihen das 85% Kriterium. Die Auswahl der zur Evaluierung benutzten Größen (Tagesmittelwert, Jahresmittelwert, etc.) orientiert sich an den in den EU-Tochterrichtlinien für die einzelnen Stoffe definierten Mittelungszeiträumen für die Grenzwerte.

Tabelle 9 zeigt die Anzahl der vorliegenden Jahreszeitreihen aus Deutschland und Europa für die Jahre 1995-2001.

Die hier verwendete Einstufung der Stationen in ländlich, städtisch oder verkehrsnah entspricht der mit den Daten überreichten Einteilung des Umweltbundesamts. Diese Einteilung wurde hier ohne weitere Prüfung übernommen. In Flemming (2003a) wird gezeigt, dass diese Einteilung, die zudem nur für Ozon vorliegt, mit Hilfe von Clusteranalysen verfeinert werden kann. Die von Flemming (2003a) erstellte speziesspezifische Klassifizierung der Messstationen in die Regimes „Berg“, „Land“, „Vorstadt“, „Stadt“, „Stadt verkehrsnah“, und „Straße“ ist eine Voraussetzung für die Anwendung der Techniken der Optimalen Interpolation im Rahmen der Ausbreitungsrechnung (Flemming, 2003b).

3 Die Datenqualitätsanforderung wirkt sich besonders auf die Ozonbeobachtungen aus, bei der nach diesem Kriterium nur 70% der Zeitreihen verwendet werden könnten

Anzahl	1995		1996		1997		1998		1999		2000		2001	
	D	EU	D	EU										
O₃	336	110	337	116	361	195	332	208	342	268	348	190	342	-
NO₂	409	47	379	60	4234	110	410	120	418	181	423	-	420	-
NO	322	39	374	36	376	77	313	106	420	112	425	39	420	-
SO₂	443	30	357	34	4261	84	360	80	406	107	398	-	381	-
TSP	232	1	342	1	340	-	341	-	288	-	129	-	104	-
PM10	-		-		36	20	38	21	34	23	98		155	

Tabelle 9: Anzahl der vorliegenden Jahreszeitreihen, deren Vollständigkeit größer als 85% ist für Deutschland (D) und für Europa (EU), ausgenommen Deutschland. Quelle: Flemming (2003a)

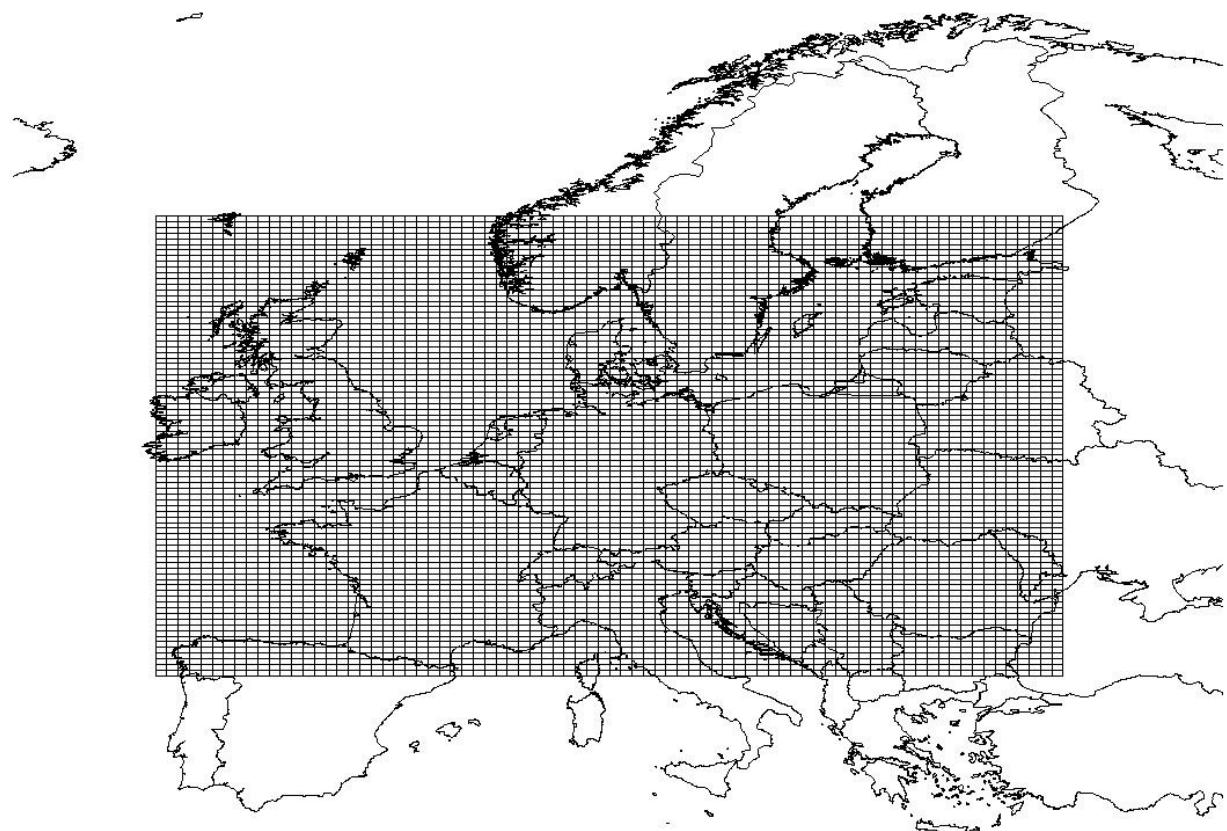


Abbildung 9: REM/CALGRID-Modellgebiet mit einer Maschenweite von 0.25° Breite und 0.5° Länge.

4.2. Statistische Maße

Zur Evaluierung der Modellergebnisse werden folgende Maße verwendet:

- Scatterdiagramme
- Beobachteter (O) und berechneter (C) Mittelwert:

$$O_{Mean} = \frac{1}{N} \sum_i O_i, i = 1, N; N = \text{Anzahl der Simulationsstunden, bzw. Simulationstage}$$

$$C_{Mean} = \frac{1}{N} \sum_i C_i, i = 1, N; N = \text{Anzahl der Simulationsstunden, bzw. Simulationstage}$$

- Standard-Abweichung, beobachtet (O) und berechnet (C):

$$\sigma_O = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_i (O_i - O_{Mean})^2}, i = 1, N$$

$$\sigma_C = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_i (C_i - C_{Mean})^2}, i = 1, N$$

- Mittlere Abweichung, MB (Bias):

$$MB = \frac{1}{N} \sum_i (C_i - O_i), i = 1, N$$

- Mittlere normierte Abweichung, MNB:

$$MNB = \frac{1}{N} \sum_i (C_i - O_i) / O_i, i = 1, N$$

- Mittlerer absoluter Fehler, MAF:

$$MAF = \frac{1}{N} \sum_i |(C_i - O_i)|, i = 1, N$$

- Mittlerer normierter absoluter Fehler, MNAF:

$$MNAF = \frac{1}{N} \sum_i |(C_i - O_i)| / O_i, i = 1, N$$

- Normierter mittlerer quadratischer Fehler, NMQF:

$$NMQF = \left[\frac{1}{N} \sum_i (C_i - O_i)^2 \right] / (O_{Mean} C_{Mean}), i = 1, N$$

- Standardabweichung der Residuen, SDR:

$$SDR = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_i [(C_i - O_i) - MB]^2}, i = 1, N$$

- Pearson Korrelationskoeffizient, PCR:

$$PCR = \frac{PCR_1}{\sqrt{PCR_2 PCR_3}}$$

$$PCR_1 = \sum_i (O_i - O_{Mean})(C_i - C_{Mean}), i = 1, N, PCR_2 = \sum_i (O_i - O_{Mean})^2, i = 1, N$$

$$PCR_3 = \sum_i (C_i - C_{Mean})^2, i = 1, N$$

- % der Berechnungen innerhalb eines Faktor 2 bezogen auf die Messung
- % der Berechnungen innerhalb von +/- 50% bezogen auf die Messung
- % der Berechnungen innerhalb von +/- 30% bezogen auf die Messung
- Verfügbarkeit der Messung in %

4.3. Anwendung von REM/CALGRID auf das Jahr 1995

4.3.1. Vergleich mit Messungen in Deutschland

4.3.1.1. Zeitreihen

Es ist nahe liegend, dass in einer Langzeitanwendung nicht mehr das Modellverhalten an mehreren hundert Stationen diskutiert werden kann, sondern dass man sich auf mittlere Aussagen beschränken muss. Deshalb wurden aus der Vielzahl der zur Verfügung stehenden Stationen nur drei Beispiele ausgewählt, für die berechnete und beobachtete Zeitreihen diskutiert werden.

Abbildung 10 bis Abbildung 12 zeigen die für 1995 berechneten täglichen Maximalwerte, Mittelwerte und höchste gleitende 8-Stundenmittelwerte für Ozon an den ländlichen Stationen Waldhof und Deuselbach sowie an der städtischen Hintergrundstation Berlin-Nansenstraße. Der über das Jahr beobachtete Verlauf dieser täglichen Kenngrößen wird an den ausgewählten Stationen gut nachvollzogen. An den ländlichen Stationen erkennt man eine Tendenz zur Unterschätzung der beobachteten Ozonkonzentrationen im Winter und eine leichte Überschätzung im Sommer. An der Stadtstation Nansenstraße werden die beobachteten Ozonwerte winters wie sommers etwas überschätzt.

Auch bei den NO₂-Tagesmittelwerten wird der gemessene Jahresverlauf an den Landstationen mit hohen Werten im Winter und niedrigeren Werten im Sommer an den drei ausgewählten Stationen vom Modell gut nachvollzogen (Abbildung 13). Vor allem in Deuselbach, aber teilweise auch in Waldhof werden die gemessenen Wintertagesmittel etwas überschätzt. Der an den Landstationen deutliche Jahresgang ist an der Stadtstation Berlin-Nansenstr. weitaus weniger ausgeprägt. Hier unterschätzt das Modell an den meisten Tagen des Jahres.

Abbildung 14 zeigt die Zeitreihen der berechneten und gemessenen PM10-Tagesmittelwerte für die drei ausgewählten Stationen. Das Grundniveau wird vom Modell an den ländlichen Stationen reproduziert. An der Stadtstation dagegen wird PM10 generell unterschätzt. Der gemessene PM10-Konzentrationsverlauf ist gekennzeichnet durch zeitlich begrenzte Konzentrationsanstiege ausgehend von einem niedrigen Niveau auf hohe Spitzenwerte gefolgt von einem steilen Konzentrationsabfall zurück auf ein niedrigeres Niveau. Diese kurzfristigen Spitzenwerte treten in der Modellrechnung nicht auf, was ein Hinweis auf fehlende Prozesse und/oder fehlende Emissionen ist. Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass die gegenwärtige PM10-Modellierung keine Parametrisierung der Staubaufwirbelung enthält. Staubaufwirbelung ist nur sehr schwer zu modellieren, da dieses Phänomen von den meteorologischen Bedingungen und der Art und dem Zustand des Untergrunds abhängt. Gegenwärtig existieren noch keine Ansätze zur Modellierung von Staubaufwirbelung, die in einem Langfristmodell wie REM/CALGRID verwendet werden können. Dies betrifft sowohl den Prozess der Staubaufwirbelung selbst als auch die Parametrisierung des Emissionsflusses in Abhängigkeit von der Bodenbeschaffenheit. In städtischen Gebieten wird Staubaufwirbelung hauptsächlich durch den Straßenverkehr und Bautätigkeit verursacht. Auch diese zum Teil zeitabhängigen Quellen werden in den Modellrechnungen wegen der fehlenden Datengrundlage noch nicht berücksichtigt.

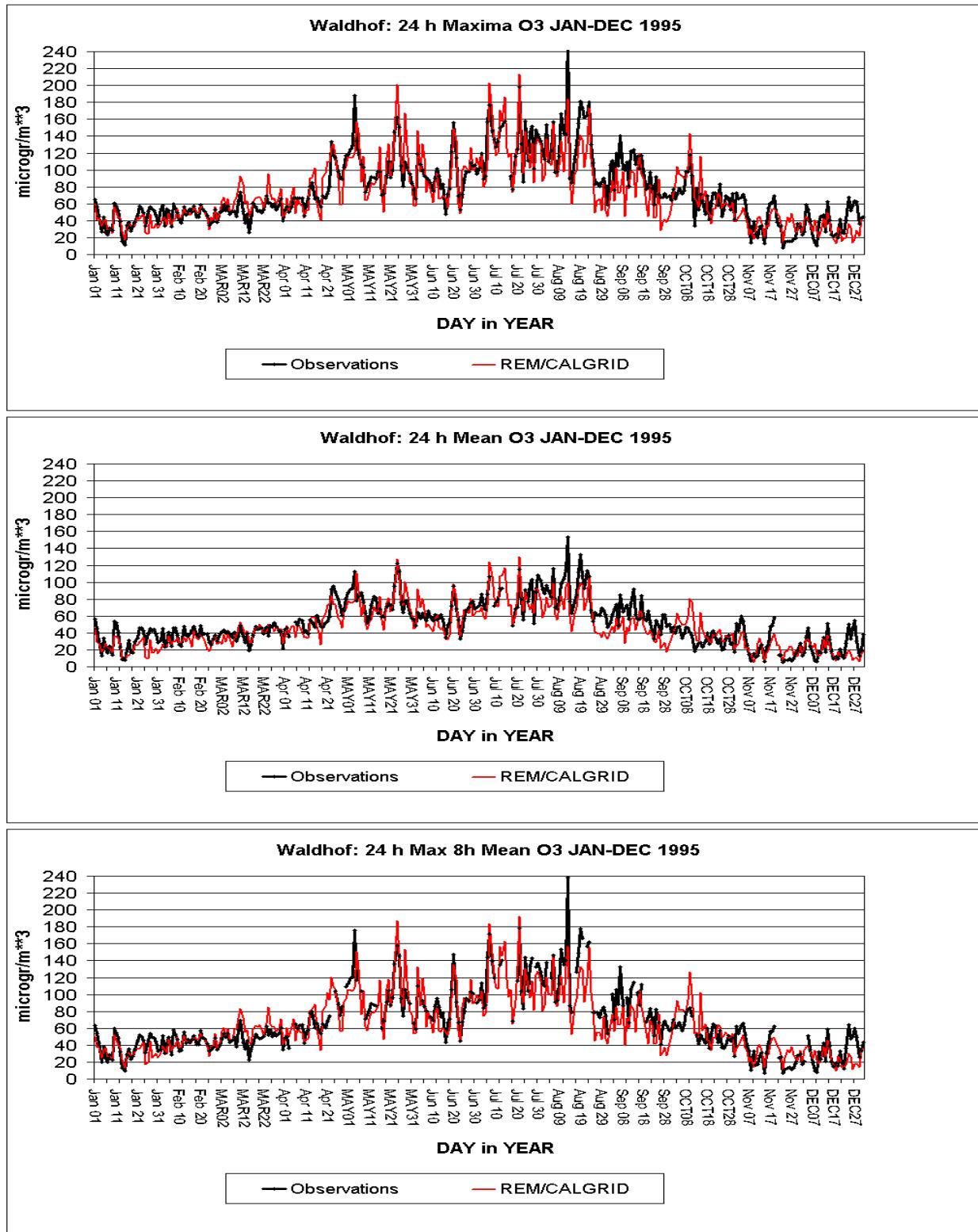


Abbildung 10: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Waldhof, 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.

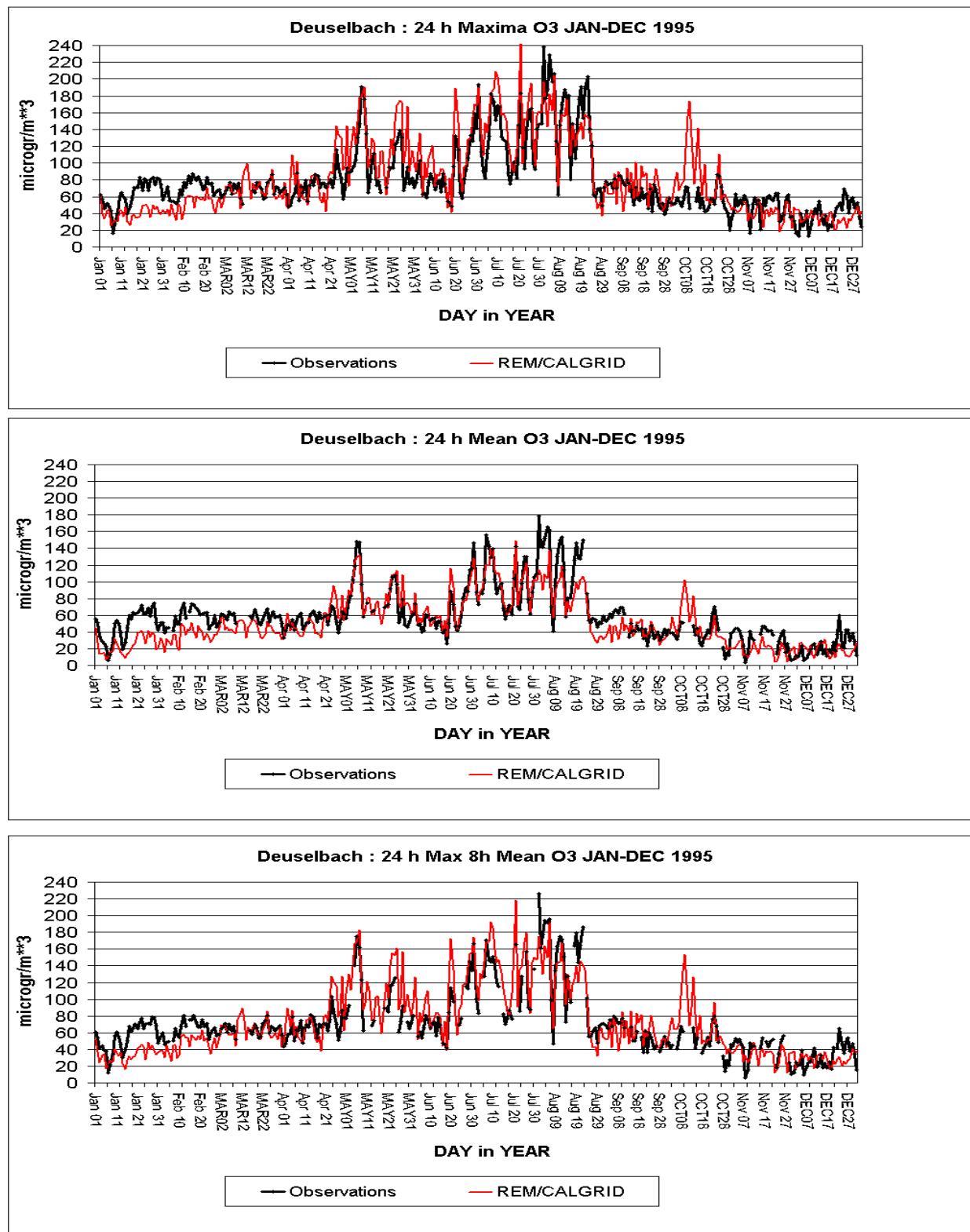


Abbildung 11 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Deuselbach, 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.

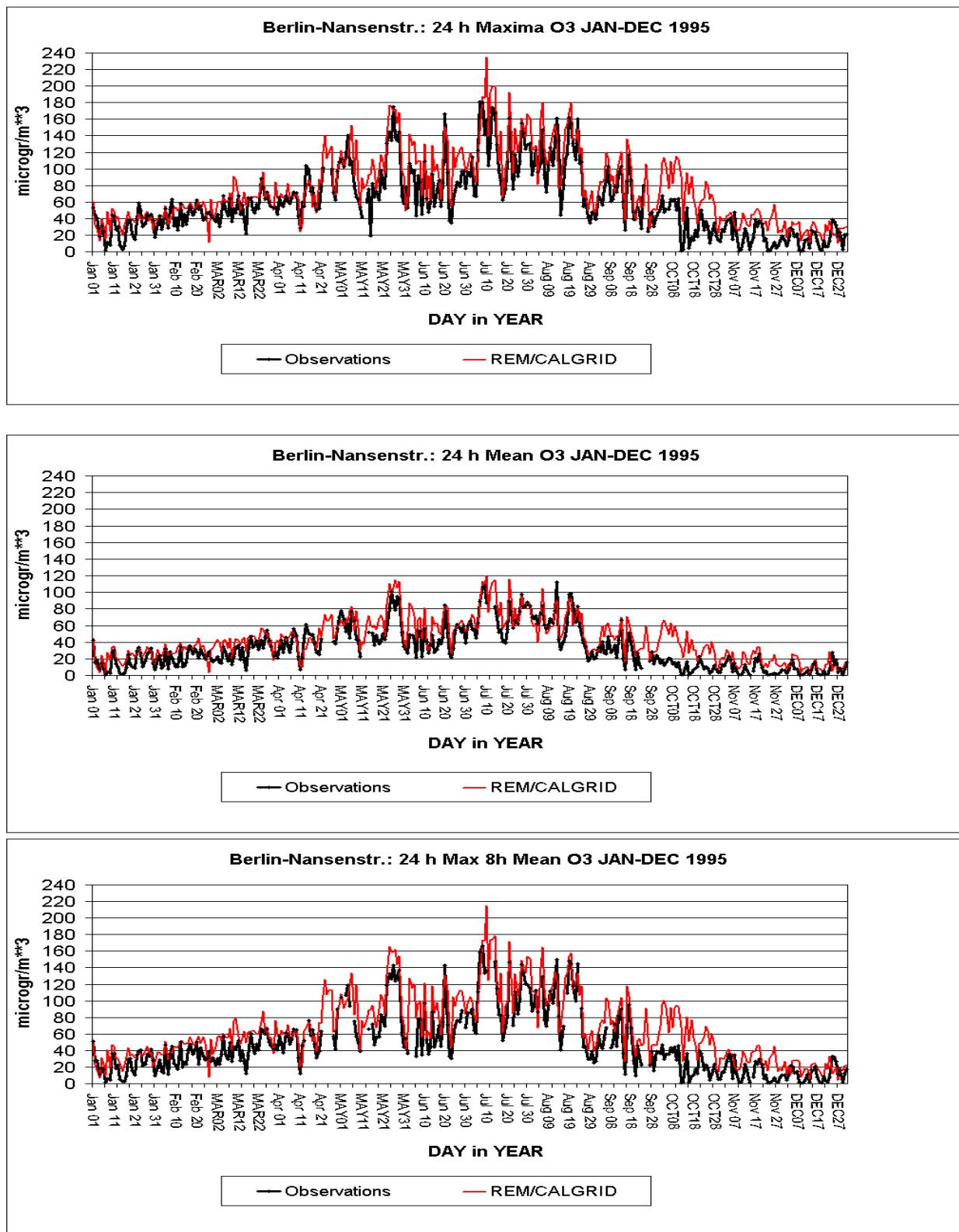


Abbildung 12: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in der Berliner Nansenstr., 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Städtische Hintergrundstation Berlin.

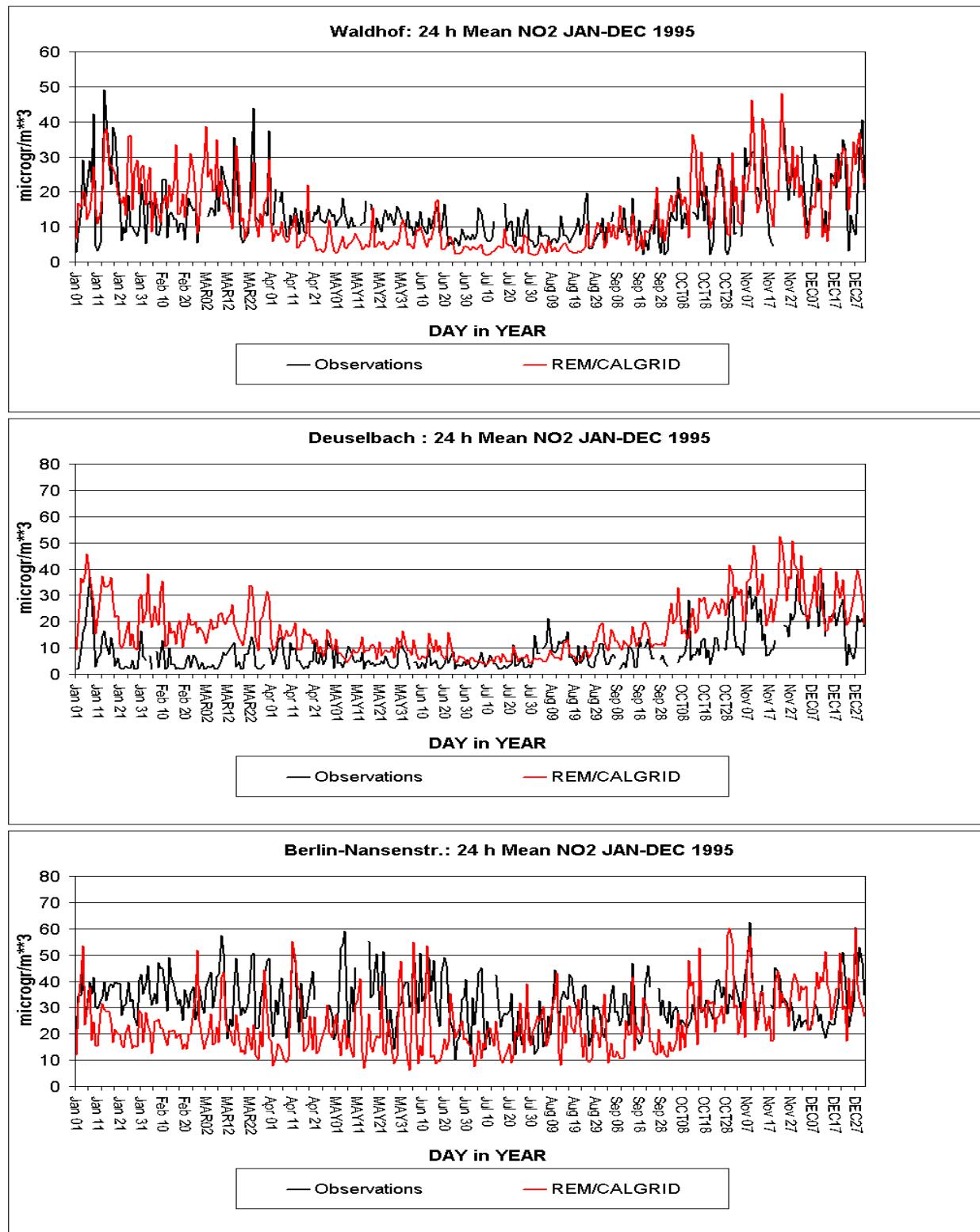


Abbildung 13: Berechnete und beobachtete NO₂-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1995. NO₂-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

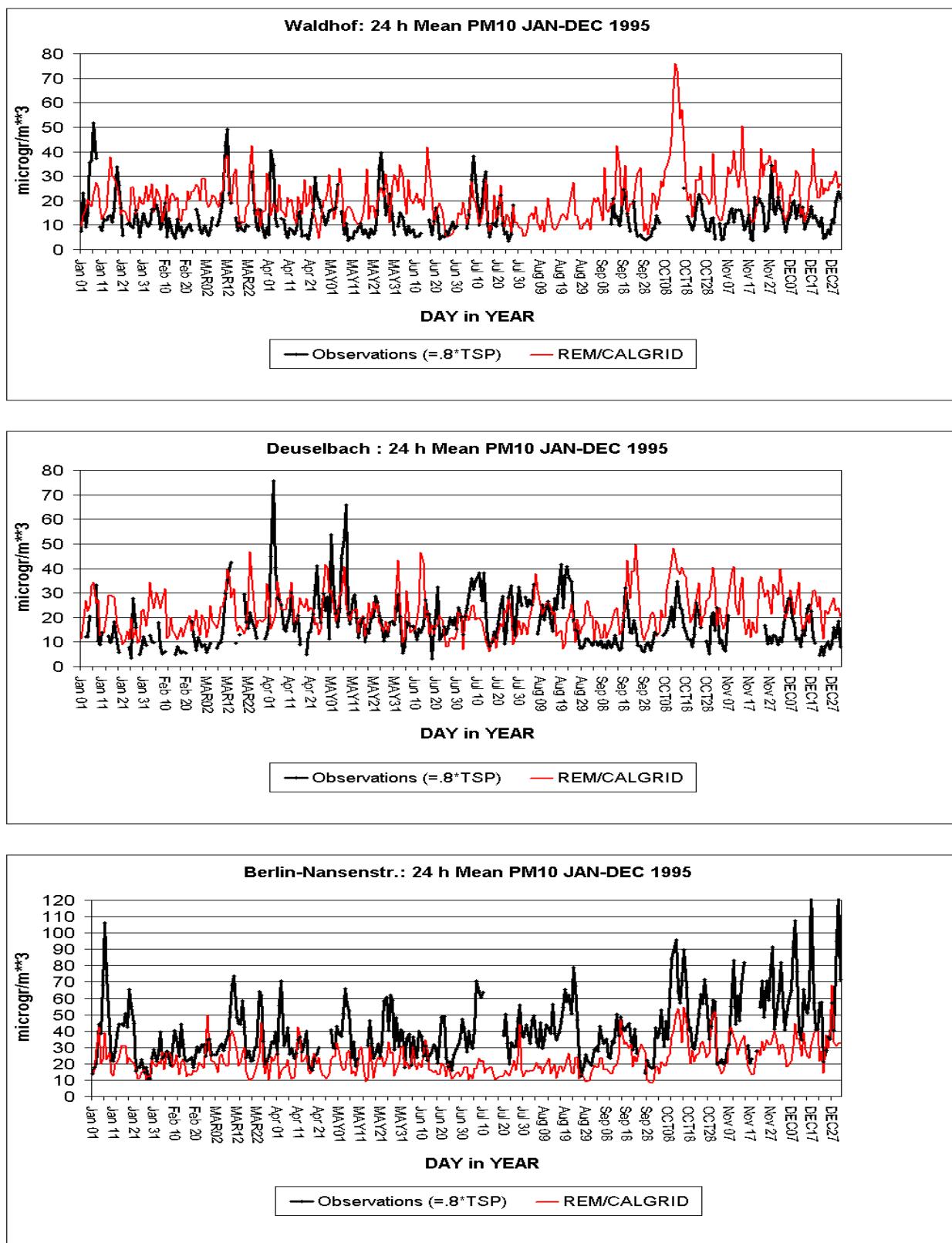


Abbildung 14: Berechnete und beobachtete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1995. PM10-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: $\text{PM10} = 0.8 \text{ TSP}$.

4.3.1.2. Streudiagramme

Der Vergleich der Modellergebnisse mit der Gesamtheit der Stationsmessungen erfolgt mit Hilfe von Streudiagrammen. Die Verteilung der berechneten und gemessenen Ozontageswerte für die ländlichen Stationen zeigt die Abbildung 15. Bei allen Größen kommt es im unteren und mittleren Bereich zu einer Überschätzung, im hohen Bereich aber zu einer Unterschätzung der gemessenen Größen. Die Zusammenfassung der Daten zu Monatsmittelwerten zeigt die Abbildung 16. Es ist offensichtlich, dass die niedrigeren Sommermittelwerte überschätzt, die hohen sommerlichen Monatsmittel aber eher unterschätzt werden. Auch bei den höheren Wintermonatsmitteln neigt das Modell zur Unterschätzung. In Abbildung 17 wird zusätzlich noch die Verteilung der Ozonmonatsmittelwerte für die Stadtstationen gezeigt. An den Stadtstationen wird Ozon vor allem im Sommer nahezu an allen Stationen überschätzt (siehe auch Berlin-Nansenstr., Abbildung 12). Die ist nicht weiter verwunderlich, da die hier gewählte Auflösung des Modells von circa $25 \times 25 \text{ km}^2$ nicht ausreichend ist, um die Emissionsstruktur im Bereich von Städten aufzulösen. Daher werden Messungen in ländlichen Regionen, wo die Emissionsstruktur im Allgemeinen nicht von starken horizontalen Gradienten geprägt ist, bei großräumigen Modellanwendungen immer besser modelliert. Infolge dieses Skalenproblems sind städtische Stationen zur Evaluierung großräumiger Modellrechnungen nur sehr eingeschränkt geeignet.

Abbildung 18 zeigt die gemessene und berechnete Verteilung der NO_2 -Monatsmittel an den Landstationen. Die höheren Wintermonatsmittel sind bei Messung und Rechnung deutlich zu erkennen. Ausgeprägte Überschätzungen des Modells gibt es bei den Winterwerten. In den Sommermonaten dagegen kommt es zu Unterschätzungen der beobachteten Monatsmittel. Die Stadtstationen werden bei NO_2 nicht weiter betrachtet, da die meisten dieser Stationen, die oft sehr vom lokalen Verkehr beeinflusst sind, einen nur sehr geringe räumliche Repräsentativität besitzen und daher in der großräumigen Modellskala nicht aufgelöst werden können. Bei den NO_2 -Jahresmittelwerten der ländlichen Stationen werden die niedrigen NO_2 -Jahresmittel tendenziell eher überschätzt, die die hohen Jahresmittel eher unterschätzt (Abbildung 19).

Das Streudiagramm der berechneten und gemessenen PM_{10} -Jahresmittel zeigt die Abbildung 20 unterteilt in Stadt- und Landstationen. Es ist offensichtlich, dass die höchsten PM_{10} -Jahresmittel in den Stadtgebieten gemessen werden. Diese Skala kann mit der hier verwendeten Maschenweite nicht dargestellt werden. Dies ist ein wesentlicher Grund für die geringe Übereinstimmung der Modellergebnisse für die meisten dieser Messungen. Insbesondere die sehr hohen städtischen Messwerte werden vom Modell stark unterschätzt. Ein weiterer Grund liegt sicherlich in der Nichtberücksichtigung der Staubaufwirbelungsprozesse was schon bei der Diskussion der Zeitreihen angesprochen wurde (Kap. 4.3.1.1). Die Modellgüte ist bei den Landstationen deutlich höher, obwohl auch bei diesen Stationen große Abweichungen zwischen Messung und Rechnung auftreten. Die Abbildung 21 zeigt die gemessenen und berechneten PM_{10} -Monatsmittel an den Landstationen unterteilt nach Winter- und Sommermonaten. Bei den Sommermonatsmitteln ist eine Tendenz zur Unterschätzung, bei den Wintermonatsmitteln eine Tendenz zur Überschätzung erkennbar. Im Winter spielen Staubaufwirbelungsprozesse sicherlich eine geringere Rolle als im Sommer, wo die meteorologischen Bedingungen (erhöhte turbulente Bedingungen, trockene Böden) und die menschlichen Aktivitäten (Bodenbearbeitung, Bautätigkeit) Staubaufwirbelung begünstigen. Die Überschätzung im Winter kann daher auch mit zu geringem turbulenten Austausch im Modell zusammen hängen. Auf diesen Punkt wird noch später eingegangen. Bei der sommerlichen Unterschätzung muss auch berücksichtigt werden, dass in der gegenwärtigen Modellversion keine organischen Aerosole betrachtet werden, die vor allem im Sommer einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zur Aerosolbelastung liefern können (Hüglin, 2000). Eine weitere Unsicherheit bei der hier durchgeführten Modellbewertung liegt in dem Umstand, dass nur TSP-Messungen zur Verfügung standen, die mit einem konstanten Faktor in PM_{10} umgerechnet

wurden. Ob und wie stabil dieser Faktor ist, kann hier nicht beurteilt werden. Hinzu kommt, dass die Messunsicherheit bei der Bestimmung von PM-Massenkonzentrationen sehr hoch sein kann. Vergleichsstudien in EU-Ländern zeigten signifikante Unterschiede zwischen den Ergebnissen manueller PM-Probensammler, die in der Größenordnung von 30% lagen (EU, 2003, siehe auch Visser et al., 2001).

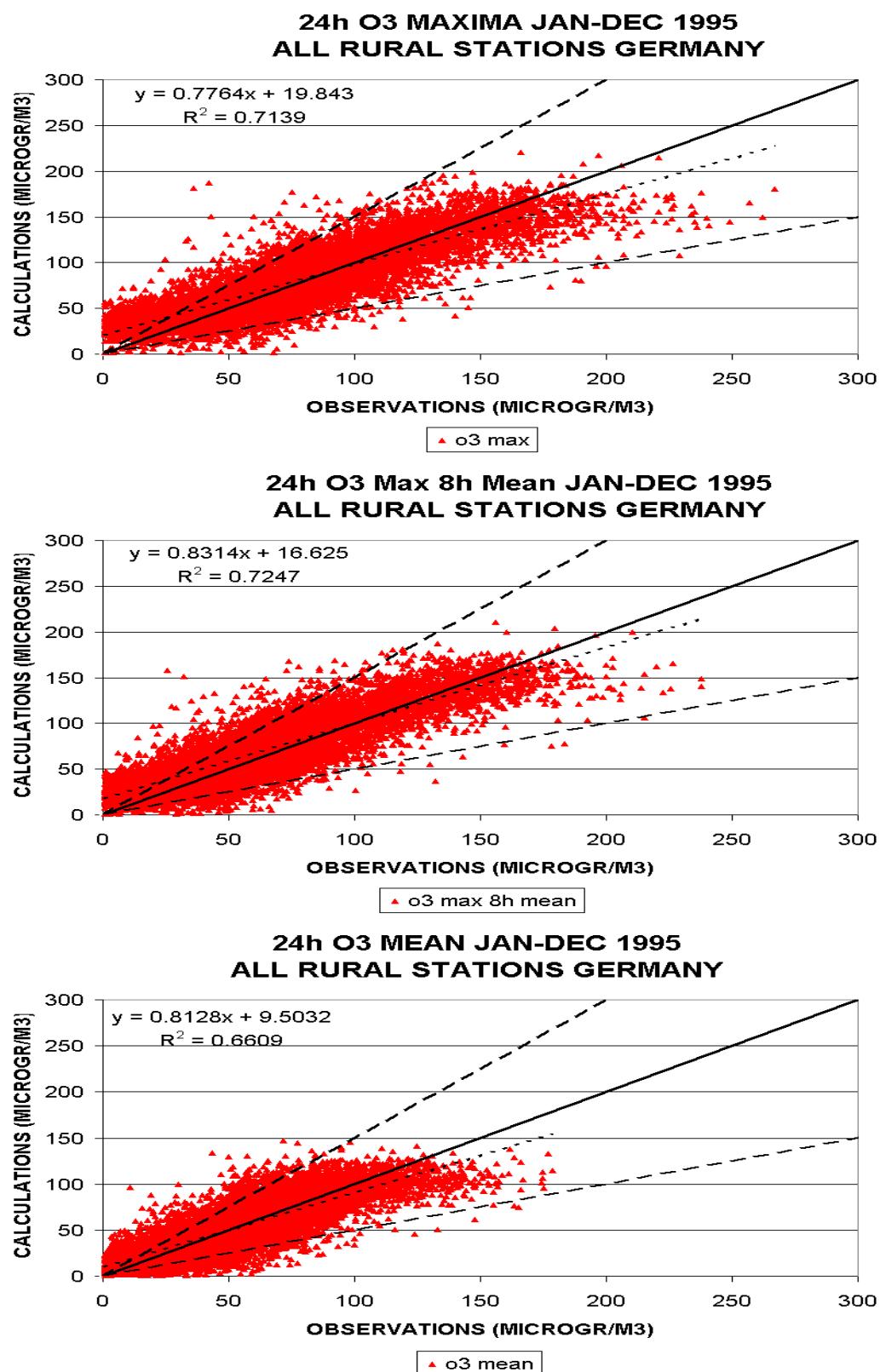


Abbildung 15: Gemessene und berechnete Verteilung der Ozontageswerte 1995. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert, in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen Ozonstationen der Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

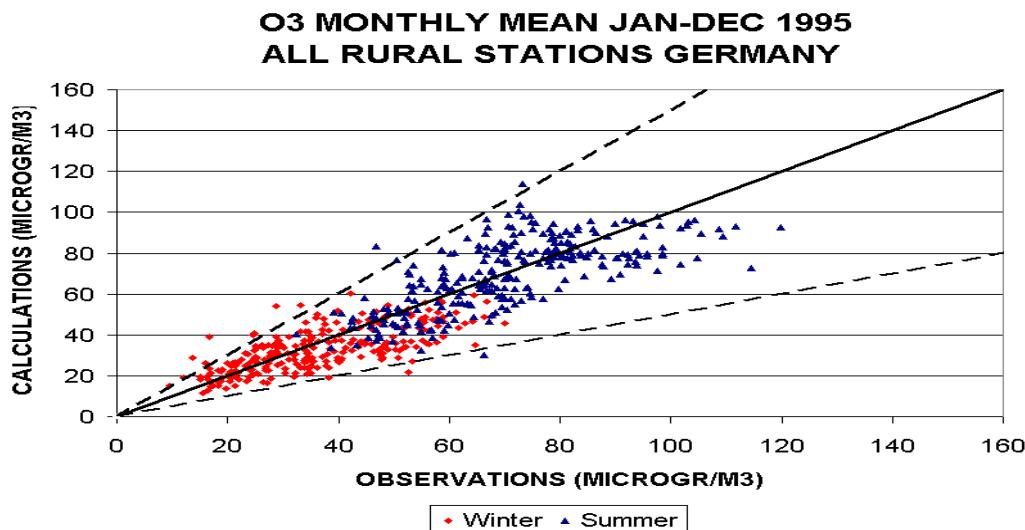


Abbildung 16: Gemessene und berechnete Ozonmonatsmittel 1995 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

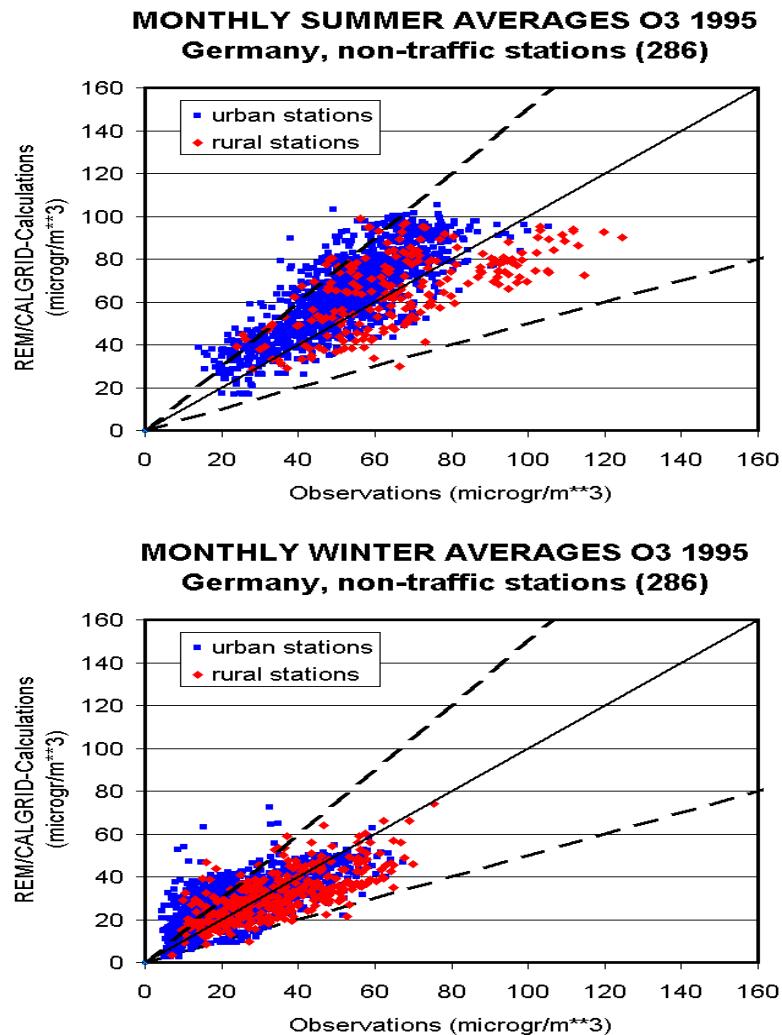


Abbildung 17: Wie Abbildung 16, aber zusätzlich für die Stationen der Kategorie Stadt („urban“).

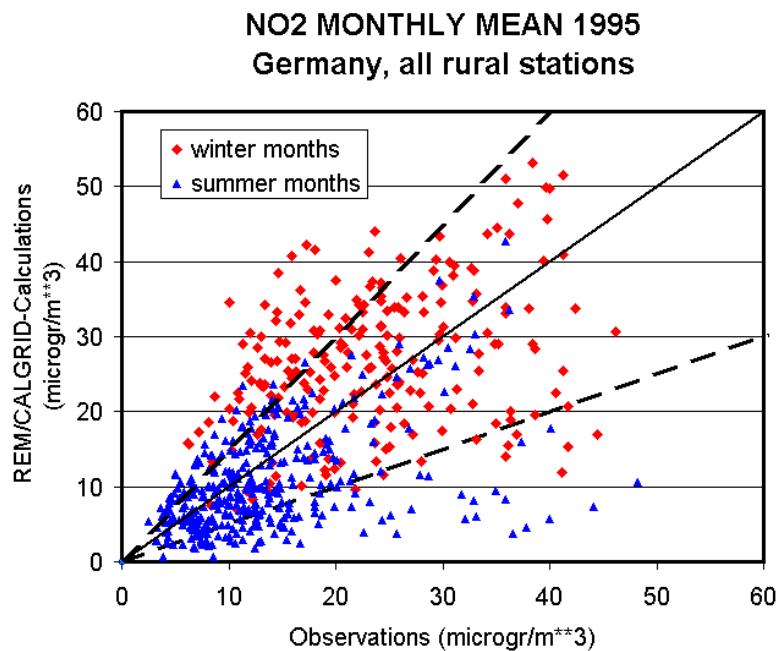


Abbildung 18: Gemessene und berechnete Verteilung der NO₂-Monatsmittel 1995 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO₂-Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

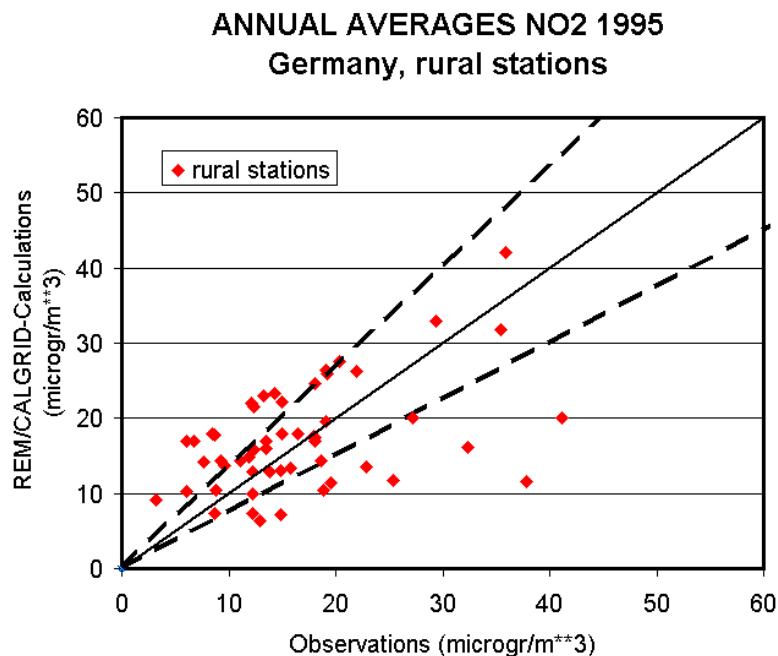


Abbildung 19: Gemessene und berechnete Verteilung der NO₂-Jahresmittel 1995 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO₂-Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an.

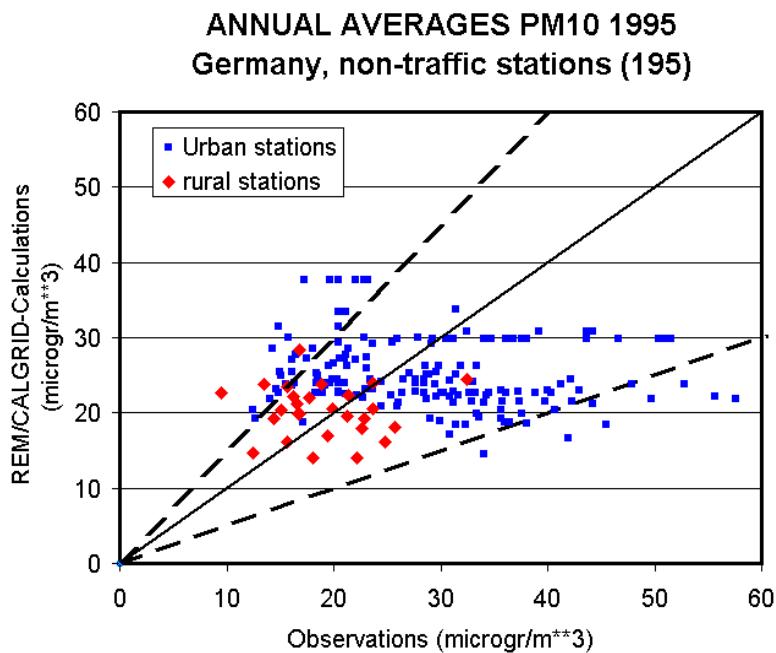


Abbildung 20: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Jahresmittel 1995 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie Land (rural) und Stadt (urban). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: $\text{PM10} = 0.8 \text{ TSP}$.

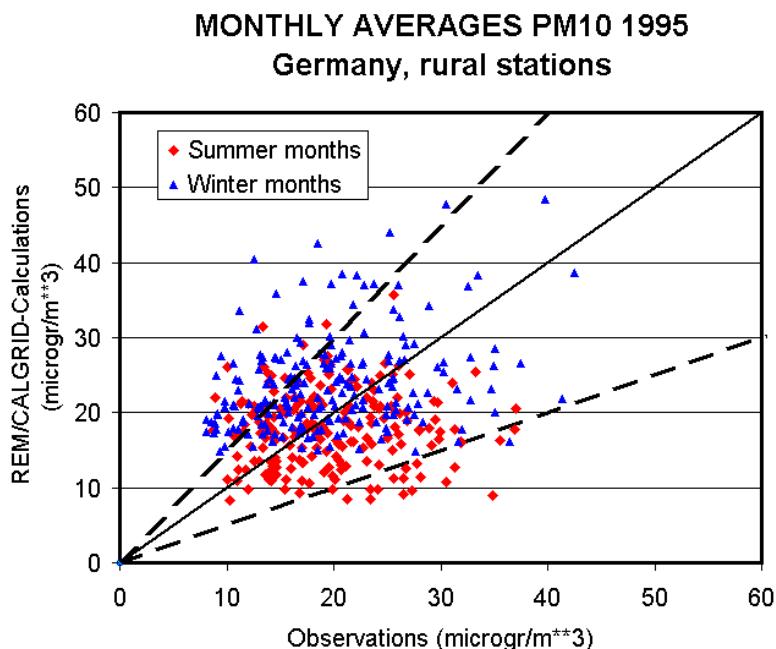


Abbildung 21: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Monatsmittel 1995 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, getrennt nach Winter- und Sommermonaten. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie Land (rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: $\text{PM10} = 0.8 \text{ TSP}$.

4.3.1.3. Mittlere Tagesgänge

Neben den Streudiagrammen erlaubt auch die Verwendung mittlerer Tagesgänge eine Einschätzung der Güte der Modellergebnisse. Solche Tagesgänge wurden getrennt nach Stadt- und Landstationen sowie nach Winter- und Sommermonaten und für das ganze Jahr erstellt.

Abbildung 22 und Abbildung 23 zeigen die mittleren Ozontagesgänge für die ländlichen und die städtischen Stationen. Im Jahresmittel werden an den ländlichen Stationen die nächtlichen Ozonminima leicht unter-, die nachmittäglichen Ozonmaxima leicht überschätzt. Trennt man Winter- und Sommermonate, wird deutlich, dass die nächtliche Unterschätzung vor allem im Winter auftritt während die Überschätzung der Ozonmaxima ein Sommerproblem ist. Die Überschätzung fällt zeitlich mit dem Anwachsen der Mischungsschichthöhe zusammen. In der hier verwendeten dynamischen Modellkonfiguration ist der zeitliche Verlauf der Mischungsschichthöhe ein sehr sensibler Modellparameter. Aus den mittleren Tagesgängen lässt sich ableiten, dass die berechnete Mischungsschichthöhe unter Umständen zu schnell und zu hoch ansteigt, was mit einer schnellen Labilisierung der Modellatmosphäre einhergeht. Dieser Umstand muss in der weiteren Entwicklung des meteorologischen Datenaufbereitungssystems besonders beachtet werden. Die winterliche nächtliche Unterschätzung deutet darauf hin, dass die winterliche Modellatmosphäre nachts zu stabil ist. Dadurch wird weniger Ozon von oben nach unten gemischt wird, was eine zu starke Entleerung der Bodenschicht durch Abbau- und Depositionsprozesse nach sich zieht. An den Stadtstationen ist die Ozonproduktion generell zu hoch (Abbildung 23), was vor allem auf den bereits erwähnten Skaleneffekt zurück zu führen ist. Im Sommer werden daher auch nachts im Mittel zu hohe Ozonkonzentrationen berechnet. Tagsüber kommt das Mischungsschichtproblem noch verstärkend dazu. Aus den mittleren Tagesgängen für die Stadtstationen wird deutlich, dass eine Modellevaluierung anhand von Messungen eine sorgfältige Auswahl der zu verwendenden Stationen voraussetzt. Der Repräsentativitätsbereich einer Messstation muss dazu in etwa der Skala des Modells entsprechen, was bei den meisten städtischen Stationen für die hier diskutierte großräumige Modellanwendung nicht der Fall ist.

Die mittleren Tagesgänge für NO₂ zeigen die Abbildung 24 und Abbildung 25. An den Landstationen wird NO₂ im Jahresmittel nachts über- und tagsüber unterschätzt. Die nächtliche Überschätzung ist hauptsächlich ein Problem in den Wintermonaten. Auch hier zeigt sich, dass dem Modell durch die meteorologischen Daten im Mittel nachts eine zu stabile und tagsüber eine zu labile Schichtung vorgegeben wird. Bei den städtischen Stationen ist die NO₂-Unterschätzung während des Tages deutlich höher als bei den Landstationen, was wieder auf das Skalenproblem zurückgeführt werden kann, d.h. auf die Unterschätzung der Emissionsdichte am Ort der Messung infolge der großen Maschenweiten des Modells. Im Winter wirkt die im Mittel zu stabile nächtliche Schichtung dieser Unterschätzung entgegen. Die berechnete NO₂-Phase stimmt mit der beobachteten Phase gut überein.

Beim PM10 wird im Mittel an den ländlichen Stationen im Jahresmittel nur ein sehr geringer, im Sommer ein leichter Tagesgang mit einem Maximum am Nachmittag beobachtet (Abbildung 26). Auch in den Modellergebnissen ist der Tagesgang relativ gering, es werden aber nachts höhere PM10-Konzentrationen berechnet als während des Tages, was wieder auf die zu extremen Stabilitätsverhältnisse zurück zu führen ist. Auffällig ist die bedeutend größere Unterschätzung der beobachteten PM10-Konzentrationen während der Sommermonate. Dies wurde bereits bei den Streudiagrammen diskutiert. Wie beim NO₂ ist die Unterschätzung an den Stadtstationen infolge des Skalenproblems sehr viel ausgeprägter als an den Landstationen (Abbildung 27). Neben dem Skalenproblem muss beim PM10 auch noch das bereits diskutierte Problem der fehlenden Quellen berücksichtigt werden.

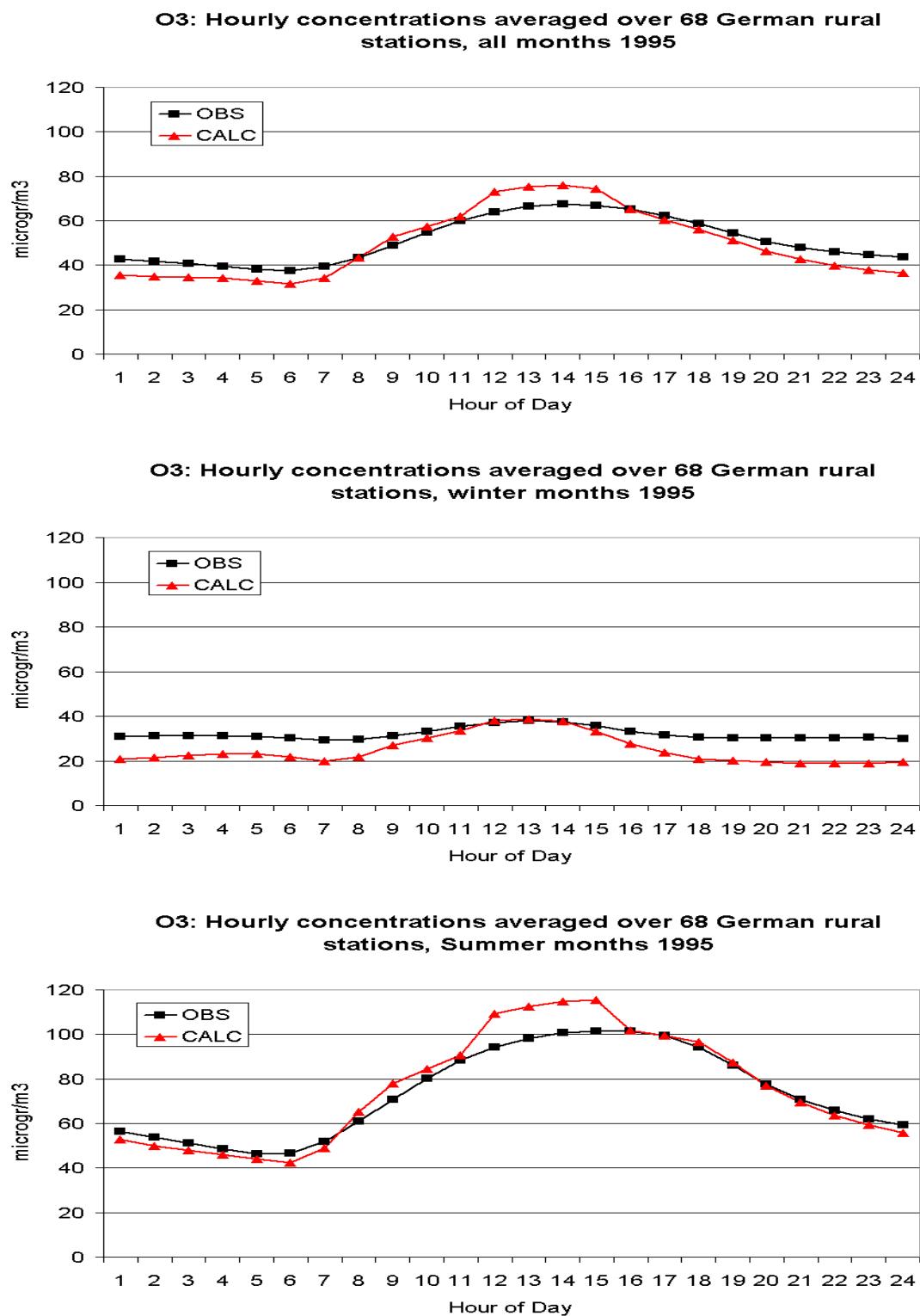


Abbildung 22: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere Ozontagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Ländliche Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

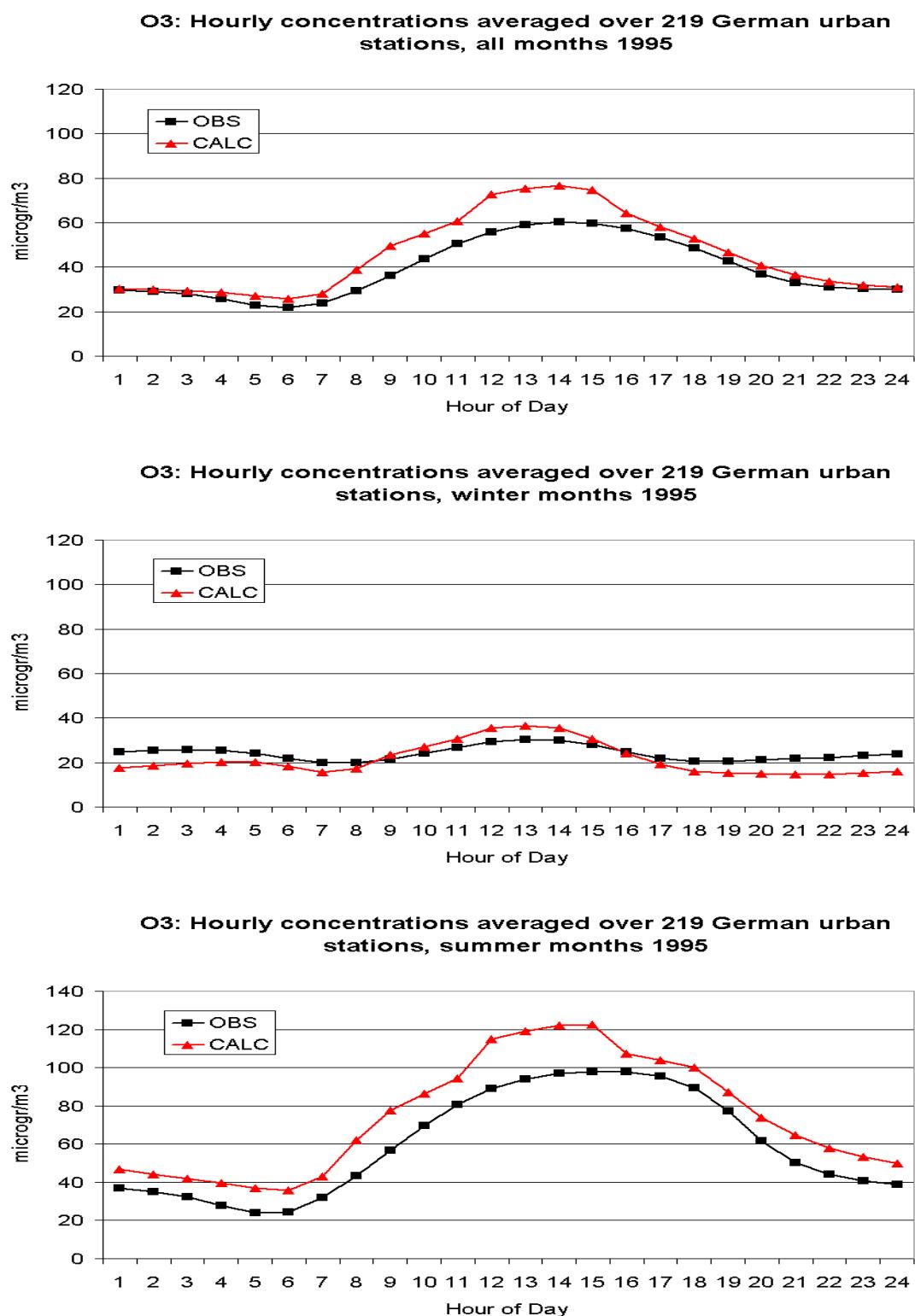
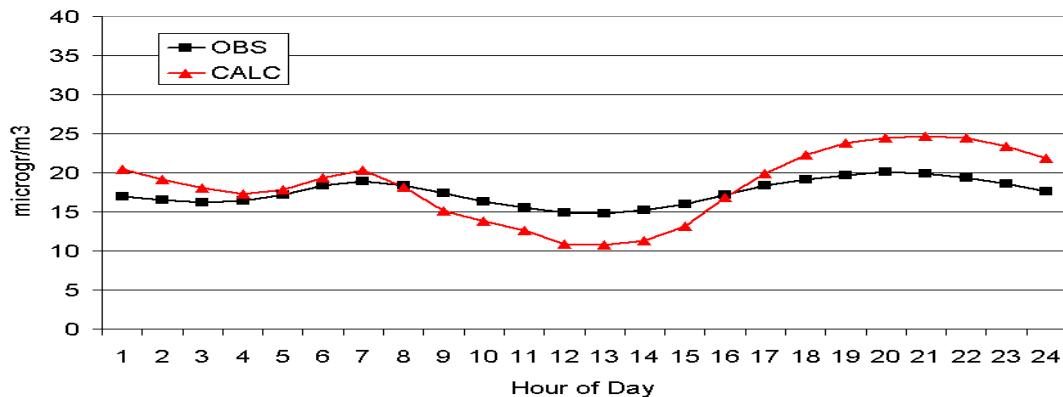
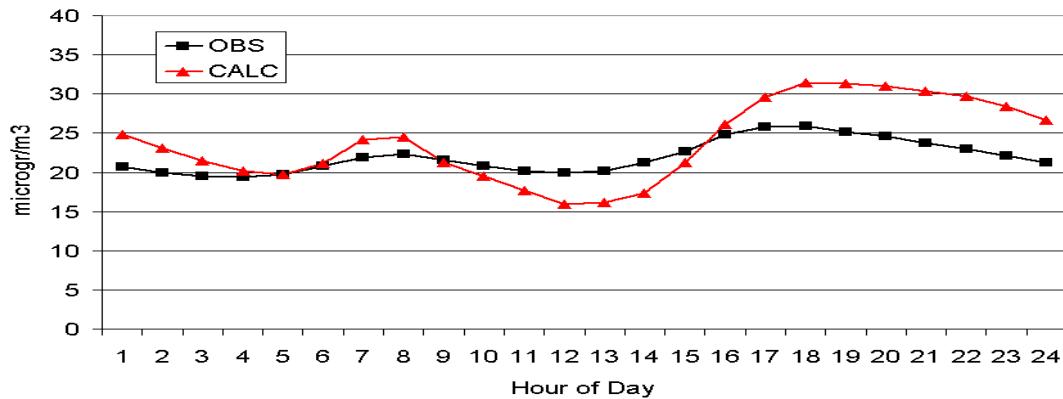


Abbildung 23: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere Ozontagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Städtische Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

NO₂: Hourly concentrations averaged over 62 German rural stations, all months 1995



NO₂: Hourly concentrations averaged over 62 German rural stations, winter months 1995



NO₂: Hourly concentrations averaged over 62 German rural stations, Summer months 1995

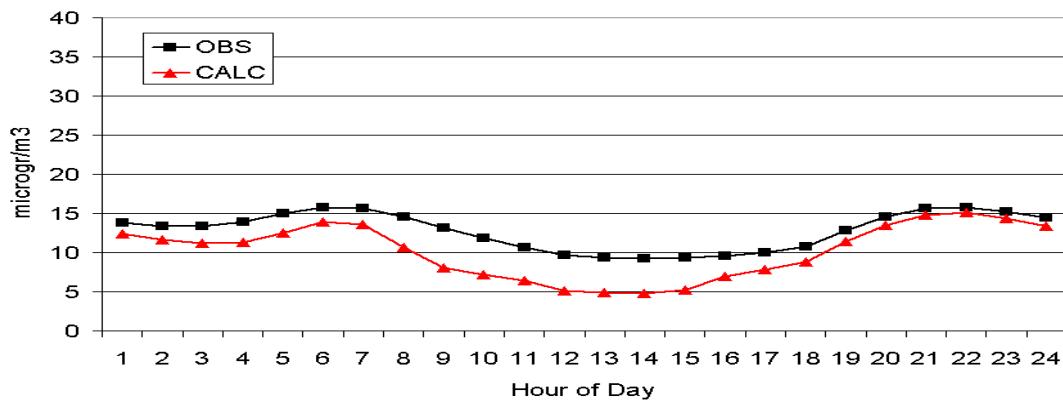


Abbildung 24: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere NO₂-Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Ländliche Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

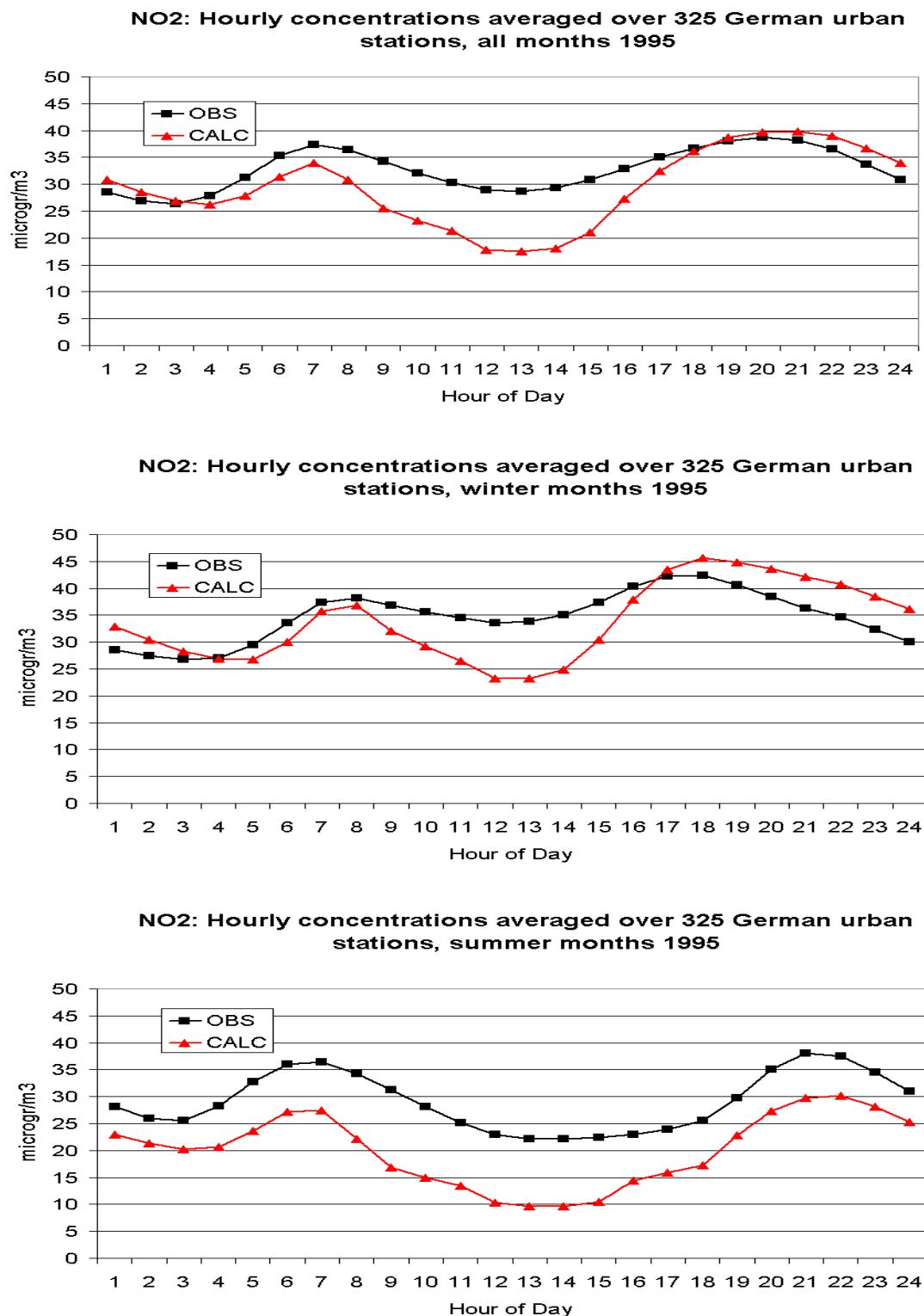


Abbildung 25: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere NO₂-Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Städtische Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

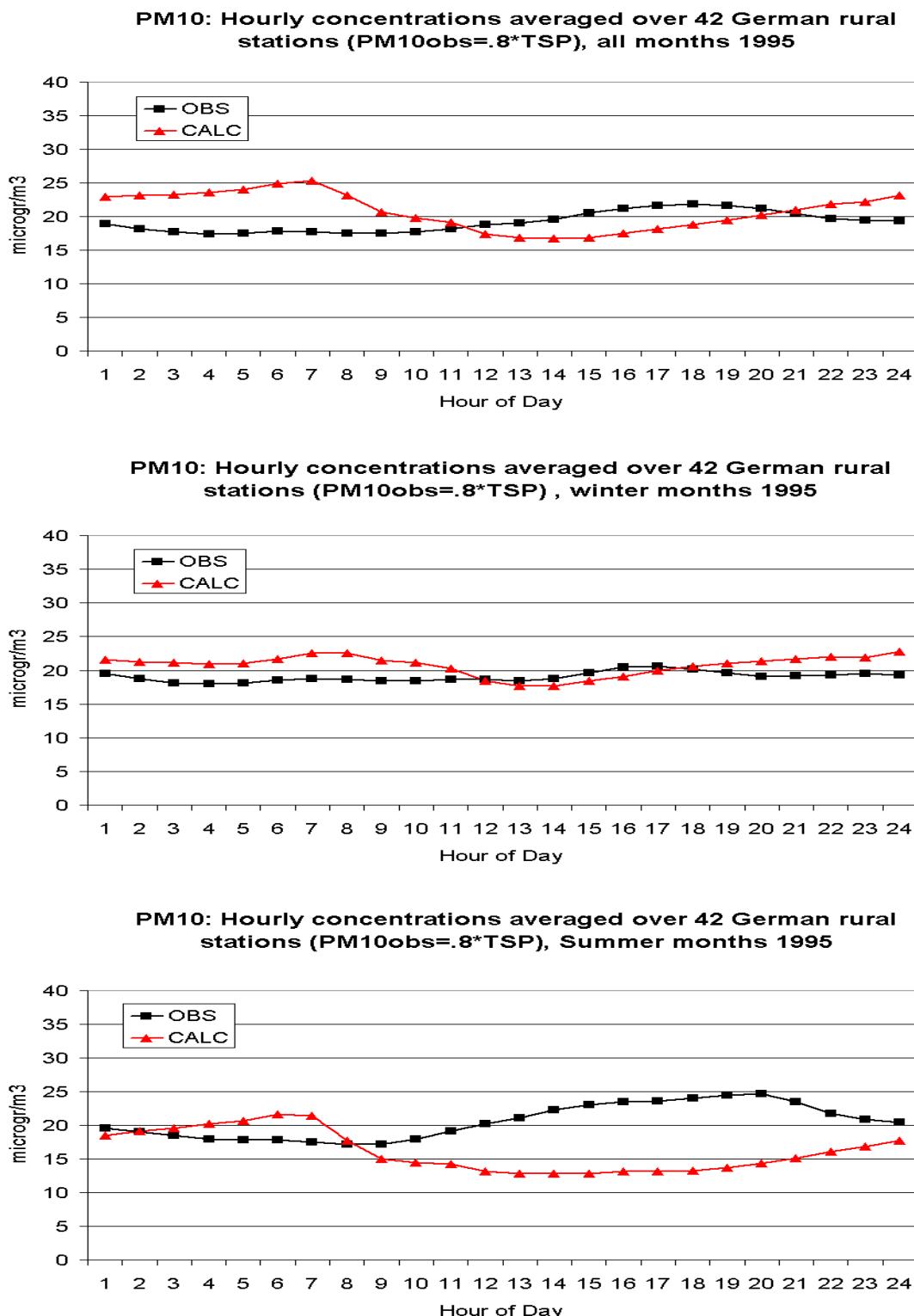


Abbildung 26: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere PM10-Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Ländliche Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

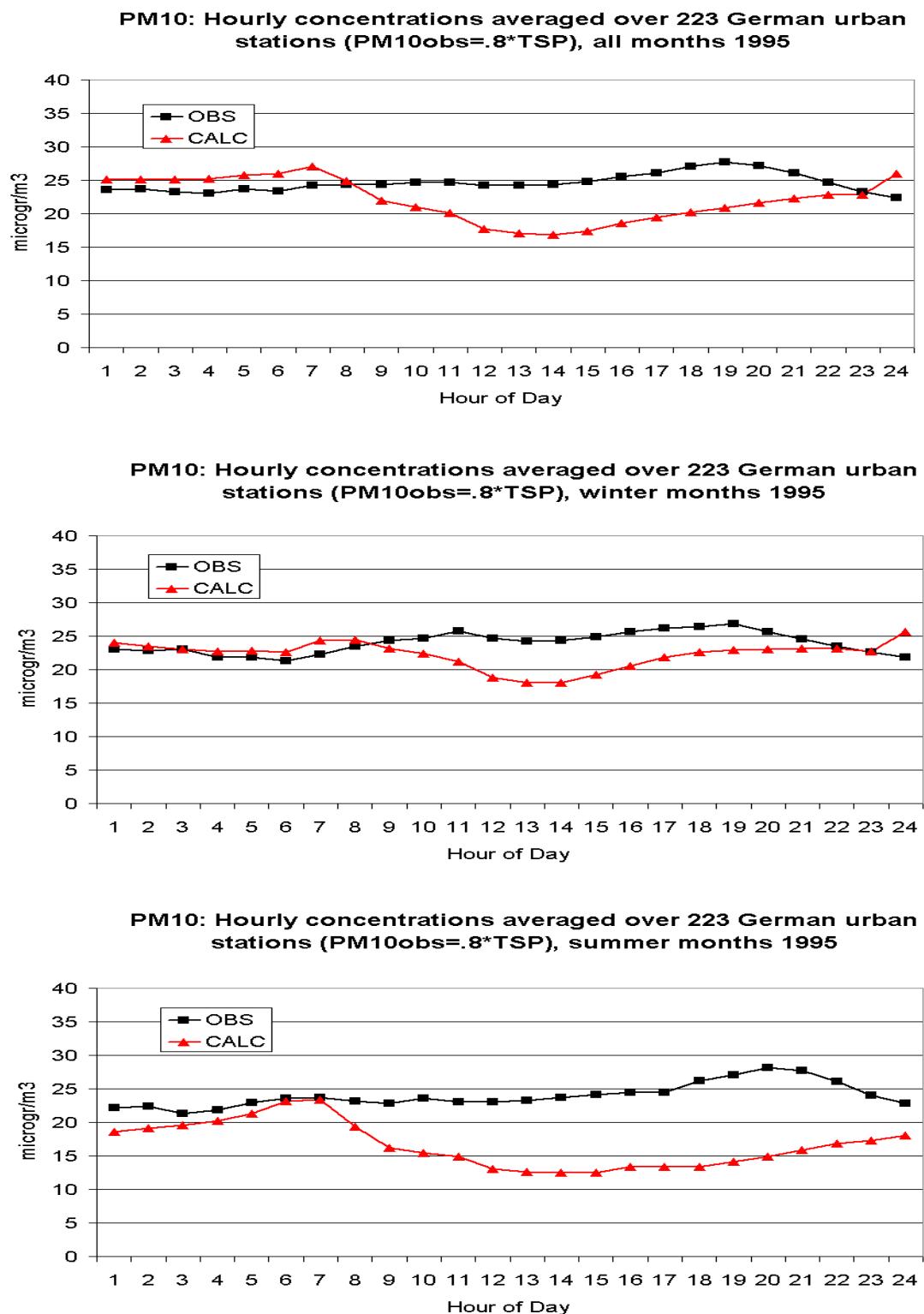


Abbildung 27: Berechnete (CALC) und beobachtete (OBS) mittlere PM10-Tagesgänge für das Jahr (oben), die Wintermonate (Mitte) und die Sommermonate (unten). Städtische Stationen in Deutschland. Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

4.3.1.4. Statistische Auswertung

Die statististische Auswertung wurde für die Tagesmittelwerte, beim Ozon zusätzlich noch für das Tagesmaximum jeden Tages gemacht. Die Statistik umfasst alle verfügbaren Stationen, wobei die Stationen tabellarisch in 3 Gruppen zusammengefasst werden:

- S Verkehrsnahe Stationen
- U Städtische, aber nicht verkehrsnahe Stationen. Dieser Gruppe wurden auch Stationen ohne Kennung zugeordnet.
- R Ländliche Stationen

Die Einteilung wurde ohne weitere Prüfung vom Umweltbundesamt übernommen. Obwohl verkehrsnahe und städtische Stationen nicht ohne Prüfung der Repräsentativität für die Evaluierung eines großräumigen Modells verwendet werden können, wurden die statistischen Kennwerte mit erstellt, da eben diese Einschränkung gut an den statistischen Maßen erkennbar wird. Die verwendeten statistischen Maße wurden bereits in Kap. 4.2 definiert. Im Detail sind die statistischen Kenngrößen 1995 für jede Station im Anhang A zu finden. Die Tabelle 10 und die Tabelle 11 zeigen für die Ozontagesmittel und die täglichen Ozonmaxima die statistischen Kenngrößen im Mittel über alle Stationen der drei Gruppen. Insbesondere aus den Fehlermaßen BIAS (mittlere Abweichung), MNB (normierte mittlere Abweichung), MAF (mittlerer absoluter Fehler), MNAF (mittlerer normierter absoluter Fehler) wird offensichtlich, dass die Modellgüte für städtische und insbesondere für verkehrsnahe Stationen im Vergleich zu den ländlichen Stationen deutlich abfällt. Der Bias der Landstationen ist leicht negativ bei den Tagesmittelwerten, d.h. im Mittel wird das Ozontagesmittel leicht unterschätzt. Bei den Tagesmaxima dagegen ergibt sich eine mittlere Überschätzung von $2,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei den städtischen und insbesondere den verkehrsnahen Stationen werden Tagesmittel und Tagesmaxima stark überschätzt, was wegen des nicht der Modellauflösung entsprechenden Repräsentativitätsbereichs dieser Stationen auch nicht weiter verwunderlich ist. Der Korrelationskoeffizient r ist dagegen weniger sensitiv bezüglich des Stationstyps, da er im Wesentlichen vom zeitlichen Verlauf der betrachteten Größen abhängt. Bei den Beobachtungen ist der Unterschied zwischen den Ozontagesmittelwerten an den städtischen Stationen und denen an den verkehrsnahen Stationen relativ gering, was als Hinweis darauf gewertet werden kann, dass die Unterscheidung zwischen städtischen und verkehrsnahen Stationen nicht sehr stringent ist. Bei den berechneten Mittelwerten erkennt man an den mittleren Größen kaum einen Unterschied zwischen den Stationskategorien, da das Modell in der hier benutzten Maschenweite die Kategorien städtisch und verkehrsnahe nicht auflösen kann.

Während bei den Ozongrößen aus den statistischen Maßen sofort offensichtlich wird, dass nur die ländlichen Stationen zur Evaluierung großräumiger Modellrechnungen herangezogen werden können, ist dies beim NO₂ nicht ganz so eindeutig (Tabelle 12), da die Modellergebnisse für NO₂ auch an den ländlichen Stationen nicht die Güte derjenigen für Ozon haben. Dies sieht man insbesondere daran, dass sehr viel weniger NO₂-Tagesmittelwerte innerhalb eines Faktors 2 des beobachteten Mittelwerts liegen als beim Ozon. Allerdings zeigt der Bias deutlich, dass an den Stadtstationen und insbesondere wieder an den verkehrsnahen Stationen die beobachteten NO₂-Tagesmittelwerte unterschätzt werden. Auch der Korrelationskoeffizient ist für die Stadt- und insbesondere die verkehrsnahen Stationen sehr viel niedriger als für die Landstationen, so dass auch hier deutlich wird, dass die Modellskala nicht zur Darstellung dieser Stationen geeignet ist.

Es sei angemerkt, dass die Vielzahl der der Kategorie Stadt zugeordneten NO₂-Stationen eine sehr inhomogene Menge darstellen. Abbildung 28 zeigt dies in einen Vergleich der Modellskala mit der Messskala für den Großraum Berlin anhand den berechneten und gemessenen NO₂-Jahresmittelwerte in diesem Gebiet. Das Stadtgebiet von Berlin wird in der Modellanwendung von vier Gitterboxen überdeckt. Diese Boxen erstrecken sich aber in dem hier verwendeten geographischen Gitter von 0.5° Länge und 0.25° Breite noch weit in das Berliner Umland, so dass

die Berliner Emissionen im Modell über ein sehr viel größeres Gebiet verteilt werden als in der Realität. Die dadurch bedingte Verminderung des Emissionsflusses bewirkt den oben diskutierten Skaleneffekt. Im Modell werden die höchsten NO₂-Jahresmittelwerte in der nordwestlichen der vier Berlin überdeckenden Gitterboxen berechnet. Die an den in dieser Box gelegenen Stationen gemessenen Konzentrationen sind in den innerstädtischen Bereichen höher, am Stadtrand aber niedriger als die Modellkonzentration. Alle diese Stationen werden der Kategorie Stadt zugeordnet. Die großen Konzentrationsunterschiede zwischen benachbarten Stationen zeigen den geringen Repräsentativitätsbereich dieser Stationen auf. Eine Modellevaluierung auf der Basis solcher Stationen ist daher nur möglich, falls die Modellskala dem Repräsentativitätsbereich der Stationen entspricht.

Auch beim PM10 zeigt die statistische Auswertung, dass die an den ländlichen Stationen gemessenen PM10-Konzentrationen geringfügig überschätzt, und die in den Stadtgebieten gemessenen Konzentrationen unterschätzt werden (Tabelle 13). Die ländliche Überschätzung ist eine Folge des bei den Tagesgängen (Kap. 4.3.1.3) diskutierten Stabilitätseffekts, der vor allem nachts zu einer Überschätzung führt. In den Stadtgebieten wird dieser Effekt durch die bereits beim NO₂ angesprochene Unterschätzung der lokalen Emissionsdichte überdeckt. In der Rechnung werden für die in Stadtgebieten gelegenen Stationen niedrigere Werte berechnet als für die Landstationen, was in aller Deutlichkeit auf das Skalenproblem hinweist: Eine Messstation direkt im Einflussbereich einer starken lokalen PM10-Quelle, z. B. eine stark befahrene Straße, wird als verkehrsnahe eingestuft, kann vom Modell aber nicht als solche erkannt werden, wenn das umliegende Emissionsniveau niedrig ist.

O3-Tagesmittel			
Stationstyp	ländlich	städtisch	Verkehrsnah
Anzahl der Stationen	68	219	55
Omean	51.05	39.09	35.20
Osigma	26.59	23.79	21.17
Cmean	49.55	45.83	48.75
Csigma	26.62	28.09	27.40
BIAS	-1.50	6.73	13.55
MNB	0.22	0.57	0.99
MAF	0.52	0.75	1.09
MNAF	1.61	3.19	5.62
MNQF	14.90	14.62	17.97
SDR	16.55	16.34	16.98
R	0.808	0.815	0.789
% in Faktor 2	84.88	79.43	71.51
% innerhalb +/-50%	77.07	65.72	53.03
% innerhalb +/- 30%	55.18	45.70	36.47
% Obs verfügbar	92.03	94.80	94.59

Tabelle 10: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher Ozonmittelwert 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge.

O3-Tagesmaximum			
Stationstyp	ländlich	städtisch	verkehrsnah
Anzahl der Stationen	68	219	55
Omean	76.84	70.12	63.31
Osigma	37.72	40.50	35.75
Cmean	79.16	79.47	80.50
Csigma	41.38	46.12	43.85
BIAS	2.31	9.35	17.19
MNB	0.22	0.54	0.86
MAF	0.42	0.69	0.96
MNAF	1.98	6.52	11.84
MNQF	17.60	19.6	23.39
SDR	21.99	23.11	24.17
R	0.847	0.864	0.833
% in Faktor 2	91.90	87.07	83.03
% innerhalb +/-50%	85.53	77.00	67.66
% innerhalb +/- 30%	68.51	59.70	50.14
% Obs verfügbar	94.24	96.89	98.09

Tabelle 11: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Tägliches Ozonmaximum 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge.

NO2-Tagesmittelwert			
Stationstyp	ländlich	städtisch	verkehrsnah
Anzahl der Stationen	62	325	60
Omean	17.47	32.95	36.66
Osigma	9.69	11.88	12.62
Cmean	18.36	29.56	21.21
Csigma	10.22	13.70	10.83
BIAS	0.89	-3.38	-15.45
MNB	0.32	-0.008	-0.332
MAF	0.71	0.50	0.52
MNAF	1.36	0.48	0.38
MNQF	9.17	15.30	19.42
SDR	9.37	13.33	13.55
R	0.601	0.488	0.368
% in Faktor 2	65.37	69.73	50.48
% innerhalb +/-50%	52.74	59.53	46.32
% innerhalb +/- 30%	32.58	36.11	24.80
% Obs verfügbar	84.43	90.90	92.32

Tabelle 12: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher NO₂-Mittelwert 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge.

PM10-Tagesmittelwert			
Stationstyp	ländlich	städtisch	verkehrsnah
Anzahl der Stationen	23	163	30
Omean	19.67	28.95	32.78
Osigma	11.50	14.73	16.24
Cmean	20.51	25.21	22.76
Csigma	9.19	11.51	10.11
BIAS	0.84	-3.74	-10.02
MNB	0.37	0.13	-0.06
MAF	0.66	0.53	0.50
MNAF	1.00	0.59	0.45
MNQF	9.92	13.78	16.39
SDR	11.96	14.97	16.02
R	0.36	0.43	0.39
% in Faktor 2	71.27	72.42	66.14
% in 50%	55.67	60.16	58.09
% in 30%	34.05	37.14	34.18
%Obs	93.72	95.56	95.85

Tabelle 13: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der drei Kategorien, ländlich, städtisch, verkehrsnah. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher PM10-Mittelwert 1995. Auswertung in zeitlicher Abfolge.

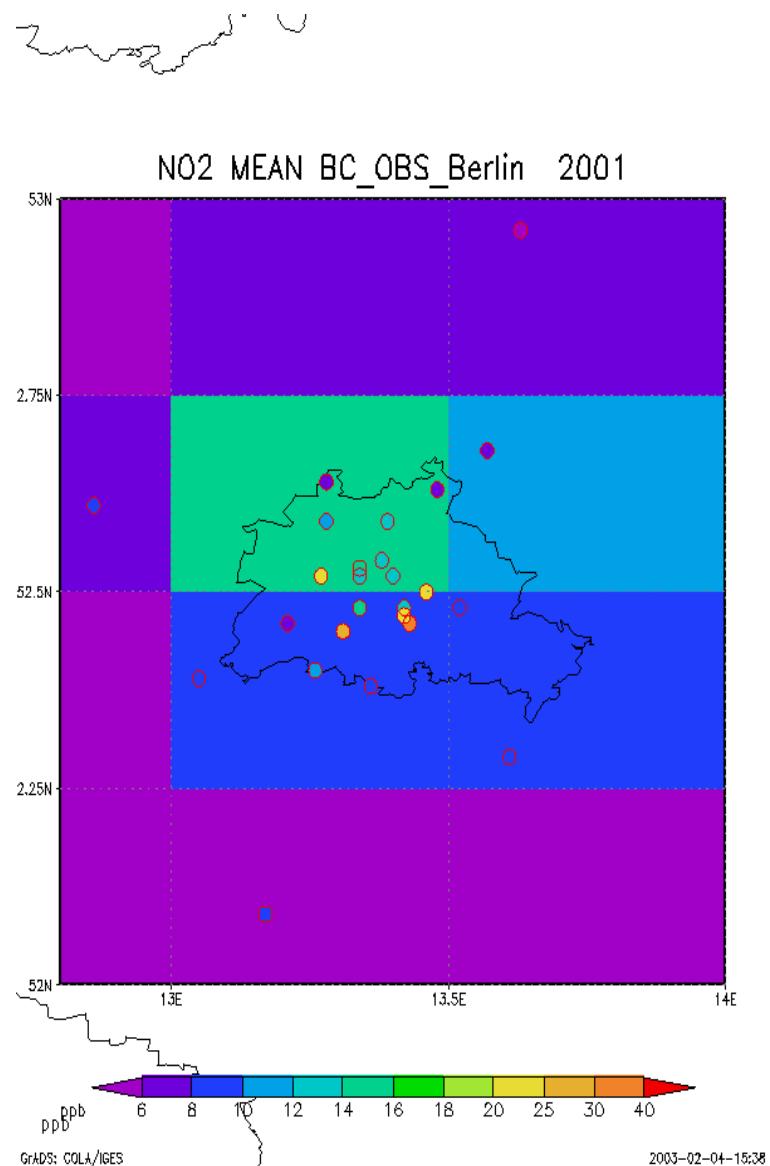


Abbildung 28: Berechnete (Raster) und gemessene NO₂-Jahresmittel (Punkte) im Großraum Berlin. Alle Angaben in ppb. Die farbigen Raster entsprechen der für die REM/CALGRID-Anwendung verwendeten Maschenweite von 0.5° Länge und 0.25° Breite. Jahresrechnung 2001. Weitere Erläuterungen im Text. Quelle : Flemming, 2003, pers. Mitteilung.

4.3.2. Der GLOREAM-Aerosol-Vergleich

Die Evaluierung des Aerosolmoduls erfolgte im Rahmen des GLOREAM-Aerosol-Vergleichs für das Sommerhalbjahr 1995. An diesem speziell auf die sekundären anorganischen Aerosole ausgerichteten Modellvergleich nahmen neben REM/CALGRID noch folgende Modelle unterschiedlichster Komplexität teil:

- Das **Dänische Eulersche Modell DEM**, ein komplexes chemisches Transportmodell
- Das deutsche **EURAD-Modell (European Air Pollution Dispersion Model)**, ebenfalls ein komplexes chemisches Transportmodell mit den komplexen Aerosolmodulen MADE und SORGAM.
- Das niederländische **European Operational Smog Modell EUROS**, ein 4-Schichten-Modell mittlerer Komplexität, das vor allem in der Behandlung der Gaschemie und der Aerosolchemie mit Vereinfachungen arbeitet.
- Das niederländische **Long Term Ozone Simulation Modell LOTOS**, ein 3-Schichten chemisches Transportmodell mit einer detaillierten Aerosolbehandlung.
- Das schwedische **Multi-scale Atmospheric Transport and Chemistry Modell MATCH**, ein komplexes Eulersches Transport/Chemie/Depositions-Modell, das für die großräumige aber auch die urbane Skala eingesetzt werden kann.

DEM, EURAD und MATCH betrachten die gesamte Troposphäre und arbeiten daher mit einer Vielzahl von vertikalen Schichten. EUROS, LOTOS und auch REM/CALGRID beschränken die Simulation auf den unteren Teil der Troposphäre und lösen diese mit relativ wenigen Schichten auf. Die Aerosolbehandlung ist dynamisch in EURAD und LOTOS. MATCH, DEM und REM/CALGRID benutzen lediglich thermodynamische Gleichgewichtsmodule. Dynamische Prozesse, die zur Größenänderung von Aerosolen beitragen, wie die Koagulation und die Kondensation, werden von diesen Modellen nicht betrachtet. EUROS arbeitet bei der Gaschemie und der Aerosolbehandlung mit starken Vereinfachungen. Details zu den Modellen können in dem GLOREAM-Aerosol-Bericht gefunden werden (Hass et al., 2003). Aus diesem Bericht wurden auch einige der in diesem Kapitel diskutierten Abbildungen übernommen. Abbildung 29 zeigt die von den einzelnen Modellen verwendeten Modellgebiete. Die unterschiedliche Größe und Projektion der Modellgebiete ist offensichtlich. Alle Modelle benutzten ihre eigenen Datenbasen, d.h. es erfolgte keine Harmonisierung der meteorologischen Daten oder der Emissionsdaten. Die verwendeten Maschenweiten liegen im Bereich zwischen 30 km und 60 km. Der Vergleich der Modellergebnisse mit Messungen erfolgte auf Basis der Messwerte des EMEP-Messnetzes sowie einiger deutscher und niederländischer Stationen (Abbildung 30). Der Schwerpunkt der folgenden Betrachtung liegt auf den Modellergebnissen des REM/CALGRID. Die Ergebnisse der anderen Modelle werden hauptsächlich als Bewertungsmaßstab für die Prognosequalität des REM/CALGRID herangezogen.

Die Abbildung 31 zeigt die beobachteten und berechneten SO_2 - und SO_4 -Sommermittelwerte an den EMEP-Stationen. Bei dem primär emittierten SO_2 ist die große Streuung der Werte um die 1:1-Linie offensichtlich. Tendenziell neigen alle Modelle zu einer Überschätzung der niedrigen Messwerte und zu einer Unterschätzung der hohen Messwerte. Dies ist wahrscheinlich eine Folge der bei Eulerschen Modellen üblichen sofortigen Vermischung der Emissionen innerhalb einer Gitterbox. Da Schwefeldioxid in größeren Mengen aber weitgehend über einzelne Punktquellen in die Atmosphäre abgegeben wird, führt dieser Umstand zu einer Überschätzung an Stationen, die nicht direkt im Einflussbereich solcher Punktquellen liegen und zu einer Unterschätzung an Stationen im direkten Einflussbereich. Die Streuung der berechneten sekundären Sulfataerosolkonzentrationen ist geringer als diejenige beim SO_2 . Es ist offensichtlich, dass REM/CALGRID zu einer Unterschätzung der hohen gemessenen Sulfatkonzentrationen neigt.

Dies mag eine Folge der einfachen Behandlung der Sulfatbildung sein. Die Entstehung von Sulfat aus der Oxidation des Schwefeldioxids mit dem OH-Radikal wird im Gasphasenmechanismus simuliert. Die Nassphasenreaktionen werden in REM/CALGRID dagegen nicht explizit modelliert sondern durch eine simple Reaktion erster Ordnung parametrisiert. Allerdings lässt sich aus den Ergebnissen anderer Modelle, z.B. des EURAD-Modells, die deutlich komplexere Ansätze der Nassphasenmodellierung verwenden, nicht unmittelbar ableiten, dass diese Ansätze zu einem besseren Modellierungsergebnis führen.

Beim Stickstoffdioxid erkennt man eine Tendenz zur Unterschätzung der niedrigen und der sehr hohen gemessenen Konzentrationen (Abbildung 32). Die REM/CALGRID-Ergebnisse, wie auch die meisten anderen Modellergebnisse, schwanken stark um die 1:1-Linie. Lediglich das LOTOS-Modell neigt zur generellen Unterschätzung aller NO₂-Messungen. Dies mag eine Folge der in diesem Modell fehlenden vertikalen Unterteilung der Mischungsschicht sein. Während alle anderen Modelle eine Bodenschicht besitzen, deren Konzentration zum Vergleich mit den Messungen herangezogen wird, werden in LOTOS die bodennahen Konzentrationen aus den Mischungsschichtkonzentrationen mit Hilfe von Grenzschichtbeziehungen abgeleitet. Der für die Aerosolbildung wichtige Stoff HNO₃ wird nur an sehr wenigen Stationen gemessen. Zur Zeit der Berichterstattung standen für die Salpetersäure lediglich die Berechnungen von REM/CALGRID, EURAD und LOTOS zur Verfügung. Wie schon beim Sulfat sind auch die Schwankungen der Sekundärkomponente HNO₃ geringer als diejenigen der Vorläuferkomponente SO₂ bzw. NO₂ (Abbildung 32). Die im Vergleich zu den Messungen und den anderen Modellergebnissen zu niedrigen HNO₃-Konzentrationen des LOTOS-Modells können eine Folge der zu niedrigen NO₂-Ergebnisse sein. Wie schon bei den Schwefelkomponenten lässt sich auch bei den gasförmigen Stickstoffkomponenten kein eindeutiger Zusammenhang zwischen der Komplexität des Modellansatzes und der Qualität der Modellergebnisse herstellen. Lediglich die NO₂-Unterschätzung des LOTOS-Modells weist darauf hin, dass zur Behandlung der flächenhaften Emission bodennaher Quellen die Verwendung einer bodennahen Modellschicht von Vorteil ist.

Die Abbildung 33 zeigt berechnete und beobachtete NO₃-Aerosolkonzentrationen sowie die Summe aus dem gasförmigen HNO₃ und dem NO₃-Aerosol, da diese Summe einfacher zu messen ist und daher an mehr Stationen zur Verfügung steht. Das NO₃-Aerosol ist ein direktes Ergebnis des jeweiligen Aerosolmoduls, wird aber wie die gasförmigen Komponenten transportiert und durch nasse und trockene Deposition aus der Atmosphäre entfernt. Auch beim Nitrat-Aerosol ist kein direkter Zusammenhang zwischen Modellkomplexität und Ergebnisqualität zu erkennen. Die REM/CALGRID-Ergebnisse geben die räumliche Variation der EMEP-NO₃ und TNO₃-Messungen gut wieder, mit einer leichten Tendenz zur Überschätzung.

Der Vergleich der Modellergebnisse mit den wenigen zur Verfügung stehenden Ammoniak-Messungen zeigt die Abbildung 34. Ammoniak ist einer der gasförmigen Vorläuferstoffe, der für die Nitrat-Aerosolbildung benötigt wird (siehe Kap. 2.3.4). Auffällig sind die niedrigen Konzentrationen des LOTOS-Modells, was wie beim NO₂ auf die fehlende Bodenschicht zurückgeführt werden kann. Die anderen Modelle zeigen eher eine Tendenz zur Überschätzung, was wegen der wenigen Messungen aber nicht sehr belastbar ist. Die gemessenen Nitrat-Aerosolkonzentrationen werden von REM/CALGRID im Sommermittel gut nachvollzogen (Abbildung 34 unten), mit einer leichten Tendenz zur Überschätzung der hohen Werte.

Weitergehende Analysen der Ergebnisse des GLOREAM-Aerosol-Modellvergleichs sind in Hass et al. (2003) zu finden. Den dort aufgeführten statistischen Auswertungen kann entnommen werden, dass das hoch komplexe EURAD-Modell generell die höchsten anorganischen Aerosolkonzentrationen und das ebenfalls komplexe MATCH-Modell generell die niedrigsten Konzentrationen liefert. Das deutlich einfachere REM/CALGRID liegt bei den NO₃- und NH₄-Aerosolen in der Mitte der Modellergebnisse und die Ergebnisse stimmen gut mit den wenigen zur Verfügung stehenden Messungen überein. Lediglich beim Sulfat werden mit REM/CALGRID bei den

hohen gemessenen Konzentrationen zu niedrige Werte berechnet. Der Vergleich zeigt also deutlich, dass nicht allein die Komplexität der einzelnen Modellierungsansätze über die Modellgüte entscheidet, zu mindestens dann nicht, wenn man längere Mittelungszeiträume betrachtet. Entscheidend ist das Zusammenspiel aller Modellkomponenten und die Qualität der Eingangsdaten. So verwendet das bezüglich der Modellstruktur relativ einfache LOTOS-Modell zwar ein Aerosolmodul, das bezüglich der Komplexität vergleichbar mit dem EURAD-Modul ist. Diese Komplexität kommt in den Ergebnissen aber nicht direkt zum Tragen, da andere Einflussgrößen, wie z.B. die fehlende Bodenschicht wahrscheinlich einen größeren Einfluss auf die Ergebnisse haben.

Die beiden bezüglich der meisten Modellkomponenten komplexesten Modelle, EURAD und MATCH, liegen bei den Aerosolen am weitesten auseinander, was ebenfalls als Hinweis dafür gewertet werden kann, dass den zum Betreiben des Modells verwendeten Eingangsdaten eine äußerst wichtige Rolle zukommt. Dieser Umstand zeigte sich bereits bei der Diskussion der mittleren Tagesgänge, wo auf die für REM/CALGRID wichtige Rolle der meteorologischen Stabilitätsverhältnisse hingewiesen wurde.

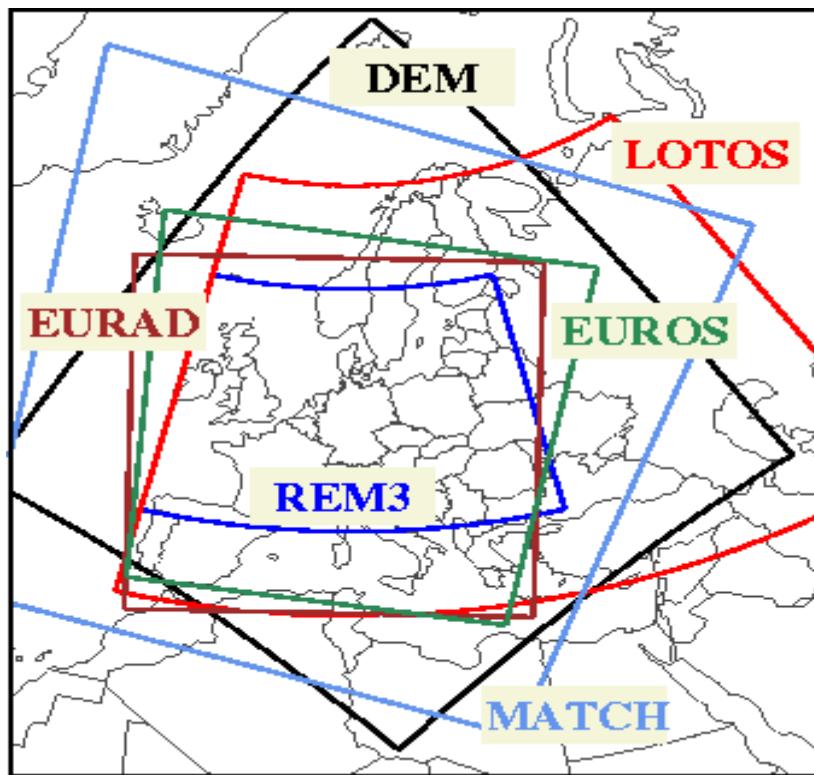


Abbildung 29: Die im GLOREAM-Modellvergleich verwendeten Modellgebiete. Weitere Erläuterungen im Text. (Quelle: Hass et al., 2003).

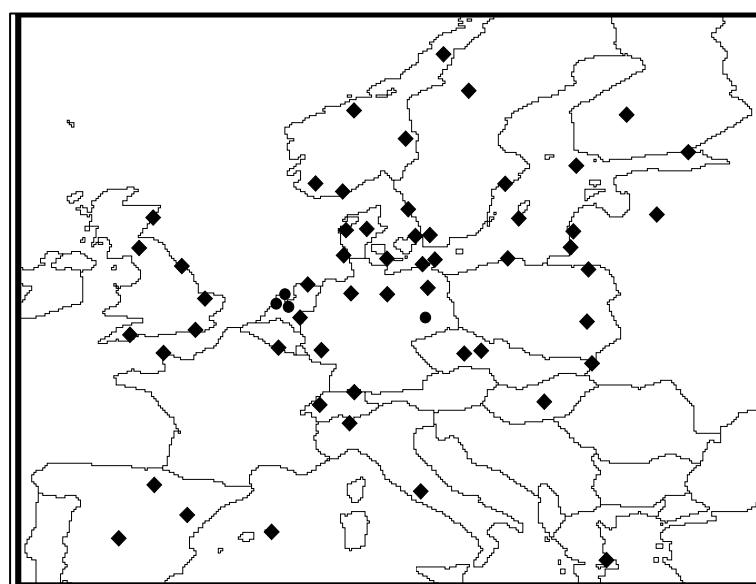


Abbildung 30: Lage der im GLOREAM-Modellvergleich zur Modellevaluierung verwendeten EMEP-Messstationen. Weitere Erläuterungen im Text. (Quelle: Hass et al., 2003).

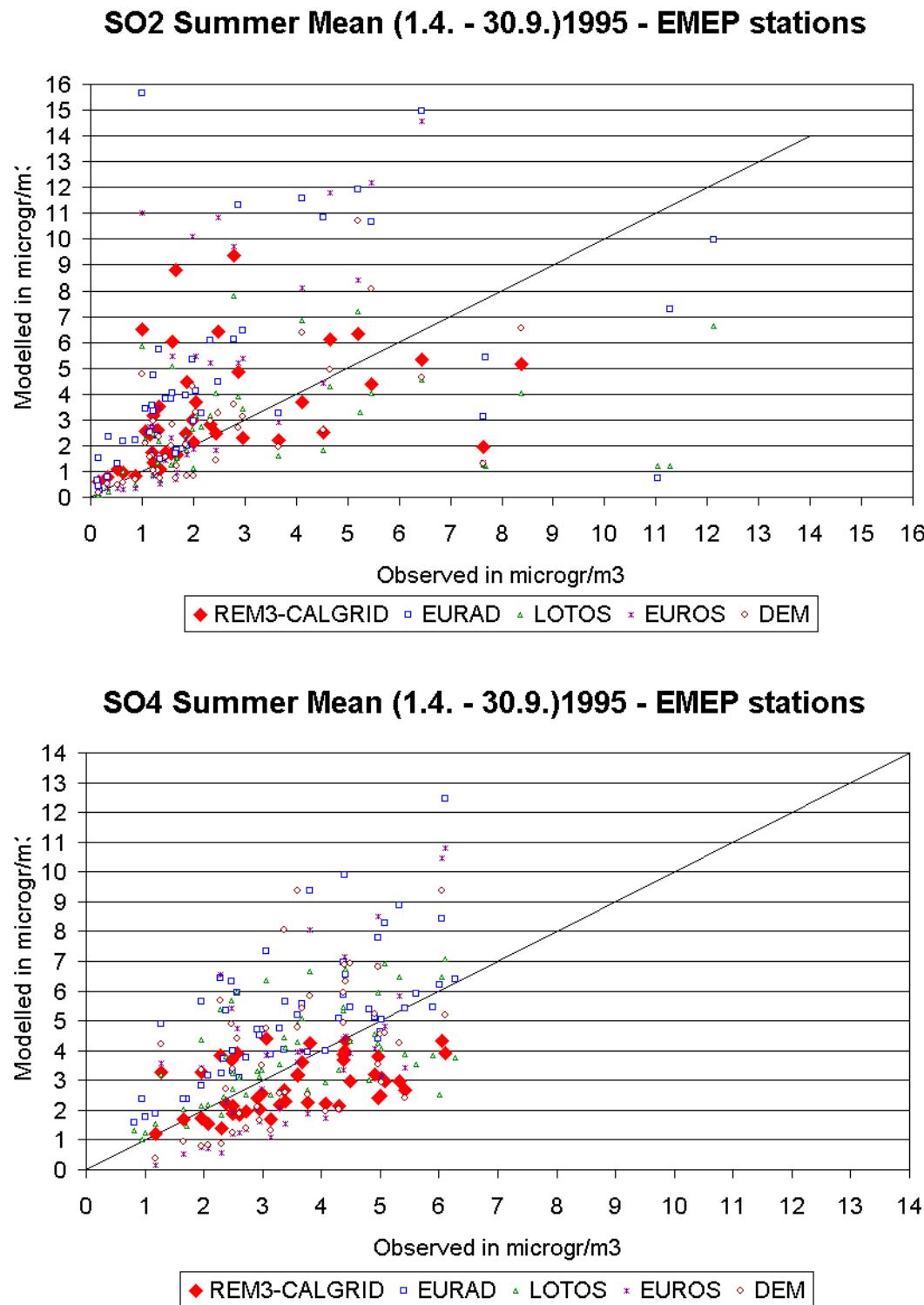


Abbildung 31: Beobachtete und berechnete SO₂ -(oben) und SO₄-Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. MATCH-Ergebnisse standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung.

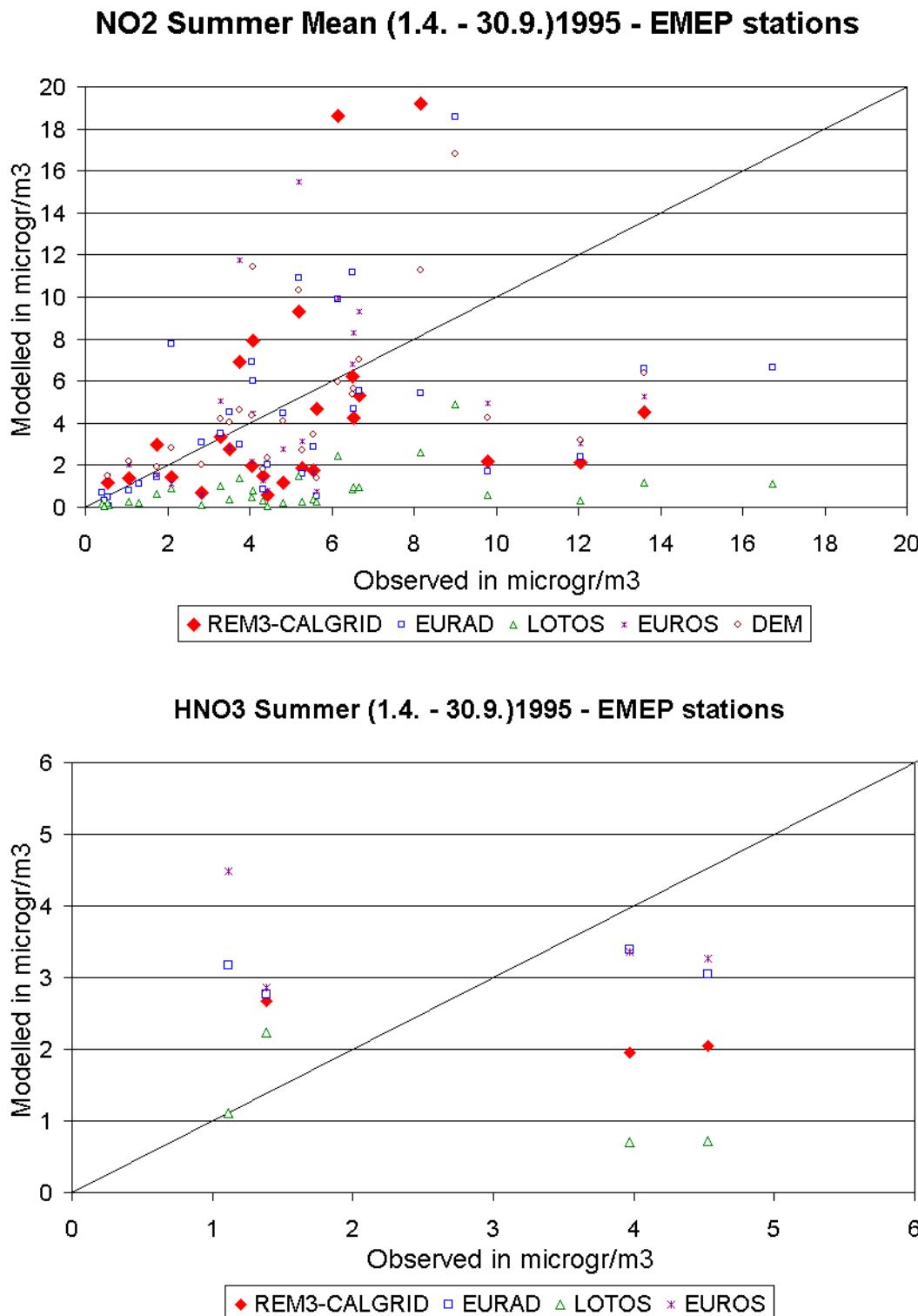


Abbildung 32: Beobachtete und berechnete NO₂ -(oben) und HNO₃-Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Ergebnisse nicht angeführter Modelle standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung.

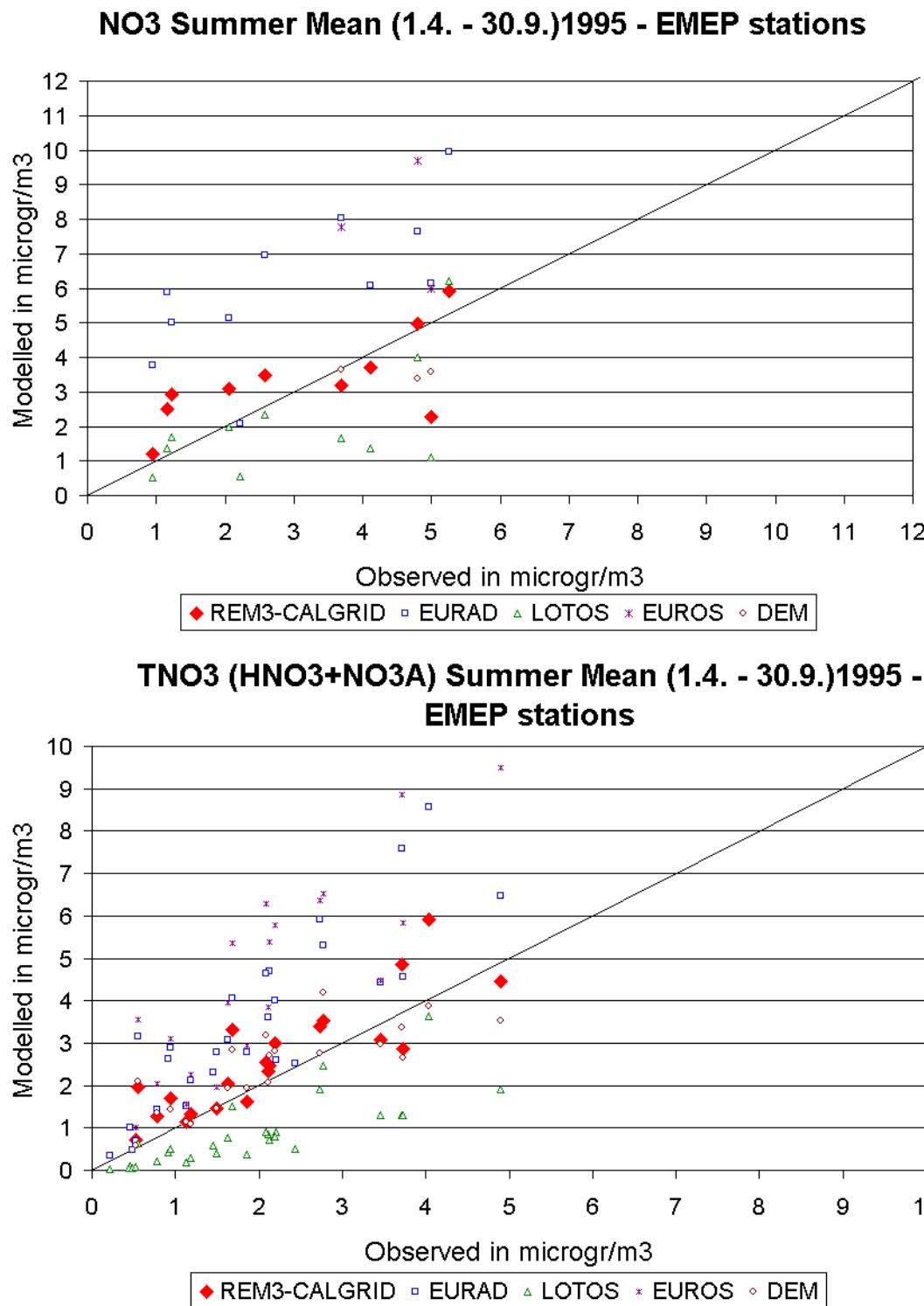


Abbildung 33: Beobachtete und berechnete NO₃-Aerosol- (oben) und TNO₃-Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Ergebnisse des MATCH-Modells standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung.

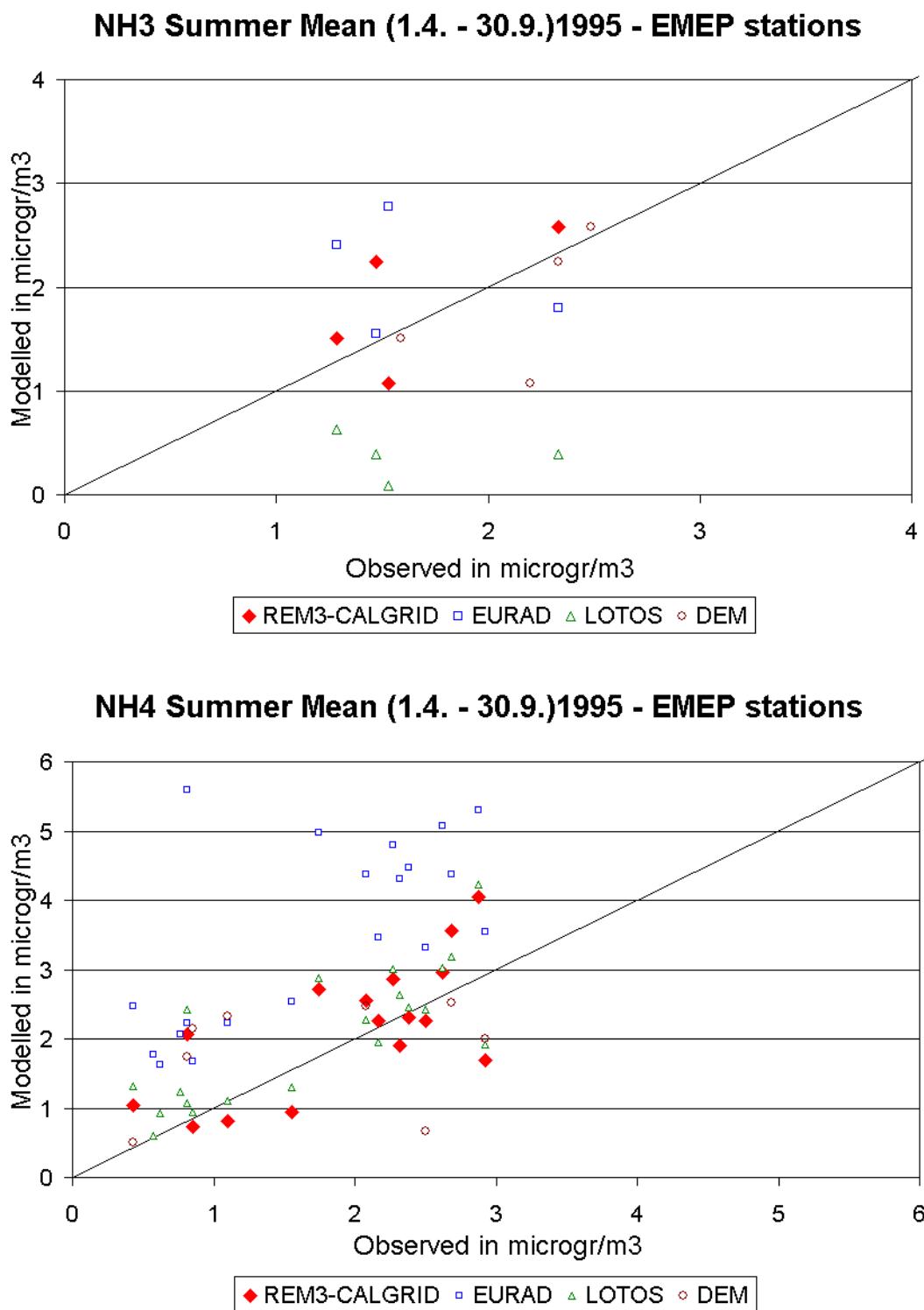


Abbildung 34: Beobachtete und berechnete NH₃- (oben) und NH₄-Aerosol-Konzentrationen (unten) im Sommerhalbjahr 1995. Alle Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Ergebnisse des MATCH-Modells standen zum Zeitpunkt der Berichterstellung nicht zur Verfügung. In EUROS ist der NH₃/NH₄-Zyklus nicht enthalten.

4.4. Anwendung von REM/CALGRID auf das Jahr 1997

4.4.1. Vergleich mit Messungen in Deutschland

4.4.1.1. Zeitreihen

Abbildung 35 bis Abbildung 37 zeigen die für 1997 berechneten täglichen Maximalwerte, Mittelwerte und höchste gleitende 8-Stundenmittelwerte für Ozon an den ländlichen Stationen Waldhof und Deuselbach sowie an der städtischen Hintergrundstation Berlin-Nansenstraße. Das Bild ist ähnlich wie im Jahre 1995 (Abbildung 10 bis Abbildung 12): Alle Ozonepisoden werden vom Modell erfasst und gut nachvollzogen. An den ländlichen Stationen erkennt man wie schon im Jahre 1995 eine Tendenz zur Unterschätzung der beobachteten Ozonkonzentrationen im Winter und eine leichte Überschätzung im Sommer. Im Vergleich zu 1995 werden in 1997 an diesen beiden Stationen niedrigere Ozonspitzenwerte gemessen und auch berechnet. An der Stadtstation Nansenstraße werden die beobachteten Ozonwerte wieder winters wie sommers überschätzt. Auch an dieser Station sind die gemessenen und berechneten Spitzenwerte für 1997 niedriger als diejenigen für 1995.

Bei den NO₂-Tagesmittelwerten 1997 fallen insbesondere die hohen gemessenen Konzentrationen an den beiden Landstationen im Januar auf (Abbildung 38). Ursache dieser außergewöhnlich hohen Werte war eine Stagnationswetterlage in Verbindung mit sehr niedrigen Temperaturen im Westen Deutschlands. Das Modell kann diese hohen Konzentrationen nicht abbilden, was möglicherweise mit der temperaturabhängigen Modellierung der Emission zusammenhängt. Diese Modellierung beruht auf mittleren statistischen Annahmen über die Temperaturabhängigkeit der Emissionen, die der Extremsituation im Januar 1997 wahrscheinlich nicht gerecht werden können. Der gemessene Jahresverlauf an den Landstationen mit hohen Werten im Winter und niedrigeren Werten im Sommer wird aber wieder gut nachvollzogen. Vor allem in Deuselbach, aber teilweise auch in Waldhof werden die gemessenen Wintertagesmittel am Jahresende etwas überschätzt. Der an den Landstationen deutliche Jahresgang ist an der Stadtstation Berlin-Nansenstraße wie schon 1995 wieder weitaus weniger ausgeprägt. Hier unterschätzt das Modell wieder an den meisten Tagen des Jahres.

Abbildung 39 zeigt die Zeitreihen der berechneten und gemessenen PM10-Tagesmittelwerte für die drei ausgewählten Stationen. Die kurzzeitig beobachteten steilen PM10-Anstiege und PM10-Abfälle kann das Modell wieder nicht reproduzieren. Diese Spitzenwerte können eine Folge der lokalen, möglicherweise noch von den kleinräumigen meteorologischen Bedingungen beeinflussten Emissionen sein, die ein großskaliges Modell nicht reproduzieren kann, selbst wenn die Mechanismen der Feinstaubemission bekannt wären. An der Stadtstation wird die gemessene PM10-Konzentration aus schon in Kap. 4.3.1.1 angeführten Gründen generell unterschätzt.

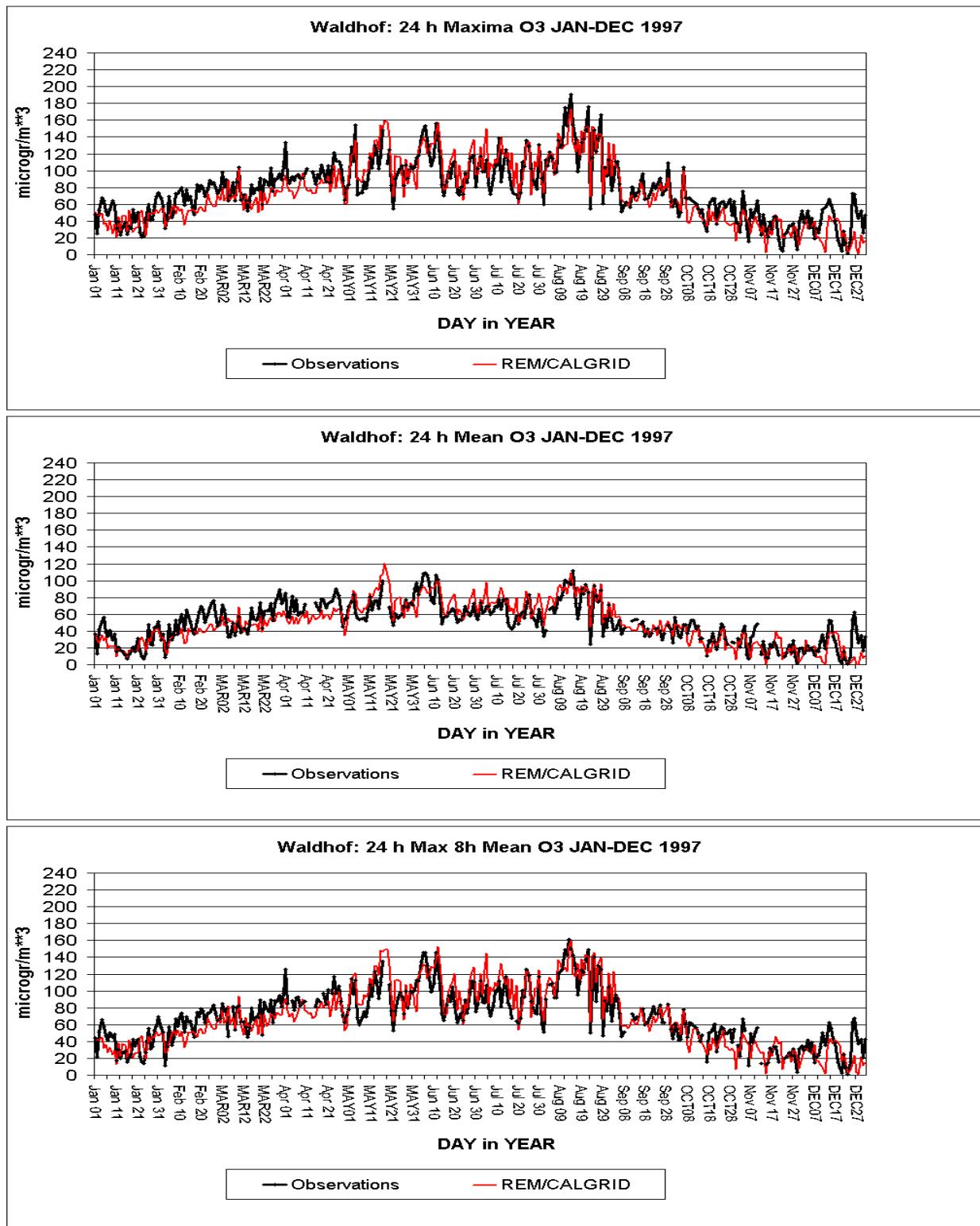


Abbildung 35: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Waldhof, 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.

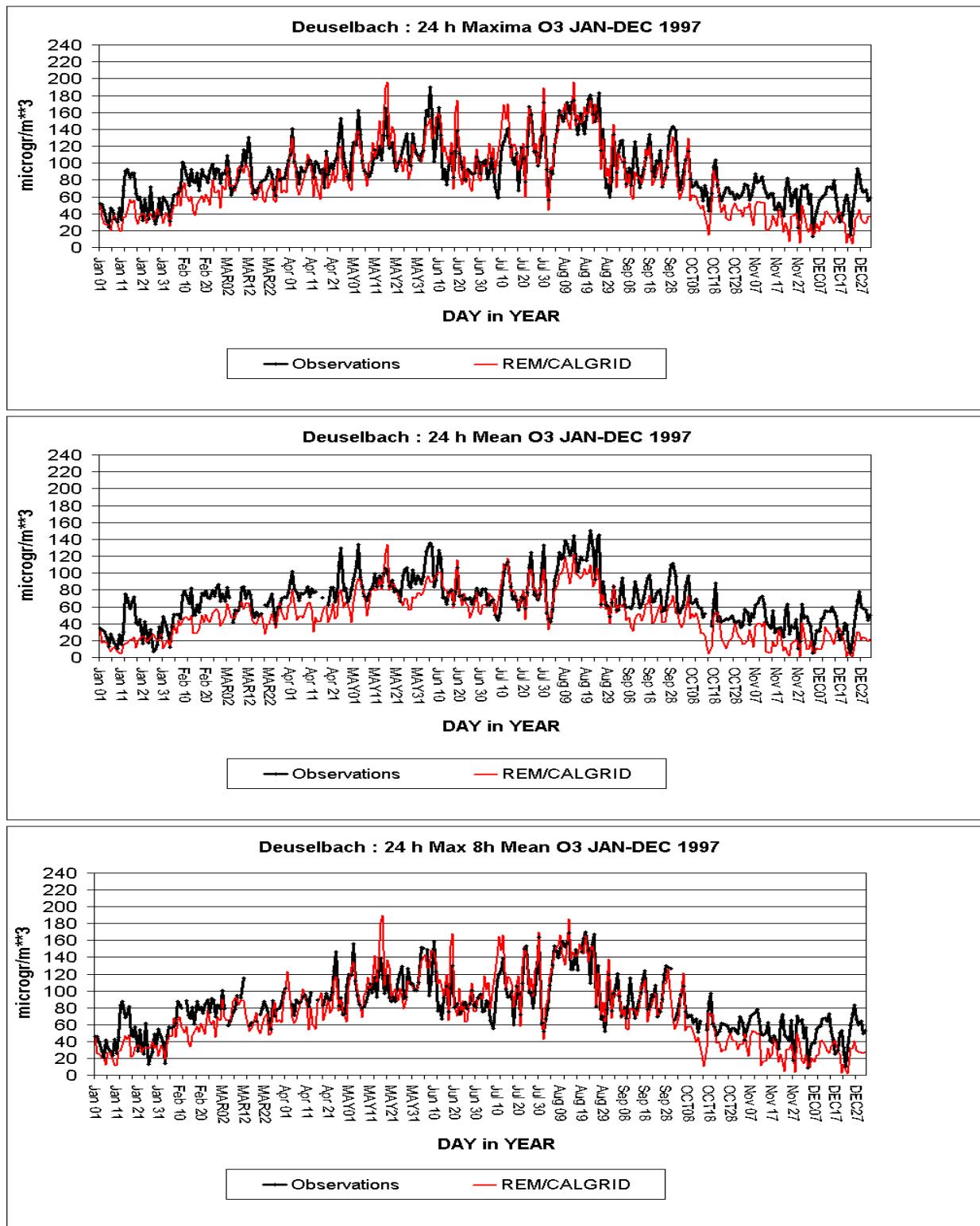


Abbildung 36: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Deuselbach, 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.

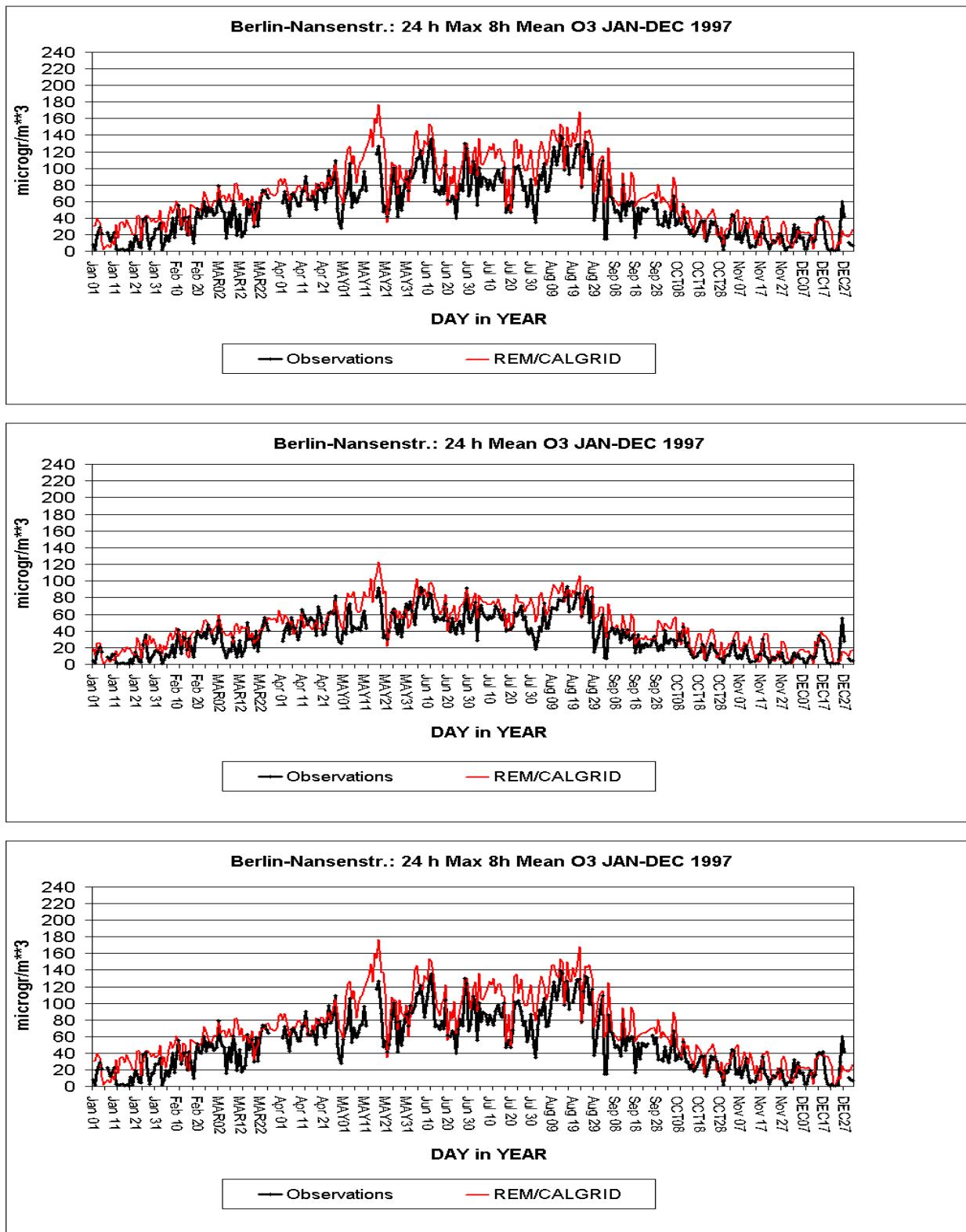


Abbildung 37: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in der Berliner Nansenstr., 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Städtische Hintergrundstation Berlin.

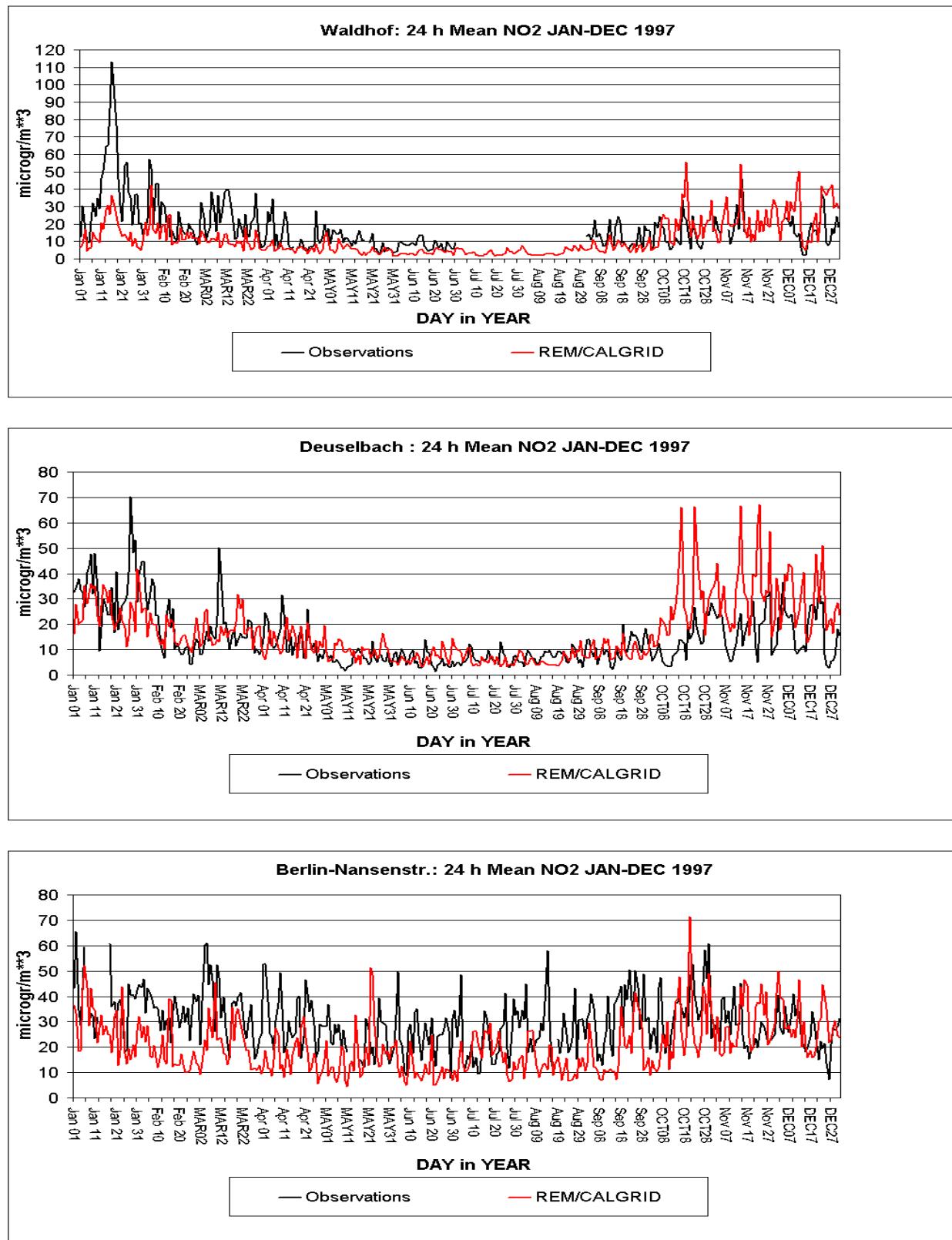


Abbildung 38: Berechnete und beobachtete NO₂-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1997. NO₂-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

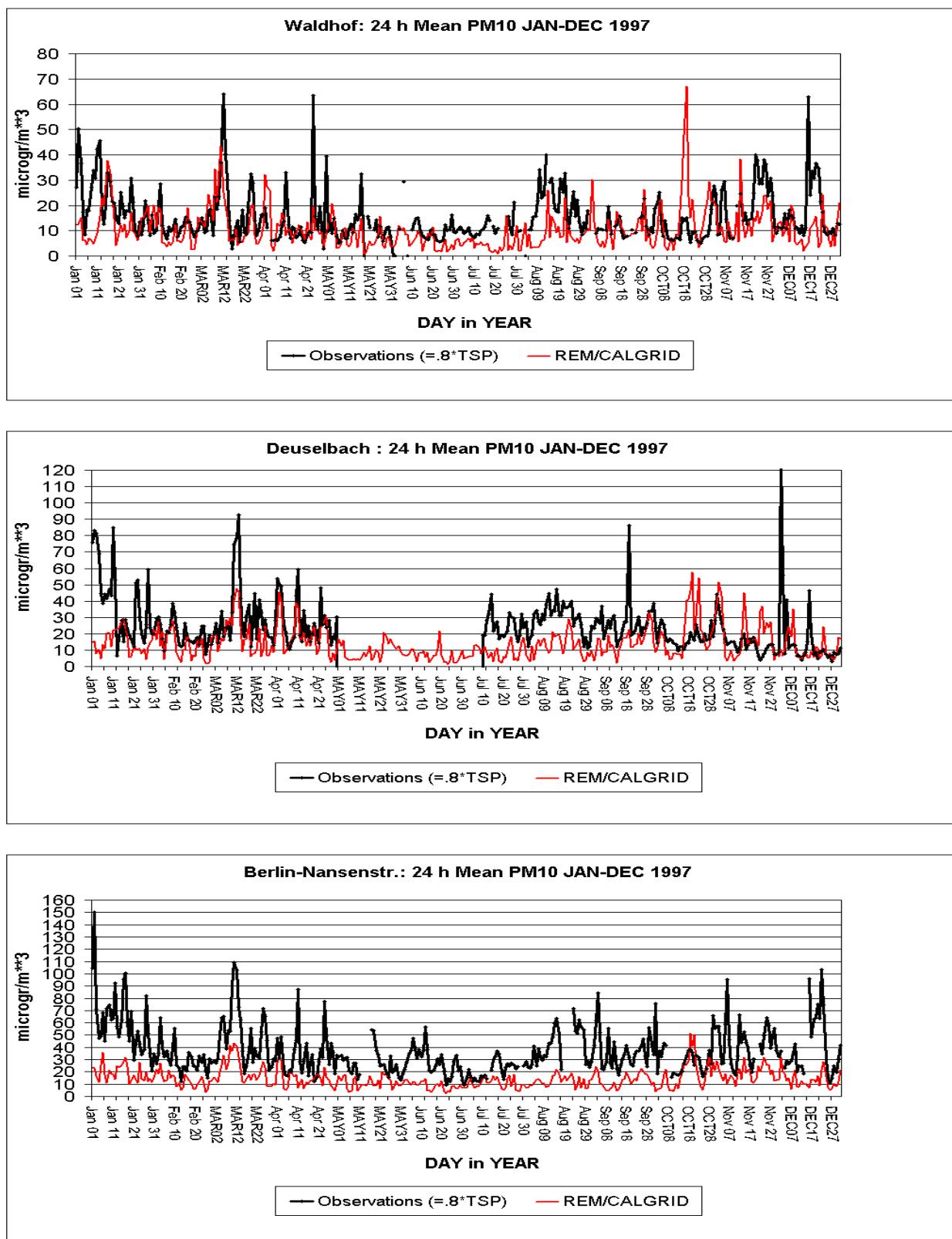


Abbildung 39: Berechnete und beobachtete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1997. PM10-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Bei der Beobachtung wurde PM10 aus TSP abgeleitet: $\text{PM10} = 0.8 \text{ TSP}$.

4.4.1.2. Streudiagramme

Bei der Modellevaluierung 1995 wurde dargelegt, dass für ein großräumiges Modell nur die Messstationen mit ländlichem Charakter zum Vergleich mit den Berechnungen geeignet sind. Da dies naturgemäß auch für 1997 gilt und sich für die Stadtstationen auch ein ähnliches Bild wie 1995 ergibt, werden in den Abbildungen und den Statistiken für 1997 nur die ländlichen Stationen gezeigt.

Die Verteilung der berechneten und gemessenen Ozontageswerte 1997 an den ländlichen Stationen in Deutschland zeigt die Abbildung 40. Bei allen Größen kommt es wie schon 1995 im unteren und mittleren Bereich zu einer Überschätzung, bei den sehr hohen gemessenen Größen aber zu einer Unterschätzung. Die Zusammenfassung der Daten an den Landstationen zu Monatsmittelwerten zeigt die Abbildung 41. Auch 1997 werden die niedrigeren gemessenen Sommermittelwerte überschätzt, die hohen sommerlichen Monatsmittel aber eher unterschätzt. Auch im Winter werden die höheren gemessenen Monatsmittel überschätzt. Nahezu alle Monatsmittel liegen innerhalb eines Bereiches von +/- 50% um die Messung bis auf einige Ausreißer im Sommer. Diese Stationen liegen durchweg in Bayern wie aus der Abbildung 42 ersichtlich wird, die die Verteilung der Ozonjahresmittel zeigt. Die meisten berechneten Jahresmittel liegen innerhalb eines Bereiches von +/- 30% um die Messung. Lediglich die meisten bayerischen Stationen, die generell überschätzt werden und einige Stationen in anderen Bundesländern, z.B. die baden-württembergischen Stationen auf der Schwäbischen Alp, die unterschätzt werden, fallen nicht in diesen Bereich. Interessanterweise werden ein Teil der bayerischen Stationen, die in der ursprünglichen UBA-Klassifikation als Landstationen eingestuft sind, nach der Clustermethode von Flemming (2003a) eher einem städtischen Regime zugeordnet und sind damit nur beschränkt für die Evaluierung eines großräumigen Modells zu verwenden.

Abbildung 43 zeigt die gemessenen und berechneten NO₂-Monatsmittel an den Landstationen. Überschätzungen des Modells gibt es bei einigen der Winterwerte. In den Sommermonaten dagegen kommt es zu Überschätzungen und Unterschätzungen der beobachteten Monatsmittel. Bei den NO₂-Jahresmittelwerten der ländlichen Stationen wurde eine Unterteilung vorgenommen in die UBA-Stationen, die bayerischen Stationen und die nordrhein-westfälischen Stationen (Abbildung 44). Die größten Unterschätzungen des Modells zeigen die bayerischen Stationen. Alle diese Stationen sind in der Klassifizierung von Flemming (2003a) nicht als Land-, sondern als Stadtstationen einzustufen. Nur eine der bayerischen Stationen wird vom Modell leicht überschätzt, die Station BY089 bei München. Diese Station fällt in das Raster der Müncher Emissionen und erhält damit auch in den Modellrechnungen einen relativ hohen Jahresmittelwert. Umgekehrt werden einige der nordrhein-westfälischen Stationen überschätzt. Ursache der Überschätzung ist die Größe des Modellgitters, durch die die hohen NO_x-Emissionen im Bereich des Ruhrgebiets großflächig verteilt werden, was dann zu überhöhten Konzentrationen in Gebieten mit eigentlich niedrigerer Emissionsdichte führen kann.

Das Streudiagramm der berechneten und gemessenen PM10-Monatsmittel 1997 zeigt die Abbildung 45 für die ländlichen Stationen. Bei den Sommermonatsmitteln ist wieder deutlich die Unterschätzung erkennbar, was wahrscheinlich wieder auf die bereits in Kap. 4.3 angeführten Gründe zurück zu führen ist. Hier sei noch mal auf die mit der Staubmessung verbundenen Schwierigkeiten hingewiesen: An der UBA-Station Regnitzlosau wird für März 1997 ein Monatsmittelwert von 1 µg/m³ gemeldet, was sicherlich nicht den Tatsachen entspricht (siehe Abbildung 45). Die starke Unterschätzung im Sommer 1997 führt auch zu einer Unterschätzung der PM10-Jahresmittelwerte (Abbildung 46). Mit am stärksten unterschätzt werden wie beim NO₂ wieder die bayerischen Stationen, die eher der Kategorie Stadt zuzuordnen sind. Allerdings wird auch an anderen Stationen, wie z.B. den UBA-Stationen, unterschätzt.

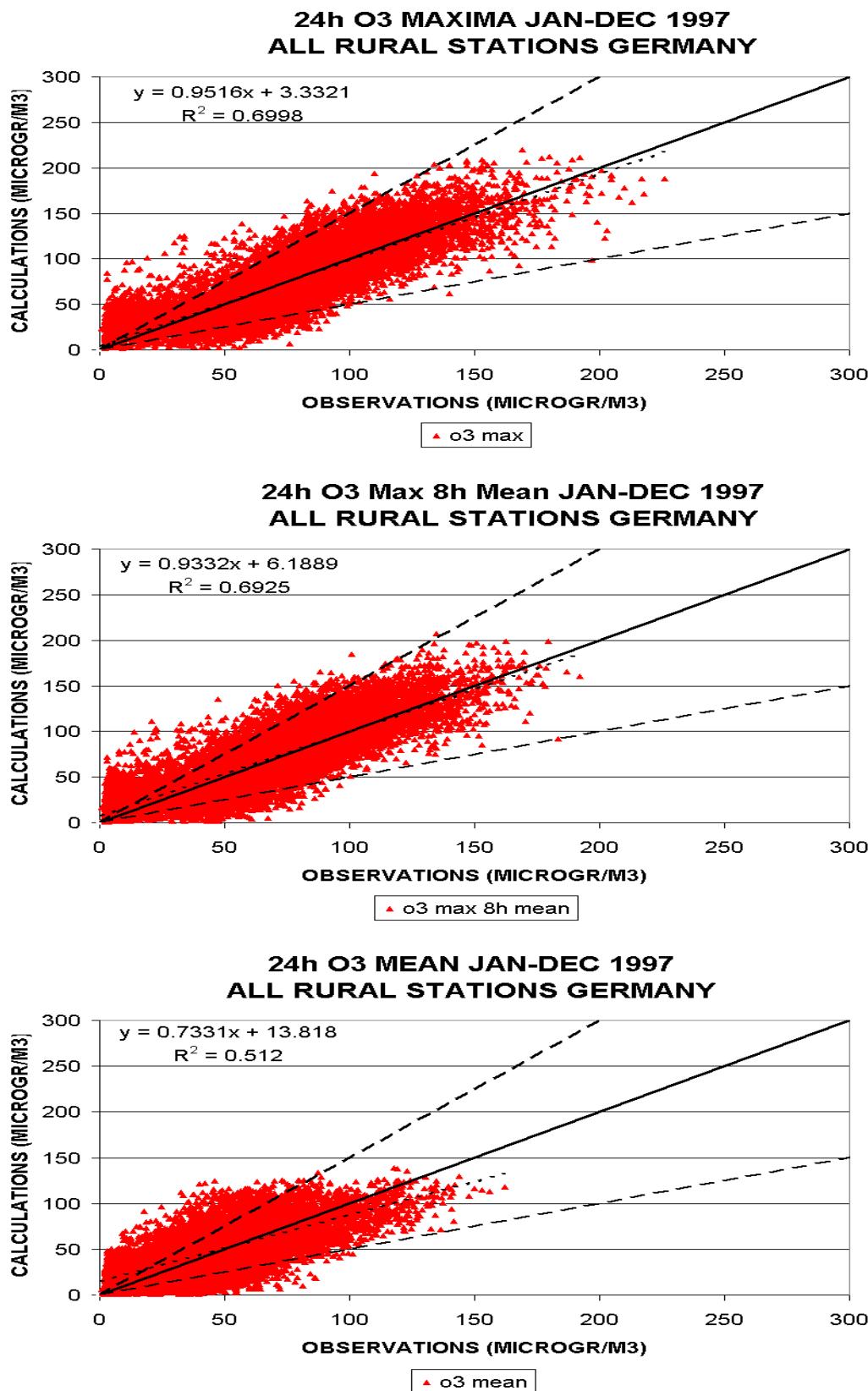


Abbildung 40: Gemessene und berechnete Verteilung der Ozontageswerte 1997. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert, in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen Ozonstationen der Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

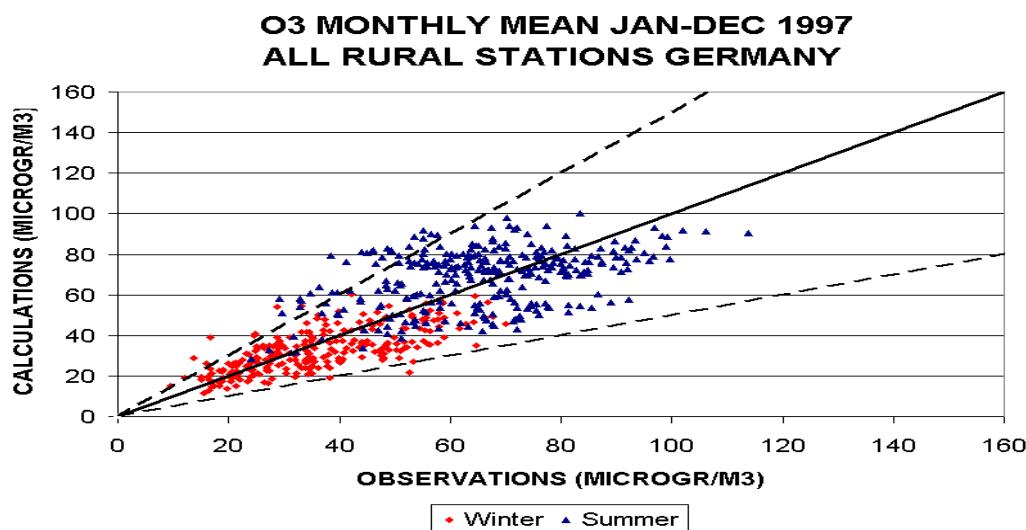


Abbildung 41: Gemessene und berechnete Ozonmonatsmittel 1997 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

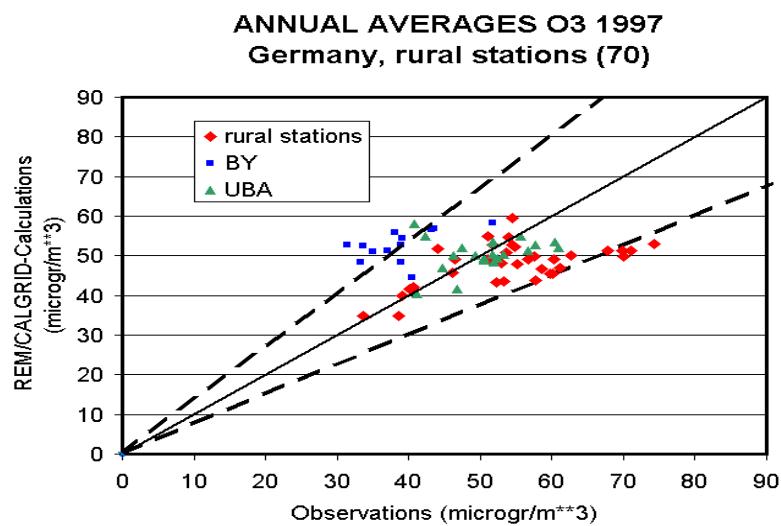


Abbildung 42: Gemessene und berechnete Ozonjahresmittel 1997 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY) und Stationen in den anderen Bundesländern (rural). Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an.

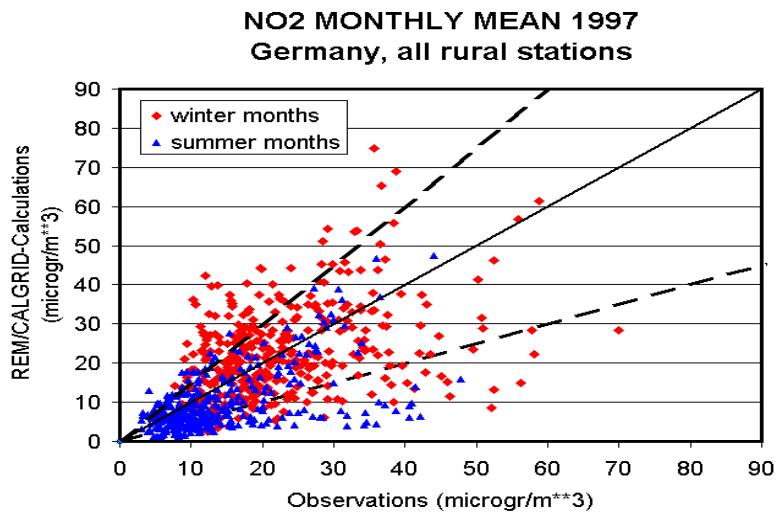


Abbildung 43: Gemessene und berechnete Verteilung der NO₂-Monatsmittel 1997 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO₂-Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

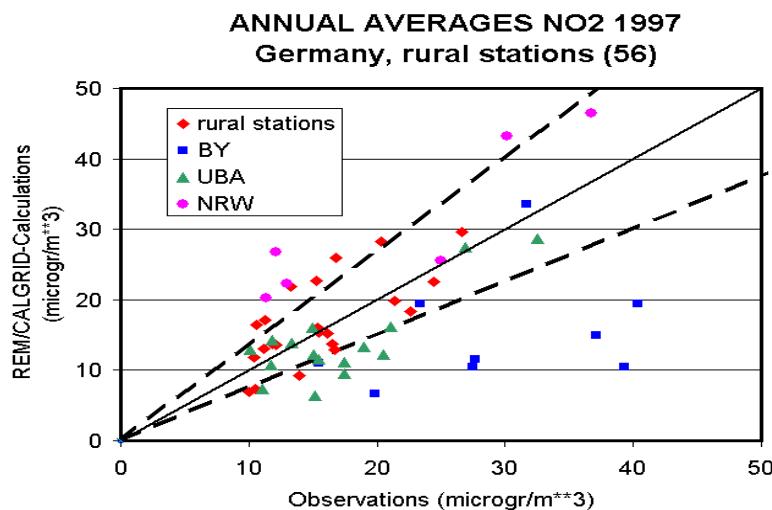


Abbildung 44: Gemessene und berechnete Verteilung der NO₂-Jahresmittel 1997 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO₂-Stationen der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an.

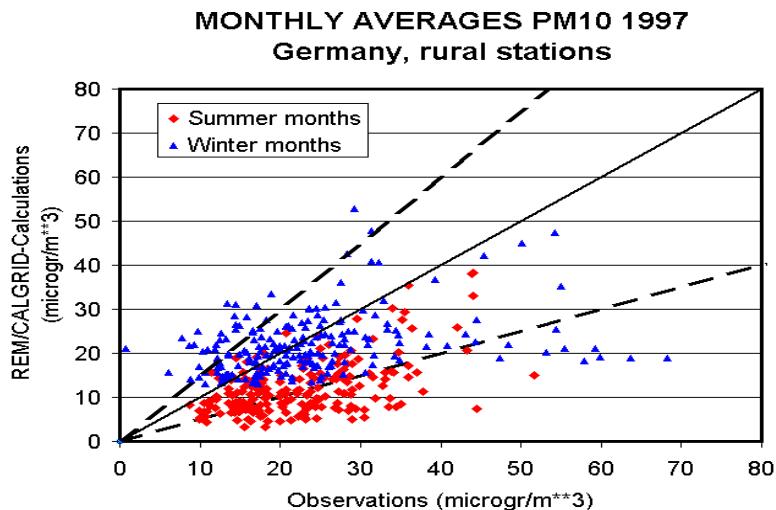


Abbildung 45: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Monatsmittel 1997 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie Land ($\text{PM10} = .8 * \text{TSP}$). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

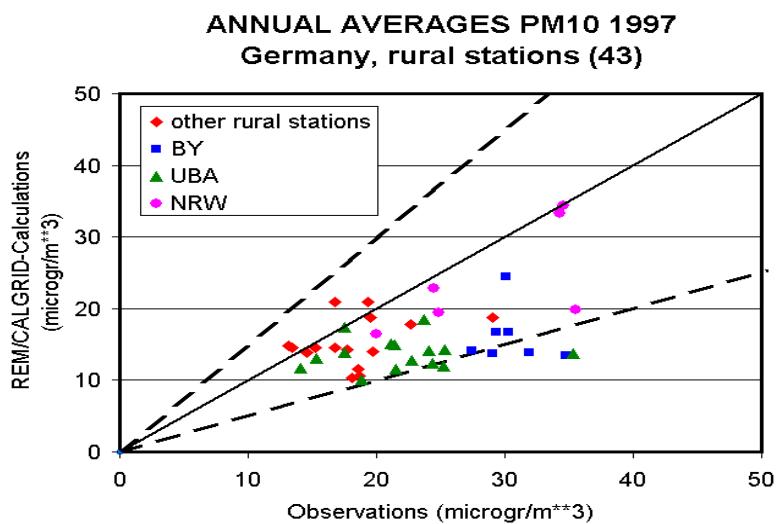


Abbildung 46: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Jahresmittel 1997 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen ($\text{PM10} = .8 * \text{TSP}$) der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

4.4.1.3. Statistische Auswertung

Der Bias ist beim Ozon und NO₂ gering während die PM10-Unterschätzung sich deutlich in dessen Bias niederschlägt (Tabelle 14). Die Korrelation ist relativ gut beim Ozon, was auf den zyklischen Gang der täglichen Ozonbildung zurückzuführen ist. Deutlich schlechter ist die Korrelation beim NO₂ und insbesonder beim PM10. Auch die Anzahl der Fälle, die in die vorgegebenen Bereiche fallen, ist für Ozon sehr viel höher als für die beiden anderen Stoffe.

Ländliche Stationen				
Tageswerte 1997	O3-Maximum	O3-Mittel	NO2-Mittel	PM10-Mittel
Anzahl der Stationen	67	67	52	45
Omean	76.37	50.29	19.04	24.54
Osigma	33.18	24.12	11.34	14.39
Cmean	74.69	49.54	17.47	14.77
Csigma	37.70	25.47	11.28	10.20
BIAS	-1.68	-0.75	-1.58	-9.77
MNB	0.11	0.21	0.18	-0.32
MAF	0.36	0.51	0.65	0.50
MNAF	1.22	1.31	1.27	0.38
MNQF	16.86	15.06	10.22	12.73
SDR	20.09	16.01	11.66	13.62
R	0.85	0.80	0.50	0.45
% in Faktor 2	91.60	83.82	64.38	54.42
% in 50%	87.13	75.13	53.41	50.98
% in 30%	68.59	54.38	32.92	27.24
%Obs	98.45	96.92	95.49	95.62

Tabelle 14: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der Kategorie ländlich. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher Ozonmittelwert 1997, Tägliches Ozonmaximum 1997, Täglicher NO₂-Mittelwert 1997, Täglicher PM10-Mittelwert 1997. Auswertung in zeitlicher Abfolge.

4.4.2. Der TOR-Ozon-Vergleich

Das REM/CALGRID-Modell wurde im Rahmen des Vorhabens auch für die TOR-Untersuchung⁴ zu beobachteten und berechneten Ozontrends eingesetzt, in dem 10 großräumige chemische Transportmodelle auf das Jahr 1997 angewandt wurden. Wie schon im GLOREAM-Aerosol-Vergleich benutzten alle Modelle ihre eigenen Datenbasen, d.h. es erfolgte keine Harmonisierung der meteorologischen Daten oder der Emissionsdaten. Die verwendeten Maschenweiten liegen im Bereich zwischen 30 km und 60 km. Der Schwerpunkt des TOR-Vergleichs liegt auf Ozon. Die teilnehmenden Modelle waren neben dem REM/CALGRID:

- Das Dänische Eulersche Modell **DEM**, ein komplexes chemisches Transportmodell,
- Das deutsche **EURAD**-Modell (**European Air Pollution Dispersion Model**), ebenfalls ein komplexes chemisches Transportmodell,
- Das niederländische **European Operational Smog Modell EUROS**, ein 4-Schichten-Modell mittlerer Komplexität,
- Das niederländische **Long Term Ozone Simulation Modell LOTOS**, ein 3-Schichten chemisches Transportmodell,
- Das schwedische **Multi-scale Atmospheric Transport and Chemistry Modell MATCH**, ein komplexes Eulersches Transport/Chemie/Depositions-Modell, das für die großräumige aber auch die urbane Skala eingesetzt werden kann,
- Die EULERsche Version des **EMEP**-Modells,
- Das französische **CHIMERE**-Modell,
- Das norwegische **NILU**-Modell,
- Das englische **STOCHEM**-Modell.

Einige der Modelle nahmen auch am GLOREAM-Aerosol-Vergleich teil. Bis auf das globale STOCHEM-Modell sind alle Modelle Troposphären- oder Grenzschichtmodelle mit einem auf Europa begrenzten Modellgebiet. Details zu den Modellen können in Roemer et al. (2003) gefunden werden. An dieser Stelle soll lediglich die Prognosequalität des REM/CALGRID anhand der statistischen Auswertung der Ozon-Ergebnisse für das Jahr 1997 im Vergleich mit den anderen Modellen diskutiert werden. Zu den Ergebnissen der Trendanalyse wird auf Roemer et al. (2003) verwiesen.

Die modellierten täglichen Ozonmaxima der Sommermonate (Mai bis August) und die Ozon-Tagesmittelwerte der Wintermonate (November bis Februar) wurden mit den entsprechenden beobachteten Größen an 40 Stationen des EMEP-Messnetzes verglichen. Der folgende Vergleich beinhaltet nur diejenigen Stationen, die sich im REM/CALGRID-Modellgebiet befinden (siehe Abbildung 9 und Abbildung 29).

Die Tabelle 15 zeigt die normierte mittlere Abweichung (Bias) zwischen Rechnung und Beobachtung an diesen 26 Stationen für alle beteiligten Modelle. Im Mittel über alle 26 Stationen beträgt der REM/CALGRID-Bias 4% und ist damit einer der niedrigsten. An den einzelnen Stationen reicht der Bias von + 24% in Aston Hill (UK) bis -10% in Ispra (Italien). Die mittleren Fehler (Tabelle 16) des REM/CALGRID gehören zu den niedrigsten, die Korrelationskoeffizienten (Tabelle 17) zu den höchsten aus der Gruppe der 10 Modelle. Die Prognosequalität des

4 Tropospheric Ozon Research

REM/CALGRID-Modells bezüglich des Ozonmaximums entspricht damit der derzeitig erreichbaren Modellgüte.

Die Tabelle 18, Tabelle 19 und Tabelle 20 zeigen die statistischen Maße für die Ozon-Tagesmittelwerte der Wintermonate 1997. Beim REM/CALGRID ist im Bias wieder die bereits an den Ergebnissen für 1995 diskutierte winterliche Unterschätzung der Tagesmittel zu erkennen. Der Tabelle 18 kann auch entnommen werden, dass die Mehrzahl der Modelle die Winterwerte unterschätzt. Der mittlere Fehler ist bei nahezu allen Modellen deutlich größer als bei den Maximalwerten während die Korrelation der Tagesmittelwerte in derselben Größenordnung wie diejenige der Maximalwerte liegt.

Insgesamt zeigt auch der TOR-Vergleich, dass ein Modell mittlerer Komplexität wie das REM/CALGRID in der Prognosegüte gleichwertig mit anderen, zum Teil deutlich komplexeren Modellen, eingestuft werden kann.

$$BIAS = \frac{\bar{C}^m - \bar{C}^o}{\bar{C}^o}, \bar{C}^m = \text{Modellmittel}, \bar{C}^o = \text{Beobachtungsmittel}$$

BIAS		nilu-ctm	euros-c	match	lotos	eurad-c	rcg	dem	stochem	dnmi	Chimere
eibergen	nl	16	20	19	20	4	17	4	52	10	25
wageningen	nl	19	5	15	16	-5	5	-10	51	3	14
vredepeel	nl	13	22	15	11	0	4	-10	45	5	20
posterholt	nl	12	21	15	6	2	2	-7	45	-3	17
wijnandsrade	nl	18	29	17	10	7	8	-4	53	2	23
eifel	de	-8	1	-1	-2	-5	-1	15	31	-12	14
nettetal	de	18	1	14	8	1	3	-6	46	2	18
rodenkirchen	de	6	19	13	9	7	5	38	52	5	25
wesel	de	4	6	6	1	-7	-7	-16	37	-2	7
borken	de	12	10	9	9	-3	3	3	42	-4	12
eupen	be	0	13	1	-2	-5	-1	-16	36	-2	13
gellik	be	7	19	7	1	-3	0	-13	39	0	15
kollumerwaard	nl	19	13	17	15	-4	12	-2	49	-29	3
deuselbach	de	-15	10	-6	-11	-14	-4	-21	19	-4	2
waldhof	de	-20	3	-5	-7	-15	1	-21	27	-12	0
brotjacklriegel	de	-31	-4	-11	-16	-17	-2	-15	17	-18	1
schauinsland	de	-21	-4	-9	-16	-13	-2	-13	12	-1	9
payerne	ch	-8	7	-3	-11	-9	9	-18	28	-1	18
illmitz	at	-26	-7	-8	-19	-16	0	-5	17	-14	0
ispra	it	-21	44	-9	-16	-14	-10	-22	8	4	11
aston hill	uk	76	22	20	19	-3	24	-9	59	6	12
harwell	uk	35	4	7	-1	-17	-3	0	32	-13	-3
sibton	uk	0	14	8	11	-24	6	-22	30	11	1
yarner wood	uk	33	11	14	11	-22	21	41	53	7	4
eskdalemuir	uk	18	5	10	11	-11	15	-29	43	-14	3
mace head	ie	3	0	9	5	-15	4	-2	58	18	-15
Mittel		6	11	6	2	-8	4	-6	38	-2	10

Tabelle 15: Normierter Bias in % für die berechneten täglichen Ozonmaxima Mai bis August 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. Quelle: Roemer et al. (2003).

$$NRMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C_i^m - C_i^o)^2} / \overline{C^o}$$

NRMSE		nilu-ctm	euros-c	match	lotos	eurad-c	rcg	dem	stochem	dnmi	chimere
eibergen	nl	43	32	34	31	28	33	39	78	35	38
wageningen	nl	48	24	30	29	28	29	38	79	35	33
vredepeel	nl	38	34	29	24	26	23	40	73	32	35
posterholt	nl	41	34	29	22	24	25	40	72	31	35
wijnandsrade	nl	43	41	30	25	27	28	40	78	33	40
eifel	de	29	23	20	22	23	20	49	58	29	29
nettetal	de	41	29	27	22	24	25	43	71	29	36
rodenkirchen	de	46	35	35	30	29	30	68	81	41	43
wesel	de	41	25	27	22	27	30	35	67	32	25
borken	de	46	26	27	24	26	28	41	69	33	31
eupen	be	32	26	23	26	23	23	41	62	29	29
gellik	be	43	32	26	23	23	26	42	66	30	33
kollumerwaard	nl	44	23	28	25	22	25	38	72	48	28
deuselbach	de	27	20	18	22	22	15	41	47	23	18
waldhof	de	33	19	20	21	24	16	37	54	28	18
brotjacklriegel	de	37	16	20	23	22	13	29	42	26	12
schauinsland	de	28	13	17	24	21	14	29	42	21	20
payerne	ch	22	16	14	19	18	17	31	52	18	29
illmitz	at	31	16	18	23	22	11	31	41	22	17
ispra	it	33	50	27	29	26	24	39	41	33	29
aston hill	uk	96	42	37	39	37	38	43	90	33	36
harwell	uk	51	23	26	28	31	21	46	65	32	26
sibton	uk	39	26	24	30	38	22	42	63	42	20
yarner wood	uk	54	25	26	32	38	30	67	81	30	26
eskdalemuir	uk	44	21	22	29	24	26	53	63	28	23
mace head	ie	34	21	18	25	25	26	34	85	32	27
Mittel		41	27	25	26	26	24	41	65	31	28

Tabelle 16: Normierter Mittlerer quadratischer Fehler NRMSE in % für die berechneten täglichen Ozonmaxima Mai bis August 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. Quelle: Roemer et al. (2003).

1-Korr		nilu-ctm	euros-c	match	lotos	eurad-c	rcg	dem	stochem	dnmi	chimere
Eibergen	nl	37	78	65	81	71	68	65	5	53	81
wageningen	nl	29	80	72	79	74	68	69	-1	53	80
vredepeel	nl	49	80	77	84	72	79	71	3	61	81
posterholt	nl	32	78	75	82	80	73	70	4	63	79
wijnandsrade	nl	33	79	73	80	79	70	65	4	58	77
eifel	de	45	76	77	72	79	76	45	-1	65	79
nettetal	de	44	68	75	83	81	72	67	6	62	76
rodenkirchen	de	12	77	72	77	80	75	51	6	53	75
wesel	de	32	78	74	83	73	63	76	2	59	85
borken	de	13	78	74	80	72	66	64	3	58	78
eupen	be	40	83	79	70	82	78	62	9	63	80
gellik	be	21	81	72	77	80	71	59	8	61	78
kollumerwaard	nl	26	74	67	68	66	69	33	2	-18	59
deuselbach	de	60	79	76	69	78	84	32	-6	59	84
waldhof	de	29	68	65	62	67	76	42	0	40	76
brotjacklriegel	de	44	63	53	53	61	76	24	-10	36	81
schauinsland	de	70	81	74	58	68	80	48	-11	58	79
payerne	ch	68	76	74	67	70	73	51	-16	56	68
illmitz	at	50	63	48	65	54	80	39	-4	40	62
ispra	it	0	69	40	41	52	53	32	-3	22	43
aston hill	uk	32	50	56	37	43	59	53	-2	48	62
harwell	uk	68	78	68	56	68	78	53	6	55	78
sibton	uk	44	77	73	59	73	77	44	5	36	86
yarner wood	uk	55	69	69	32	44	72	70	-1	53	71
eskdalemuir	uk	49	76	78	50	73	73	34	12	63	79
mace head	ie	59	63	82	47	64	58	54	-2	56	68
Mittel		40	74	70	66	69	72	53	1	50	75

Tabelle 17: Korrelationskoeffizient in % für die berechneten täglichen Ozonmaxima Mai bis August 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. Quelle: Roemer et al. (2003).

BIAS		nilu-ctm	euros-c	match	lotos	eurad-c	rcg	dem	stochem	dnmi	chimere
ei bergen	nl	nd	-87	32	-4	-57	-29	31	170	-29	nd
wageningen	nl	nd	-87	35	-15	-52	-52	37	201	-27	nd
vredepeel	nl	nd	-83	7	-30	-59	-55	22	139	-39	nd
posterholt	nl	nd	-82	11	-32	-58	-42	3	133	-42	nd
wijnandsrade	nl	nd	-84	4	-42	-63	-56	16	130	-50	nd
eifel	de	nd	-91	-40	-49	-79	-51	-18	29	-67	nd
nettetal	de	nd	-88	25	-24	-54	-34	23	186	-30	nd
rodenkirchen	de	nd	-73	34	-1	-42	16	72	252	-10	nd
wesel	de	nd	-83	31	-23	-45	-37	33	248	-9	nd
borken	de	nd	-84	25	0	-48	-13	30	231	-38	nd
eupen	be	nd	-90	-36	-56	-78	-63	-33	36	-32	nd
gellik	be	nd	-84	7	-41	-50	-55	30	138	-42	nd
kollumerwaard	nl	nd	-65	41	43	-47	11	24	102	-31	nd
deuselbach	de	nd	-83	-34	-26	-55	-41	-20	36	-46	nd
waldhof	de	nd	-83	3	26	-53	-2	0	78	-37	nd
brotjacklriegel	de	nd	-79	-39	-29	-48	-47	-22	4	-64	nd
schauinsland	de	nd	-77	-62	-47	-58	-64	-32	-17	-71	nd
payerne	ch	nd	-32	58	97	58	36	96	149	30	nd
illmitz	at	nd	-53	-10	-3	-58	-17	24	64	-42	nd
ispra	it	nd	-48	127	155	163	49	21	322	38	nd
aston hill	uk	nd	-72	-12	14	-63	-7	-4	20	-29	nd
harwell	uk	nd	-78	0	6	-64	-15	12	62	-32	nd
sibton	uk	nd	-72	19	18	-52	-9	1	68	-34	nd
yarner wood	uk	nd	-52	-1	25	-9	4	24	21	-21	nd
eskdalemuir	uk	nd	-68	-3	14	-28	-1	11	59	-39	nd
mace head	ie	nd	-54	4	-4	-11	-9	15	-3	-3	nd
Mittel			-74	9	-1	-39	-22	15	110	-31	

Tabelle 18: Normierter Bias in % für die berechneten Ozontagesmittelwerte in Januar, Februar, November, Dezember 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. nd= No Data. Quelle: Roemer et al. (2003).

NRMSE		nilu-ctm	euros-c	match	lotos	eurad-c	rcg	dem	stochem	dnmi	chimere
eibergen	nl	nd	114	61	45	75	60	87	193	64	nd
wageningen	nl	nd	124	61	53	74	86	96	227	69	nd
vredepeel	nl	nd	111	43	56	82	83	84	165	70	nd
posterholt	nl	nd	108	43	52	75	69	60	159	69	nd
wijnandsrade	nl	nd	113	37	63	83	79	81	161	74	nd
eifel	de	nd	100	53	59	87	61	45	62	78	nd
nettetal	de	nd	130	52	54	83	69	87	218	74	nd
rodenkirchen	de	nd	113	70	52	67	76	123	277	70	nd
wesel	de	nd	124	66	57	73	73	96	272	75	nd
borken	de	nd	121	61	47	73	62	96	255	76	nd
eupen	be	nd	102	47	65	88	72	62	71	50	nd
gellik	be	nd	115	42	64	67	82	90	169	68	nd
kollumerwaard	nl	nd	87	61	61	63	53	70	128	52	nd
deuselbach	de	nd	90	47	42	63	55	55	62	60	nd
waldhof	de	nd	98	33	45	70	47	62	98	57	nd
brotjacklriegel	de	nd	83	49	43	55	54	49	37	71	nd
schauinsland	de	nd	79	68	55	62	70	49	34	77	nd
payerne	ch	nd	78	89	113	110	76	152	173	85	nd
illmitz	at	nd	68	34	36	73	37	84	82	56	nd
ispra	it	nd	89	162	186	221	121	94	350	106	nd
aston hill	uk	nd	77	28	35	68	34	52	47	42	nd
harwell	uk	nd	92	28	35	75	43	63	88	42	nd
sibton	uk	nd	89	40	42	63	50	64	87	46	nd
yarner wood	uk	nd	62	20	39	34	34	57	49	31	nd
eskdalemuir	uk	nd	76	23	37	44	33	48	76	49	nd
mace head	ie	nd	59	18	26	32	25	46	32	25	nd
Mittel			96	51	56	75	62	75	137	63	

Tabelle 19: Mittlerer Fehler NRMSE in % für die berechneten Ozontagesmittelwerte in Januar, Februar, November, Dezember 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. nd= No Data. Quelle: Roemer et al. (2003).

1-Korr		nilu-ctm	euros-c	match	lotos	eurad-c	rcg	dem	stochem	dnmi	chimere
eibergen	nl	nd	53	86	84	82	75	62	28	74	nd
wageningen	nl	nd	52	90	86	86	70	68	29	77	nd
vredepeel	nl	nd	47	88	83	74	65	59	25	74	nd
posterholt	nl	nd	53	89	86	84	72	74	28	77	nd
wijnandsrade	nl	nd	56	91	85	80	77	59	15	78	nd
eifel	de	nd	45	72	70	59	66	65	4	60	nd
nettetal	de	nd	45	91	90	83	81	67	20	76	nd
rodenkirchen	de	nd	49	87	85	85	68	61	28	78	nd
wesel	de	nd	44	87	85	84	77	69	33	73	nd
borken	de	nd	52	87	88	82	77	65	29	74	nd
eupen	be	nd	62	85	81	66	77	54	15	77	nd
gellik	be	nd	53	90	84	87	71	60	20	80	nd
kollumerwaard	nl	nd	64	84	81	82	73	65	25	83	nd
deuselbach	de	nd	65	74	70	75	60	42	21	63	nd
waldhof	de	nd	53	86	79	66	64	52	40	71	nd
brotjacklriegel	de	nd	54	50	27	60	48	34	14	39	nd
schauinsland	de	nd	56	23	20	45	19	39	-4	27	nd
payerne	ch	nd	49	61	70	33	62	23	26	57	nd
illmitz	at	nd	54	76	65	45	76	20	43	67	nd
ispra	it	nd	49	49	34	29	48	46	0	48	nd
aston hill	uk	nd	73	85	69	79	66	55	27	82	nd
harwell	uk	nd	75	91	84	80	78	62	29	92	nd
sibton	uk	nd	29	81	71	75	49	44	36	83	nd
yarner wood	uk	nd	62	90	74	67	62	62	28	89	nd
eskdalemuir	uk	nd	69	89	72	77	73	65	23	81	nd
mace head	ie	nd	61	81	51	33	63	45	26	66	nd
Mittel			55	79	72	69	66	54	23	71	

Tabelle 20: Korrelationskoeffizient in % für die berechneten Ozontagesmittelwerte in Januar, Februar, November, Dezember 1997 an 26 nordeuropäischen Stationen für 10 Modelle. Die REM/CALGRID-Ergebnisse (rcg) sind fett markiert. nd= No Data. Quelle: Roemer et al. (2003).

4.5. Anwendung von REM/CALGRID auf das Jahr 1999

4.5.1. Vergleich mit Messungen in Deutschland

4.5.1.1. Zeitreihen

Auch die Zeitreihen für 1999 zeigen wieder, dass das Modell generell in der Lage ist, den beobachteten Jahresgang zu reproduzieren (Abbildung 47 bis Abbildung 49). Die winterliche Unterschätzung an den Landstationen erscheint aber ausgeprägter als in den Jahren 1995 und 1997. Die gemessenen Winterwerte von 1999 sind dabei höher als diejenigen von 1999, was vom Modell nicht nachvollzogen wird. Auch beim NO₂ entsprechen die Ergebnisse denjenigen der anderen beiden Jahre: Der beobachtete Jahresgang wird gut nachvollzogen, an den Landstationen werden die NO₂-Werte im Sommer aber etwas unterschätzt. Auffällig sind die sehr hohen gemessenen winterlichen NO₂-Konzentrationen an den Stationen Waldhof und Deuselbach, die in den Spitzen sogar höher sind als diejenigen der städtischen Station Nansenstraße. An dieser städtischen Hintergrundstation unterschätzt das Modell an den meisten Tagen des Jahres (Abbildung 50).

Die PM10-Tagesreihen zeigen wieder einen kaum vorhandenen Jahresgang. Das Modell unterschätzt in Waldhof und Nansenstr. vor allem wieder die beobachteten Spitzenwerte (Abbildung 51). Deuselbach wird 1999 von der Modellrechnung überschätzt. Für 1999 standen in Waldhof und Berlin-Nansenstr. gravimetrische PM10-Messungen (24-Stunden Sammler) zur Verfügung. Diese Messungen wurden zum Vergleich mit den Rechnungen herangezogen. In Deuselbach stand nur die TSP-Messung zur Verfügung. In Waldhof wurde gleichzeitig am selben Standort auch die TSP-Konzentration in hoher Auflösung gemessen (1/2-stündlich, Beta-Absorption). Beide Messreihen sind in Abbildung 51 eingetragen. Die großen Unterschiede zwischen den beiden Messreihen zeigen deutlich auf, dass die Verwendung von zeitlich hoch aufgelösten TSP-Messungen zur Modellevaluierung mit einigen Unsicherheiten verbunden ist: Der PM10-Jahresmittelwert beruhend auf der TSP-Messung (PM10=0.8*TSP) beträgt in Waldhof 7 µg/m³, während die Auswertung des PM10-Sammlers 16 µg/m³ ergibt. Es sei angemerkt, dass der berechnete PM10-Verlauf besser mit der PM10-Messung des 24-Stunden-Sammlers übereinstimmt als mit dem PM10-Konzentrationsverlauf abgeleitet aus den hoch aufgelösten TSP-Messungen. Die gravimetrische Messung führte im Jahre 1999 auch an anderen UBA-Stationen zu höheren Jahresmittelwerten als die Auswertung der TSP-Messungen: Zingst 9 µg/m³ (TSP) gegen 17 µg/m³ (PM10-Sammler), Schmücke 9 µg/m³ (TSP) gegen 12 µg/m³ (PM10-Sammler), Neuglobsow 11 µg/m³ (TSP) gegen 15 µg/m³ (PM10-Sammler). Lediglich auf dem Schauinsland stimmten die PM10-Jahresmittelwerte abgeleitet aus den beiden unterschiedlichen Messverfahren überein (8 µg/m³). Ob sich diese Ergebnisse auf andere Messnetze übertragen lassen, kann hier nicht beurteilt werden.

Die Unterteilung der PM10-Konzentrationen in primäre und sekundäre Komponenten zeigt die Abbildung 52 nur für die Modellergebnisse, da an den Stationen nur die Gesamtheit der PM10-Aerosolmasse gemessen wird. An den Landstationen überwiegen die sekundären Komponenten während in dem städtischen Emissionsgebiet Berlin der Konzentrationsbeitrag der primären Komponenten zum gesamten PM10 höher ist.

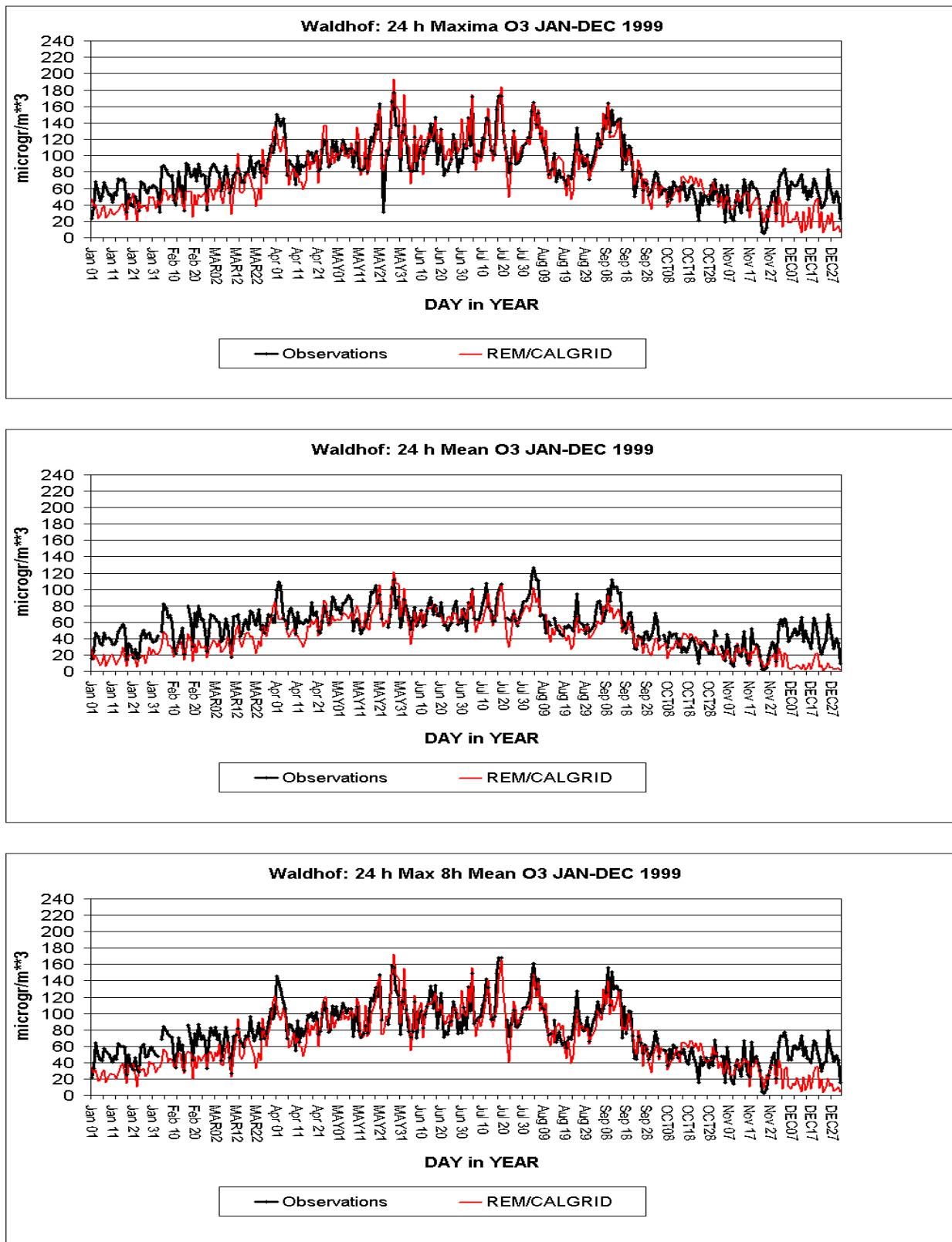


Abbildung 47: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Waldhof, 1999. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts.

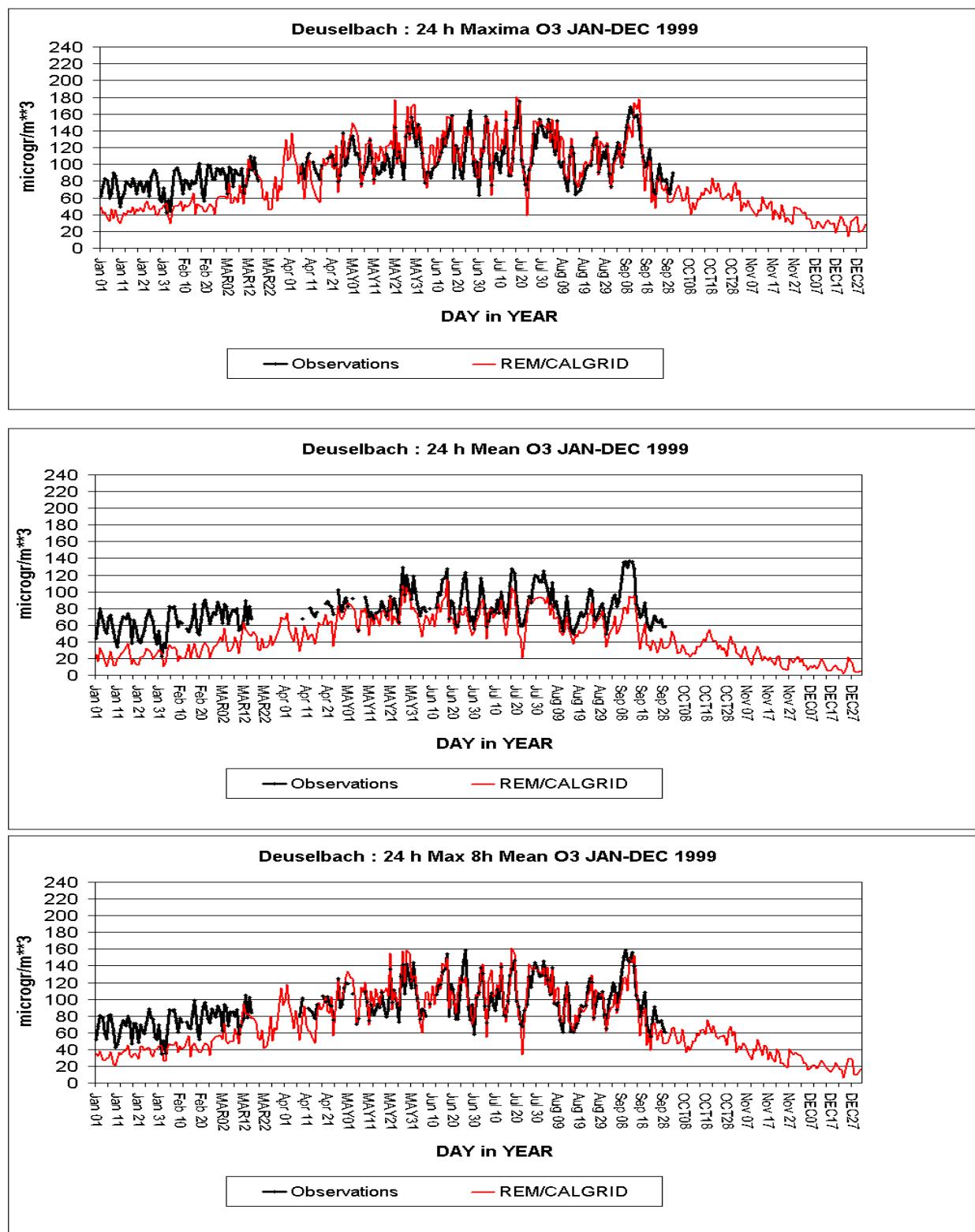


Abbildung 48: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Deuselbach, 1999. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ländliche Station des Umweltbundesamts

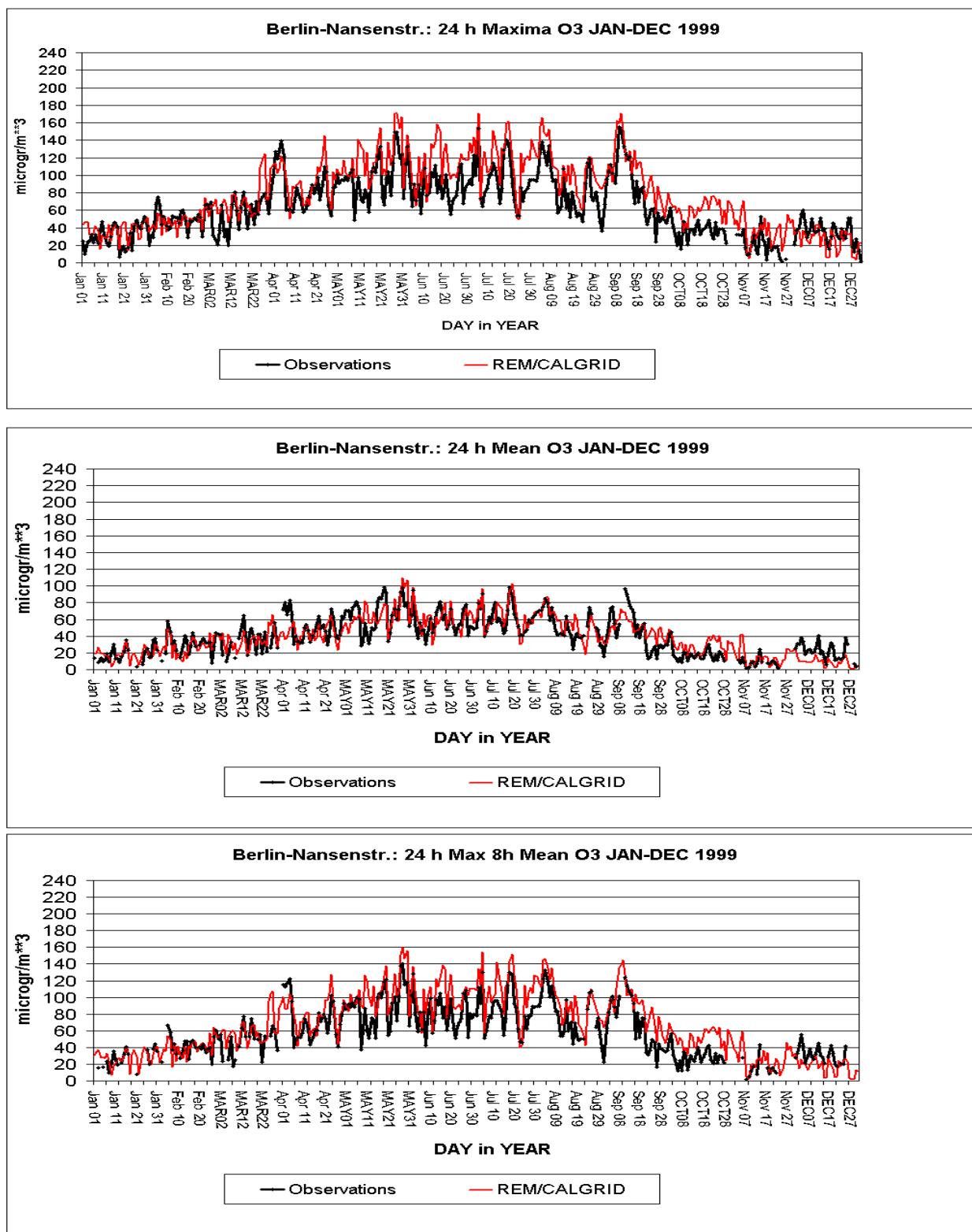


Abbildung 49: Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in der Berliner Nansenstr., 1999. Tägliches Ozonmaximum, täglicher maximaler gleitender 8h-Mittelwert, täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Städtische Hintergrundstation Berlin.

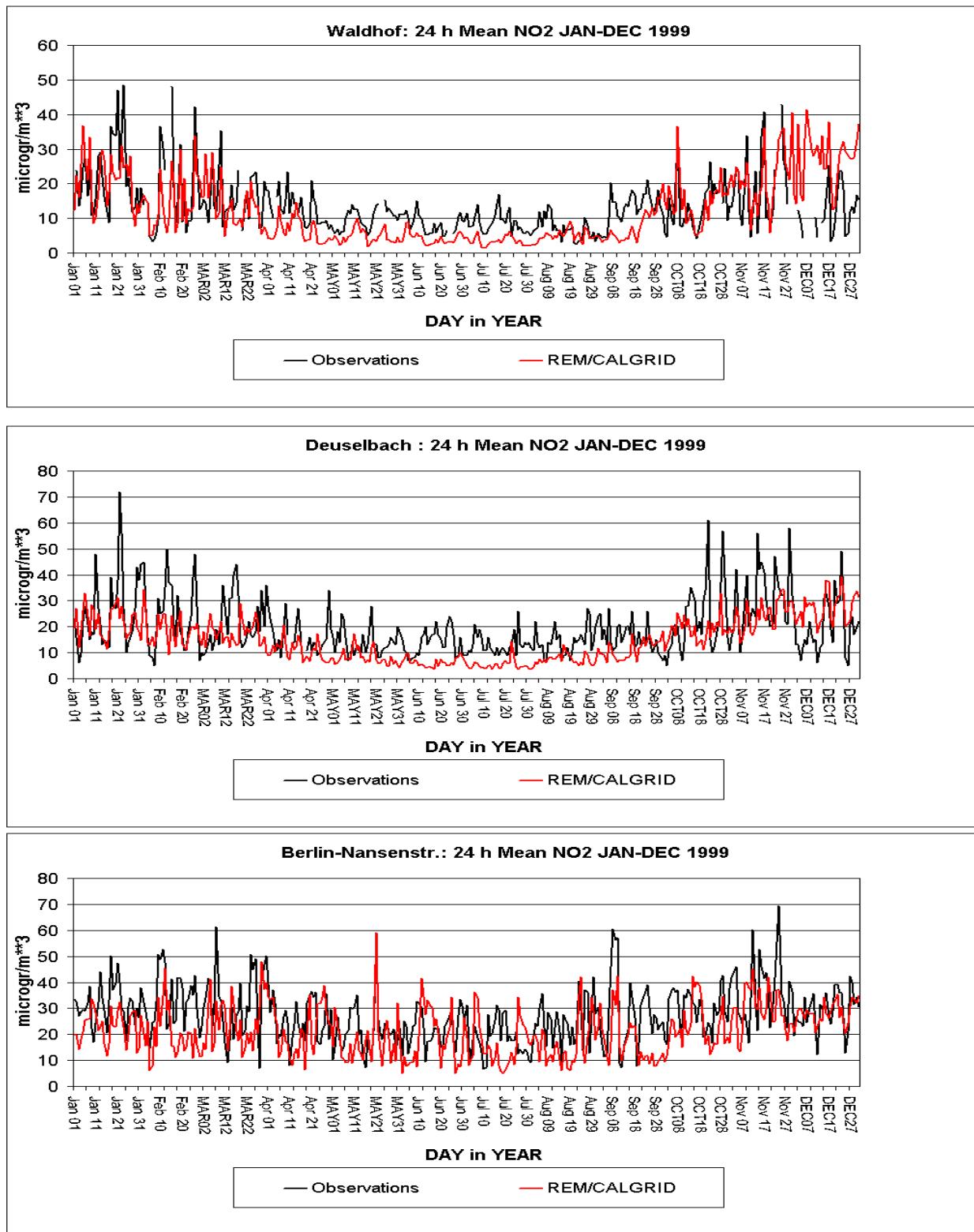


Abbildung 50: Berechnete und beobachtete NO₂-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1999. NO₂-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

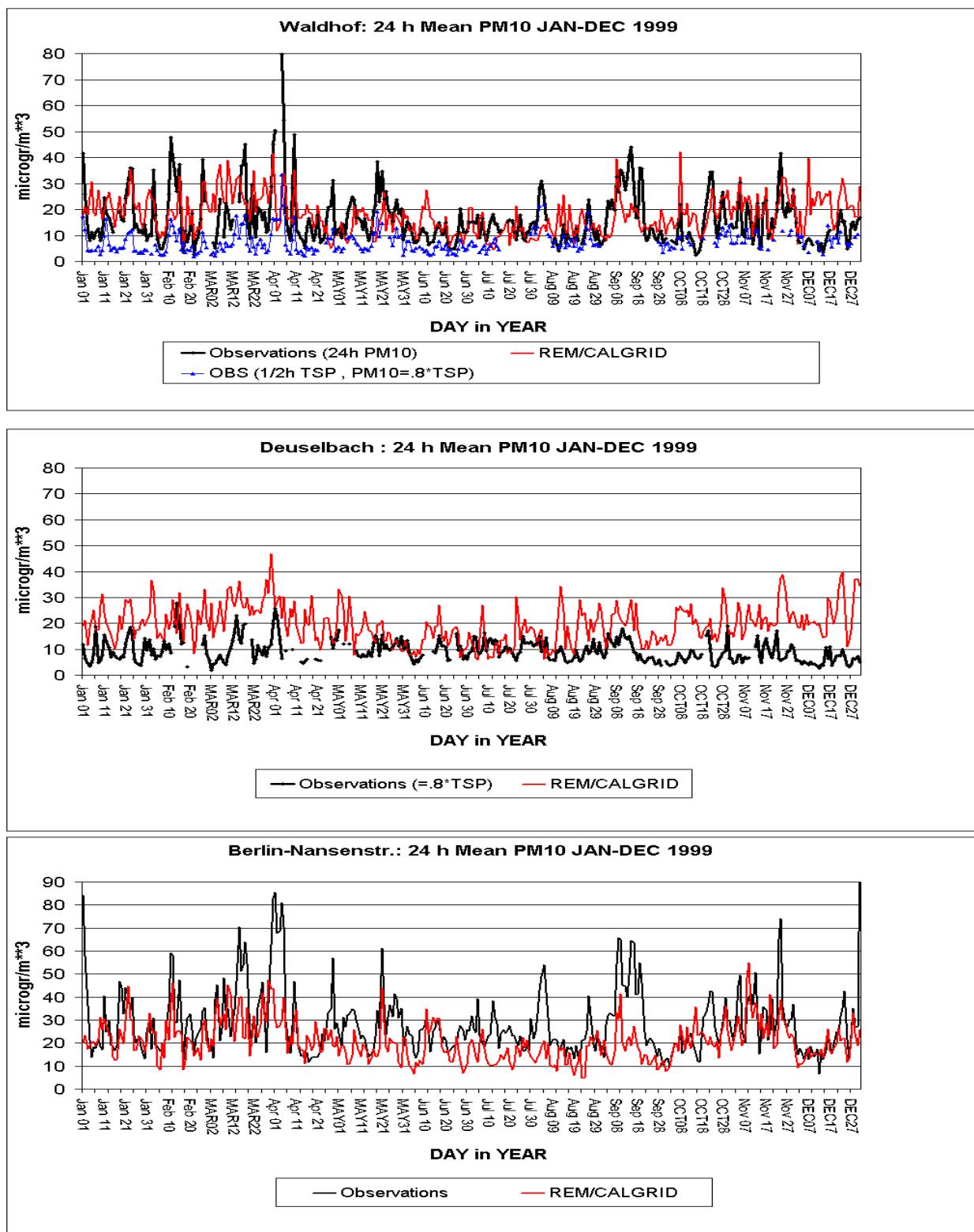


Abbildung 51: Berechnete und beobachtete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach (TSP) und Berlin-Nansenstr., 1999. PM10-Tagesmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Messungen in Waldhof und Nansenstr. basieren auf gravimetrischen 24 Stunden-Sammeln. Für Waldhof ist noch die zeitlich hoch aufgelöste TSP-Messung (Beta-Absorption) angegeben.

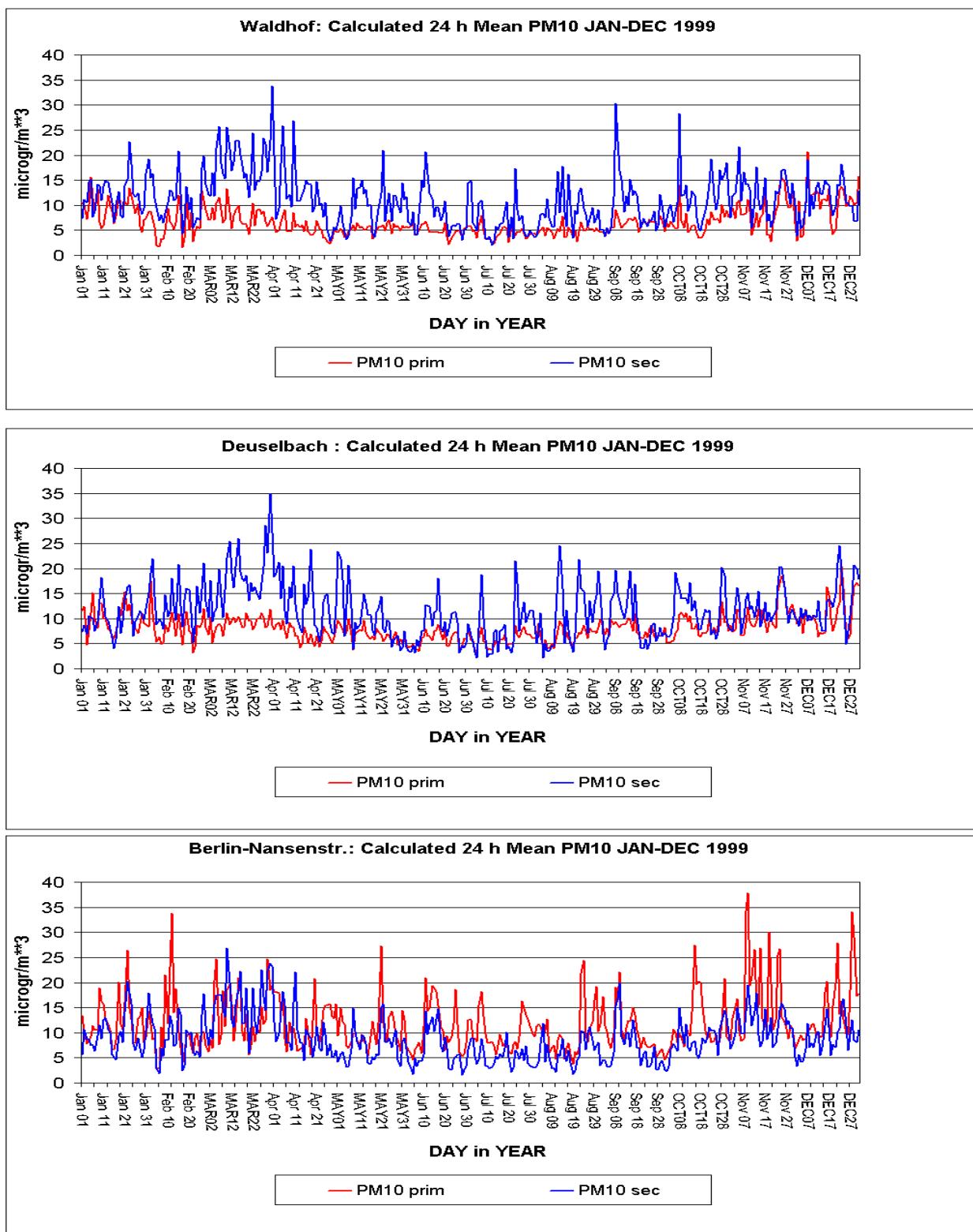


Abbildung 52: Berechnete PM10-Zeitreihe an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstr., 1999. Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ unterteilt in primäre Komponenten PM10 prim (PM₁₀+PM_{2.5}) und sekundäre Komponenten PM10 sec (SO₄+NO₃+NH₄).

4.5.1.2. Streudiagramme

Auf die Abbildung der Streudiagramme für die Ozontageswerte wird für 1999 verzichtet, da die Modellgüte dieser Größen derjenigen für die Jahre 1995 und 1997 entspricht. Weiterhin wird wie für 1997 im Folgenden nur noch auf die ländlichen Stationen eingegangen. Die Aufschlüsselung in die Monatsmittel zeigt wieder, dass die Winterwerte zum Teil unterschätzt werden (Abbildung 53). Die Streuung der Wintermonatsmittel ist dabei größer als 1997. Die berechneten Ozonjahresmittel 1999 liegen an allen ländlichen Stationen innerhalb oder nur knapp außerhalb des +/- 30%-Bereichs um die Messung (Abbildung 54). Die bayerischen Ozonstationen, die aber bis auf die Bergstationen in Garmisch-Partenkirchen eher der Kategorie Stadt zugeordnet werden müssen, werden wie schon für das Jahr 1997 überschätzt. Zum Vergleich der an Bergstationen gemessenen Konzentrationen mit den Rechenergebnissen werden die Konzentrationen aus einer höheren Modellschicht genommen. Die Höhe über Grund wird aus der Differenz der Stationshöhe über NN und der mittleren Höhe der Topographie über NN in der betreffenden Gitterbox berechnet.

Abbildung 58 zeigt die gemessenen und berechneten NO₂-Monatsmittel 1999 an den Landstationen. Die Streuung der Werte ist wieder ähnlich wie in den anderen beiden diskutierten Jahren. Den Verteilungen der NO₂-Jahresmittelwerte (Abbildung 59) kann entnommen werden, dass die stärksten Unterschätzungen des Modells wieder an den bayerischen „Land“-Stationen auftreten, von denen die meisten nach Flemming (2003a) eigentlich der Kategorie Stadt zuzuordnen sind. Umgekehrt werden einige der nordrhein-westfälischen Stationen und einige andere in der Nähe von Ballungsgebieten gelegene Stationen wie schon 1997 überschätzt.

Das Streudiagramm der berechneten und gemessenen PM10-Monatsmittel 1997 zeigt die Abbildung 60 für die ländlichen Stationen. Es ergibt sich dasselbe Bild wie in den anderen beiden Jahren: Eine deutliche Unterschätzung der Sommermonatsmittel und Unter-, aber auch Überschätzungen der Wintermonatsmittel, was wahrscheinlich wieder auf die zu stabilen winterlichen Schichtungen der Modellmeteorologie zurückzuführen ist. Die Unterschätzung der Sommerwerte führt wieder zu einer teilweisen Unterschätzung der PM10-Jahresmittelwerte (Abbildung 61), die 1999 aber nicht so stark wie 1997 ist. Bei den niedrigen gemessenen Werten kommt es 1999 sogar zu Überschätzungen. Insgesamt liegen die berechneten PM10-Jahresmittelwerte aber überwiegend innerhalb eines Bereiches von +/- 50% um die Messung.

Da die Flemming'sche Neueinteilung der Stationen in Belastungsregimes zeitlich gleichzeitig zu den hier beschriebenen Evaluierungen entwickelt wurde, konnte sie hier nicht mehr konsequent eingesetzt werden. Lediglich für Ozon wurde eine zweite Auswertung vorgenommen, die auf der neuen Stationseinteilung von Flemming (2003a) beruht. Nach dieser Einteilung gibt es nur noch 72 anstatt 88 Stationen, die dem ländlichen oder dem Bergregime zuzuordnen sind. Die mit dieser neuen Kategorisierung berechneten Jahresmittelwerte für Ozon zeigt die Abbildung 55. Da jetzt nahezu alle bayerischen ländlichen Berg-Stationen (außer den Bergstationen) der Kategorie Stadt zugeordnet werden (Flemming, 2003a), tauchen diese bis auf eine nicht mehr auf. Dadurch verschwinden auch die Überschätzungen. Ebenfalls werden jetzt einige der Stationen, die nach der alten Einteilung der Kategorie Land zugeordnet werden, in der neuen Einteilung als Bergstationen behandelt. Die Abbildung 56 zeigt die berechnete und gemessene Anzahl der Tage im Jahr 1999, an denen der höchste tägliche gleitende Ozon-8-Stundenmittelwert größer als 120 µg/m³, jeweils für die alte und die neue Auswahl an Stationen, die zur Modellevaluierung benutzt werden. Auf Basis der alten Zuordnung kommt es vor allem an den bayerischen Stationen, die als Landstationen eingestuft wurden, zu hohen Überschätzungen der Anzahl der Überschreitungstage. Die Übereinstimmung von Messung und Rechung ist sichtlich besser, wenn man die neue Stationskategorisierung als Grundlage für die Auswahl der Stationen nimmt, die zur Modellevaluierung benutzt werden. Die Küstenstationen sind in dieser Darstellung separat gekenn-

zeichnet. Es ist offensichtlich, dass die berechnete Anzahl der Überschreitungen an den Küstenstationen durchweg höher ist als die gemessene. Der Grund für die Überschätzung liegt in der großen Maschenweite des Modells, wodurch ein Großteil der Fläche in den Zellen an der Küstenlinie mit Wasser bedeckt ist, was dann zu einer verminderten Deposition von Ozon und damit zu erhöhten Konzentrationen führt.

Insgesamt macht der Vergleich der beiden unterschiedlichen nicht-städtischen Stationsgruppierungen deutlich, wie wichtig eine der Modellskala angepasste Auswahl der Stationen für die Modellevaluierung ist.

Die Abbildung 57 zeigt die berechneten und gemessenen AOT40-Werte für Pflanzen und Wälder basierend auf der neuen Stationsklassifizierung von Flemming (2003a). Die berechneten Werte wurden dabei von der mittleren Höhe der ersten Schicht (10 m) auf die mittlere Messhöhe von 3.5m skaliert, da die AOT40-Werte sehr sensitiv bezüglich der Referenzhöhe sind. Die Skalierung wurde auf Basis der Vertikalgradientauswertungen von Pleijel und Grennfelt (1996) vorgenommen. Nach den Auswertungen von Ozonmessungen über einem Feld kann man nach diesen Autoren zwischen 10 m und 3.5 m mit einer Abnahme der AOT40-Werte von etwa 20% ausgehen. Dieser Faktor wurde für die Skalierung der berechneten AOT40-Werte verwendet. Die Streuung der berechneten AOT40-Werte ist recht groß. Die Küstenstationen werden aus den oben genannten Gründen überschätzt. Ebenfalls überschätzt werden die AOT40-Werte an den Bergstationen, deren komplexes, stark von den lokalen meteorologischen Bedingungen abhängiges Depositionsverhalten mit der hier verwendeten Parametrisierung für die Bestimmung der Konzentrationen an Bergstationen nur begrenzt simuliert werden kann. Betrachtet man den jeweiligen Grenzwert ($18000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$ für Pflanzen, $20000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$ für Wälder), so ist aber offensichtlich, dass das Modell an der Mehrzahl der Stationen, an denen der Grenzwert überschritten wird, ebenfalls eine Überschreitung berechnet. Ähnliches gilt für den umgekehrten Fall.

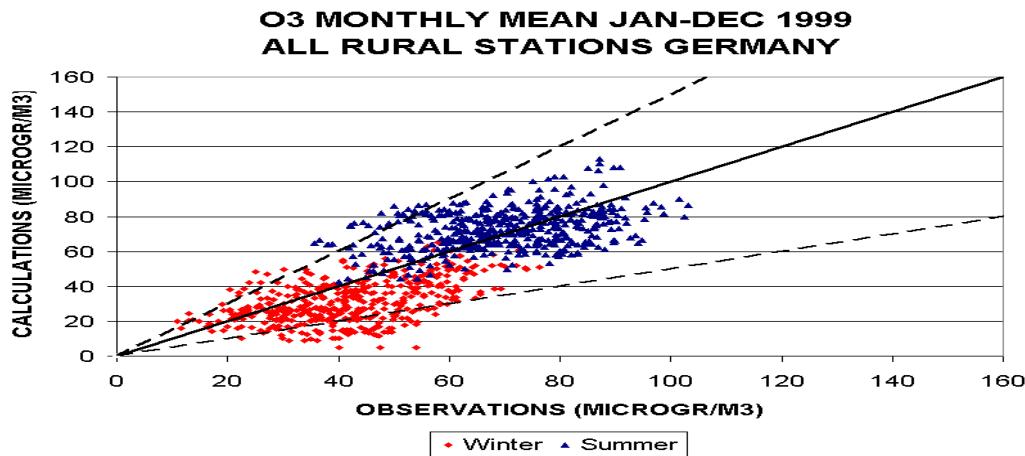


Abbildung 53: Gemessene und berechnete Ozonmonatsmittel 1999 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozonstationen der Kategorie Land (ohne Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

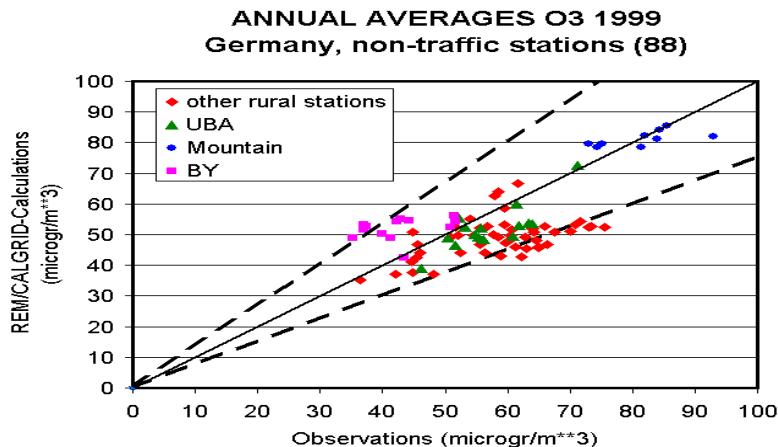


Abbildung 54: Gemessene und berechnete Ozonjahresmittel 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), alle Bergstationen und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Ozonstationen der Kategorie Land (mit Bergstationen). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an.

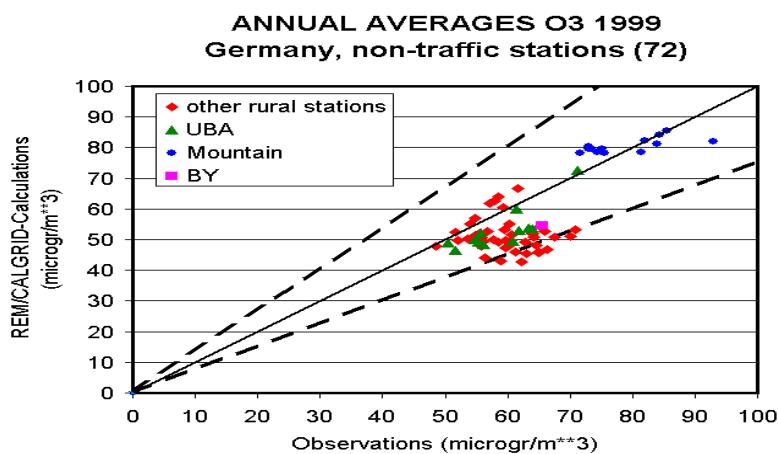


Abbildung 55: Wie Abbildung 54, aber Klassifizierung der nicht-städtischen Stationen nach der Clustermethode von Flemming (2003a). Weitere Erläuterungen im Text.

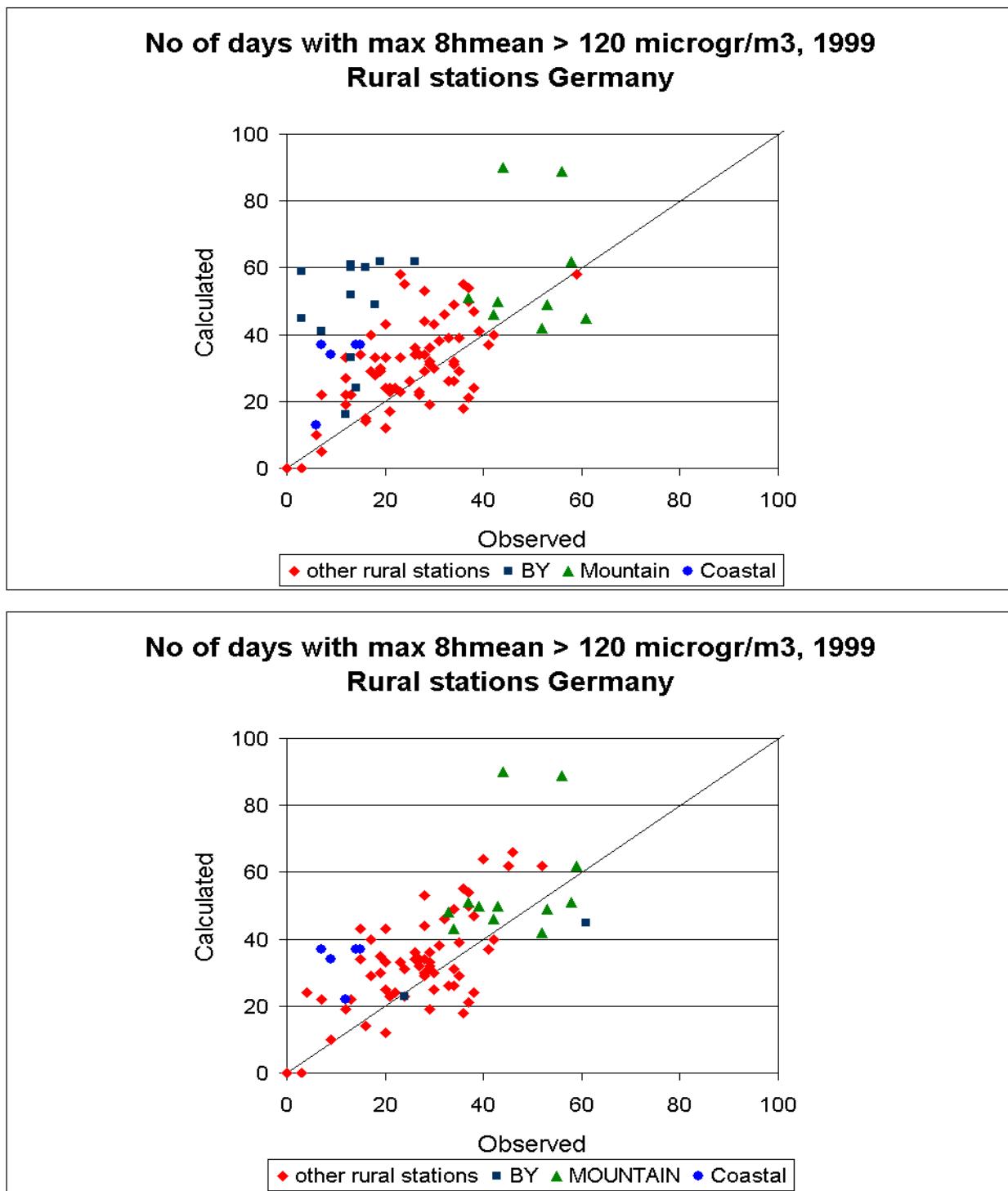


Abbildung 56: Berechnete und gemessene Anzahl der Tage im Jahr 1999, an denen der tägliche höchste gleitende Ozon-8-Stundenmittelwert größer als $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ist. Oben: Ländliche, Küsten- und Bergstationen nach der alten UBA-Kategorisierung, unten nach der Flemming'schen Neueinteilung (Flemming, 2003a). BY Bayerische Stationen, COASTAL: Stationen an der Küste oder auf Inseln, MOUNTAIN: Bergstationen. Weitere Erläuterungen im Text.

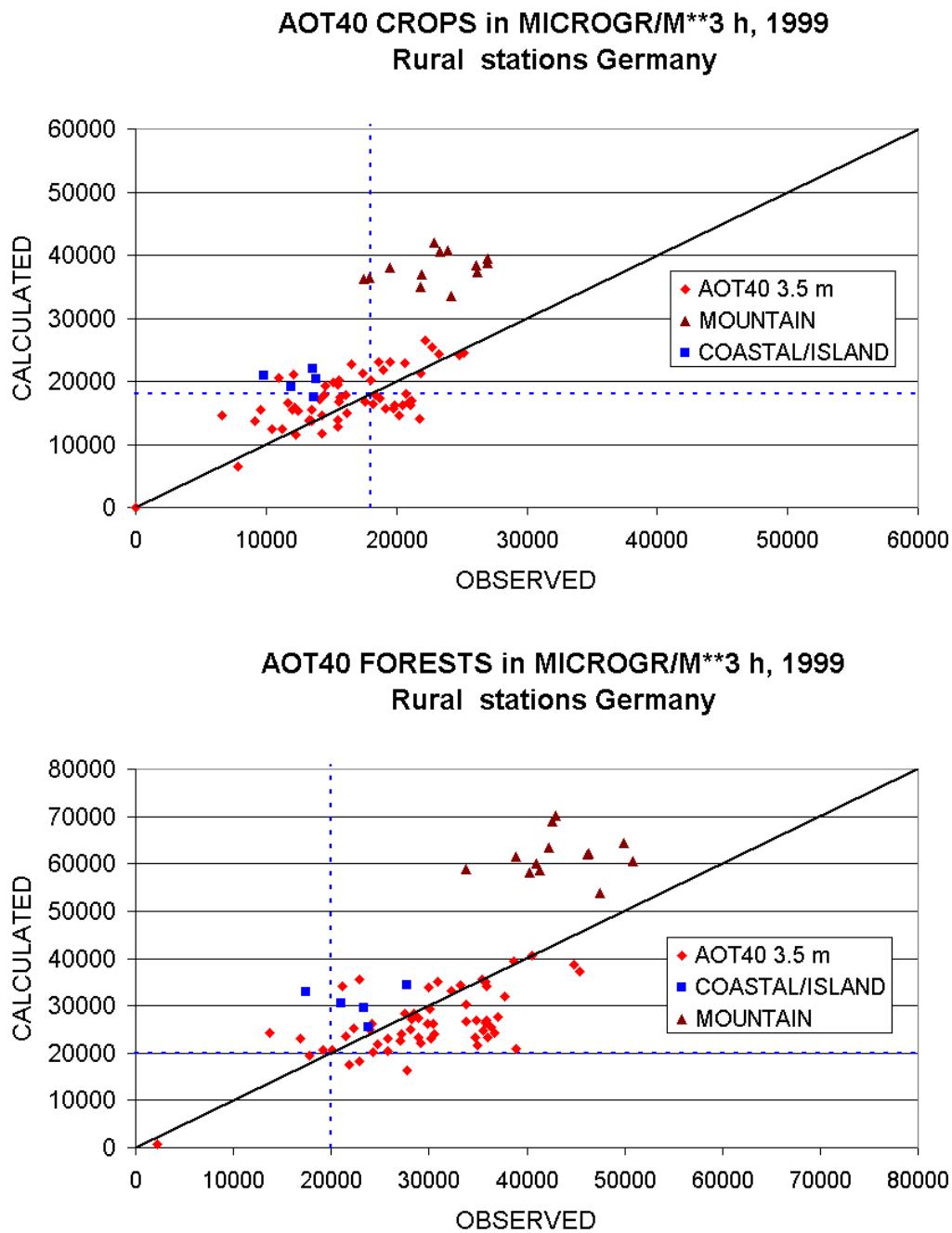


Abbildung 57: Berechnete und gemessene AOT40-Werte in $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$ für Pflanzen (oben) und Wälder (unten). Stationskategorisierung nach der Flemming'schen Neueinteilung (Flemming, 2003a). Die gestrichelten Linien kennzeichnen die Grenzwerte der EU-Tochterrichtlinie für Ozon. Weitere Erläuterungen im Text.

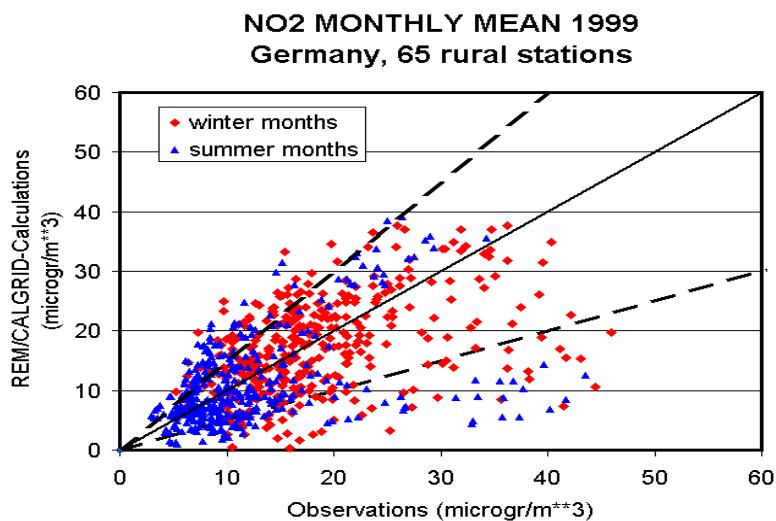


Abbildung 58: Gemessene und berechnete Verteilung der NO₂-Monatsmittel 1999 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO₂-Stationen der UBA-Kategorie Land. Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

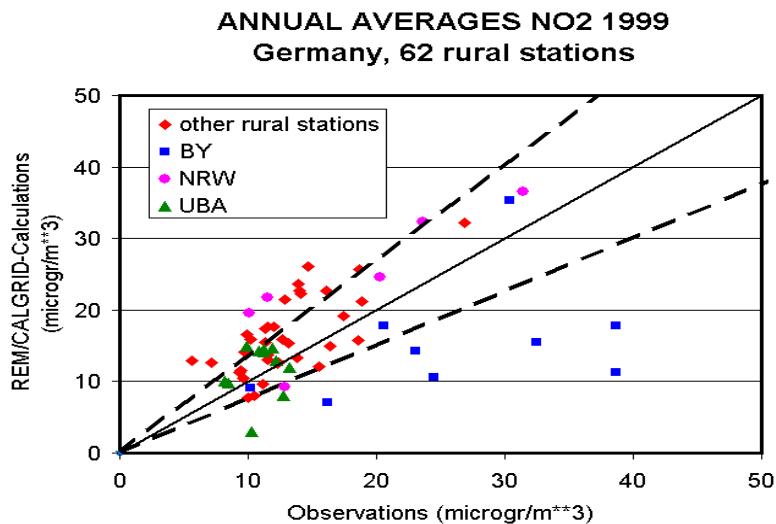


Abbildung 59: Gemessene und berechnete Verteilung der NO₂-Jahresmittel 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen NO₂-Stationen der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 30%-Bereich bezogen auf die Messung an.

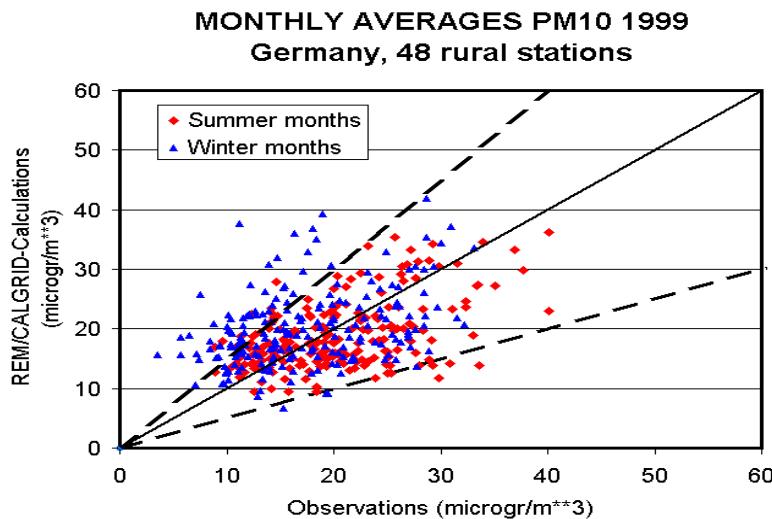


Abbildung 60: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Monatsmittel 1999 unterteilt in Winter- und Sommermonate in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen der UBA-Kategorie Land ($\text{PM10} = 0.8 \cdot \text{TSP}$). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

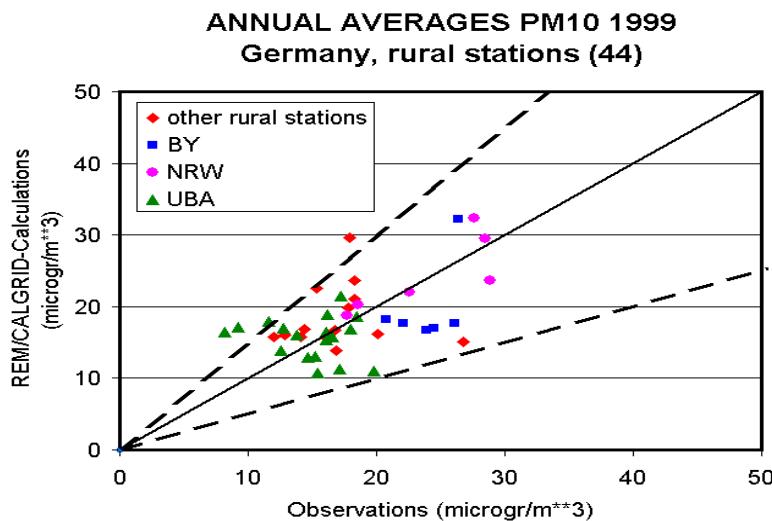


Abbildung 61: Gemessene und berechnete Verteilung der PM10-Jahresmittel 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle deutschen TSP-Stationen ($\text{PM10} = 0.8 \cdot \text{TSP}$) der UBA-Kategorie Land unterteilt in UBA-Stationen (UBA), bayerische Stationen (BY), nordrhein-westfälische Stationen (NRW) und Stationen in den anderen Bundesländern (other rural). Die gestrichelten Linien geben den +/- 50%-Bereich bezogen auf die Messung an.

4.5.1.3. Statistische Auswertung

Die mittlere statistische Auswertung für 1999 zeigt die Tabelle 21. Ozon wurde mit der alten Stationseinteilung des Umweltbundesamts (alt) und mit der neuen Einteilung von Flemming (2003a) ausgewertet (neu). Der Bias für PM10 ist im Jahre 1999 deutlich geringer als in 1997, da

die Unterschätzungen im Sommer durch die Überschätzungen im Winter ausgeglichen werden (siehe auch Abbildung 60 und Abbildung 61). Die Verwendung der neuen Stationseinteilung nach Flemming (2003a) führt zu etwas besseren statistischen Maßzahlen als die alte UBA-Einteilung. Ansonsten gilt wie in den anderen Jahren, dass die Anzahl der berechneten Konzentrationswerte, die in die vorgegebenen Bereiche fallen, für Ozon sehr viel größer ist als für die beiden anderen Stoffe.

Ländliche Stationen	neu	neu	alt	alt	alt	alt
Tageswerte 1999	O3-Maximum	O3-Mittel	O3-Maximum	O3-Mittel	NO2-Mittel	PM10-Mittel
Anzahl der Stationen	72	72	78	78	67	39
Omean	82.65	59.32	74.21	55.61	15.47	20.26
Osigma	29.83	23.04	26.63	22.14	8.07	10.47
Cmean	78.40	50.77	72.65	51.45	16.26	21.35
Csigma	37.15	24.66	33.02	24.70	8.64	8.60
BIAS	-4.25	-8.56	-1.56	-4.16	0.80	1.09
MNB	-0.04	-0.10	0.02	0.03	0.28	0.32
MAF	0.24	0.30	0.24	0.38	0.63	0.59
MNAF	0.17	0.23	0.39	0.52	0.91	0.76
MNQF	16.83	15.17	15.26	15.45	7.93	9.20
SDR	20.16	15.62	18.09	15.87	7.63	10.61
R	0.84	0.79	0.75	0.77	0.60	0.39
% in Faktor 2	95.37	87.77	85.67	86.78	68.46	75.12
% in 50%	92.97	84.45	82.72	80.04	54.67	59.39
% in 30%	70.84	60.43	63.75	56.68	34.52	38.00
%Obs	98.54	97.11	92.86	97.09	84.69	95.08

Tabelle 21: Statistische Auswertung gemittelt über alle Stationen der Kategorie ländlich. Zur Definition der Maße siehe Kap. 4.2. Alle dimensionsbehafteten Maße sind in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ausgewiesen. Täglicher Ozonmittelwert 1999, Tägliches Ozonmaximum 1999, Täglicher NO₂-Mittelwert 1999, Täglicher PM10-Mittelwert 1999. Ozon wurde mit der alten Stationseinteilung des Umweltbundesamt (alt) und mit der neuen Einteilung von Flemming (2003a) ausgewertet. Weitere Erläuterungen im Text. Auswertung in zeitlicher Abfolge.

4.5.2. Flächendarstellungen

Für das Jahr 1999, das später als Basisjahr für die Emissionsszenarien dient, werden in diesem Kapitel die berechneten europaweiten Konzentrationsverteilungen diskutiert. Die Abbildung 62 bis Abbildung 64 zeigen die berechneten Ozonjahresmittel, Ozonsommermittel und Ozonwintermittel im Modellgebiet. Die in Deutschland berechneten Jahresmittel liegen zwischen 30 und 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit den niedrigsten Werten im Ruhrgebiet. Die Sommermittelwerte liegen zwischen 40 und 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, die Wintermittelwerte zwischen 10 und 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Der berechnete Ozongradient von Nord- nach Süddeutschland ist deutlich erkennbar. Europaweit werden die höchsten Ozonwerte in Norditalien berechnet. Die hohen Mittelwerte über den Meeren sind eine Folge der sehr geringen Ozondeposition über Wasser. Im Winter ist Europa eher eine Ozonsenke, d. h. die berechneten Werte liegen unter dem troposphärischen Hintergrund. Es wurde aber bereits in den vorhergehenden Kapiteln gezeigt, dass das REM/CALGRID im Winter eher zu niedrige Ozonwerte berechnet, da die durch die meteorologischen Eingabedaten vorgegebenen vertikalen Stabilitätsbedingungen zu stabil sind, was dann den Vertikalaustausch herabsetzt. Dadurch ergeben sich vor allem in den Ballungsgebieten mit hohen Stickoxidemissionen sehr niedrige Ozonkonzentrationen. Die Verteilung der höchsten berechneten Ozonwerte im Jahre 1999 zeigt die Abbildung 65. Spitzenwerte über 220 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ werden vor allem in Norditalien, aber auch im Großraum Paris und zum Teil in den Beneluxländern berechnet. In Deutschland liegen die Spitzen unter 220 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Anzahl der Tage, an denen der in der EU-Tochterrichtlinie für Ozon definierte Konzentrationswert von 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für den höchsten täglichen 8-Stundenmittelwert überschritten wird, zeigt die Abbildung 66. Die 25 Tage mit Überschreitungen, die nach der EU-Tochterrichtlinie erlaubt sind, werden nach den Berechnungen in weiten Teilen des westlichen Europas überschritten. In Deutschland werden insbesondere in der Südhälfte viele Überschreitungstage berechnet.

Die Abbildung 67 und die Abbildung 68 zeigen die berechnete Verteilung der AOT40-Werte für Pflanzen und Wälder (Rechenwerte skaliert auf 3,5 m, siehe Kap.4.5.1.2.). Der besseren Übersicht wegen wurden die AOT40-Werte mit dem jeweiligen Grenzwert der EU-Tochterrichtlinie normiert. Der AOT40-Grenzwert für Pflanzen, 18000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$, wird im Süden Deutschlands überschritten. Zu sehr starken Überschreitungen kommt es in Norditalien. Der AOT40-Grenzwert für Wälder, 20000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$, wird nach den Berechnungen für 1999 nahezu überall in Deutschland überschritten. Die höchsten Überschreitungen werden wieder im Südwesten Deutschlands berechnet. Die flächenhaften AOT-Werte sind in den Bergregionen nur beschränkt repräsentativ, da zur Darstellung nur die Bodenwerte verwendet wurden. Eine Einbeziehung der Bergwertparametrisierung in die flächenhafte Darstellung ist schwierig, da die eingeschränkte räumliche Repräsentativität hoher Erhebungen in der hier benutzten Auflösung nicht darstellbar ist. Wie in Kap.4.5.1.2 gezeigt wurde, sind an Bergstationen aber höhere AOT40-Werte zu erwarten, so dass die flächenhaften Darstellungen in solchen Gebieten die AOT40-Werte eher unterschätzen.

Die berechneten NO₂-Mittelwerte zeigen die höchsten Konzentrationen in den großen Ballungsgebieten Europas: Paris, London, Mailand und dem Ruhrgebiet (Abbildung 69 bis Abbildung 71). Im Ruhrgebiet liegen die höchsten berechneten Jahresmittelwerte über 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Wintermittelwerte sind in allen Ballungsgebieten deutlich höher als die Sommermittelwerte.

In der Abbildung 72 bis Abbildung 74 sind die PM10-Konzentrationsverteilungen dargestellt. Wie beim Stickstoffdioxid werden die höchsten Konzentrationen in den großen Ballungsgebieten Europas berechnet. Die PM10-Winterwerte sind zwar höher als die Sommerwerte, der Unterschied zwischen Winter und Sommer ist aber geringer als bei den Stickoxiden. Die Abbildung 75 und Abbildung 76 zeigen die berechneten Jahresmittelkonzentrationen der direkt anthropogenemittierten PM10-Anteile unterteilt in die Fraktion PMCO (PM10-PM2.5) und PM2.5. Die Konzentrationsschwerpunkte liegen wieder in den Ballungsgebieten Europas. Entsprechend den

Vorgaben des Emissionskatasters sind die Feinstaubkonzentrationen PM2.5 deutlich höher als diejenigen der PMCO-Fraktion größer 2.5 µm. Die mittleren Jahreskonzentrationen der sekundären Aerosole Sulfat, Nitrat und Ammonium zeigen Abbildung 77 bis Abbildung 79. Die berechneten Sulfat-Jahresmittelwerte liegen in Zentraleuropa zwischen 2 und 6 µg/m³ mit höheren Konzentrationen in Osteuropa, was wie die Maximalkonzentrationen im Großraum Budapest eine Folge der im Vergleich zu Westeuropa immer noch hohen Schwefeldioxid-Emissionen in diesem Teil Europas ist. Sehr hohe Nitrat- und Ammoniumkonzentrationen werden in der Pobebene in Norditalien berechnet, aber auch in den Industriegebieten Südpolens sowie den Beneluxländern. Vergleicht man die prozentualen Anteile der primären und der sekundären PM10-Beiträge (Abbildung 80 und Abbildung 81), so ist offensichtlich, dass die primären Komponenten den Hauptanteil in den großen Emissionszentren stellen, während die sekundären Komponenten in den weniger und gering emissionsbelasteten Regionen überwiegen.

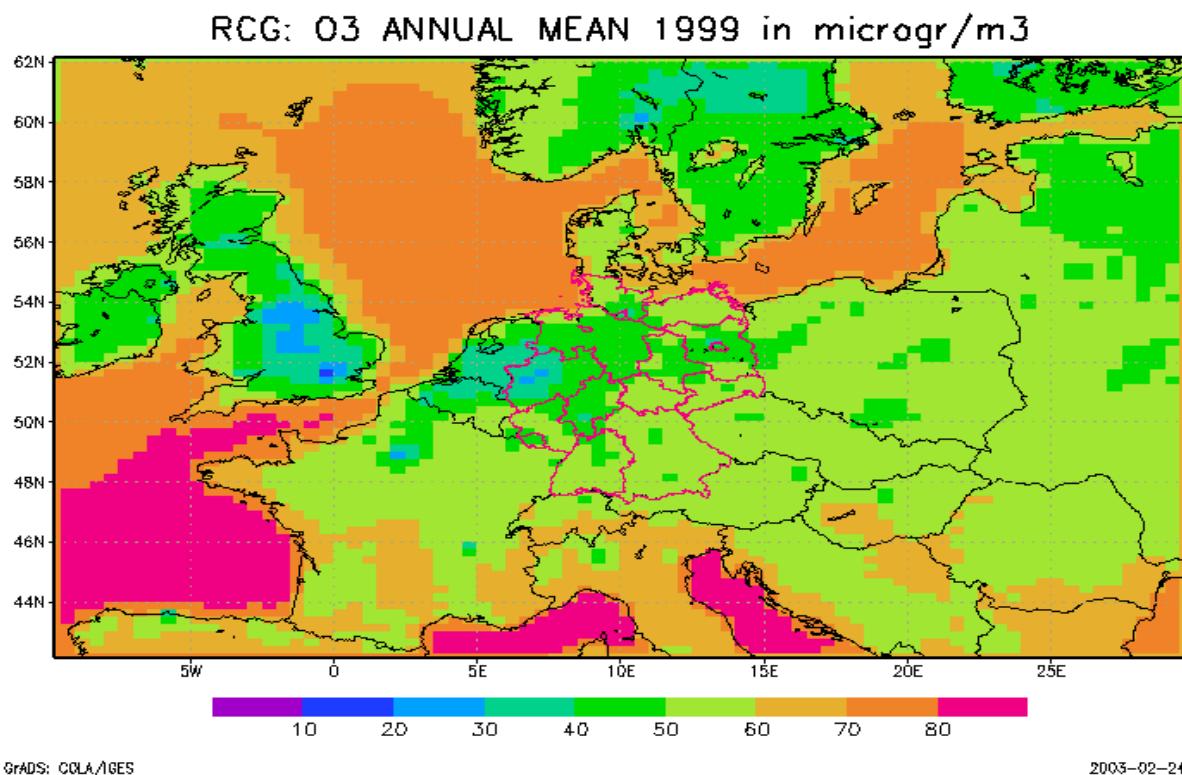


Abbildung 62: Berechnete Ozon-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

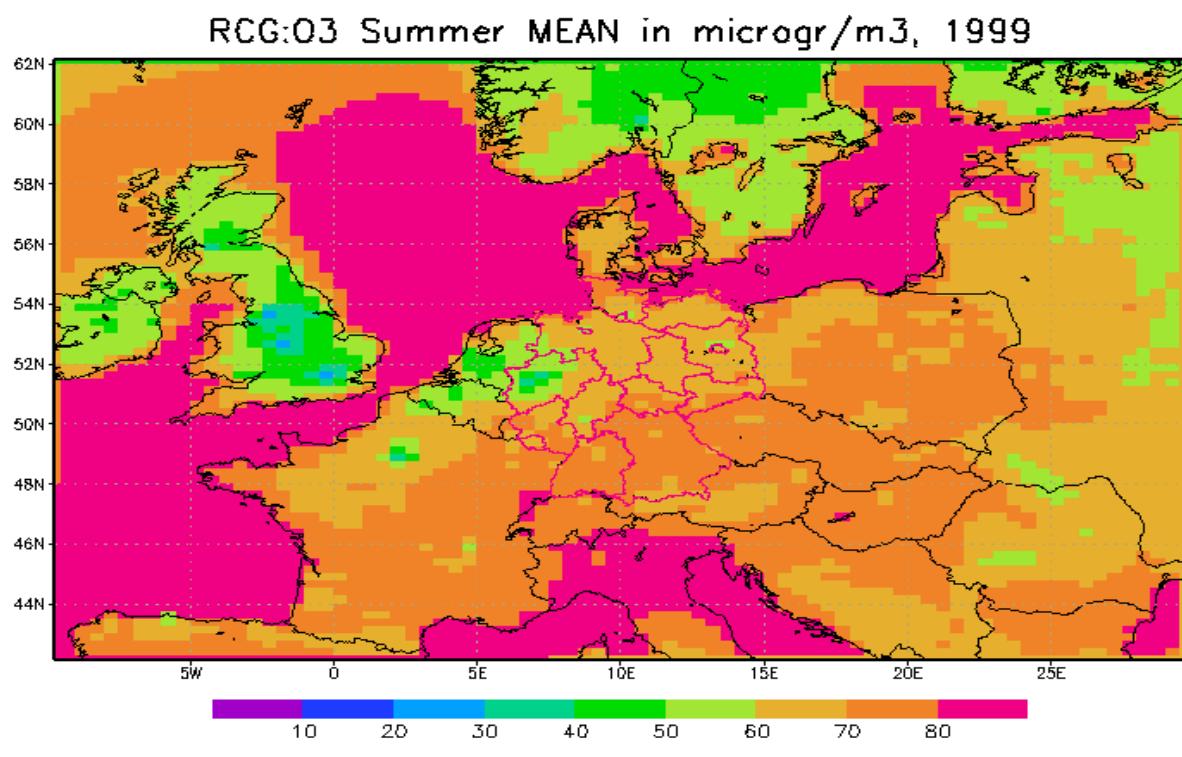


Abbildung 63: Berechnete Ozon-Sommermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

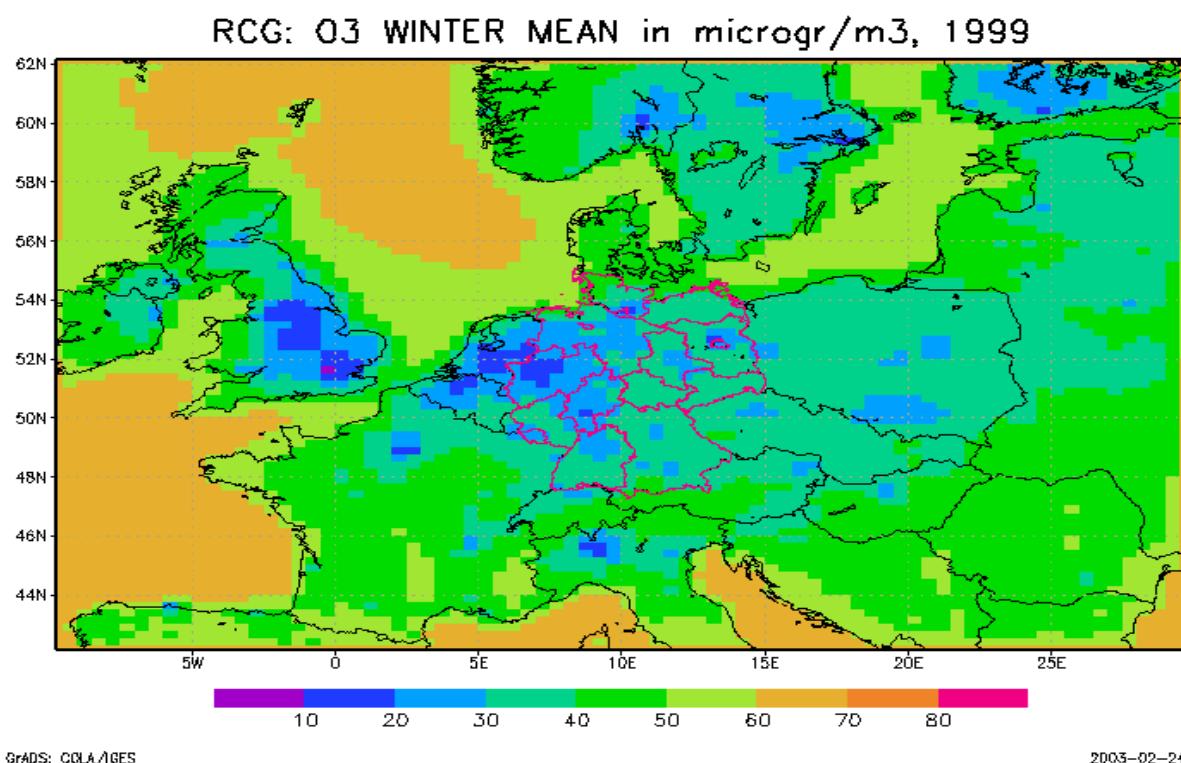


Abbildung 64: Berechnete Ozon-Wintermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

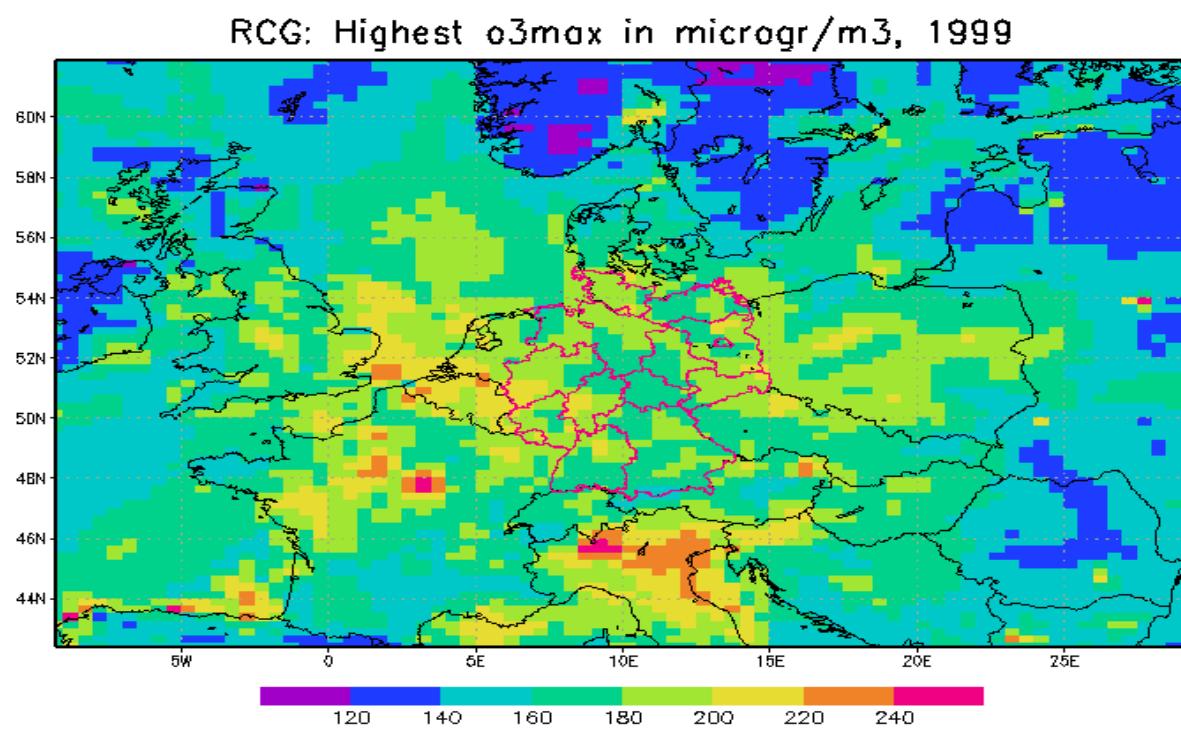


Abbildung 65: Höchste berechnete Ozonwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

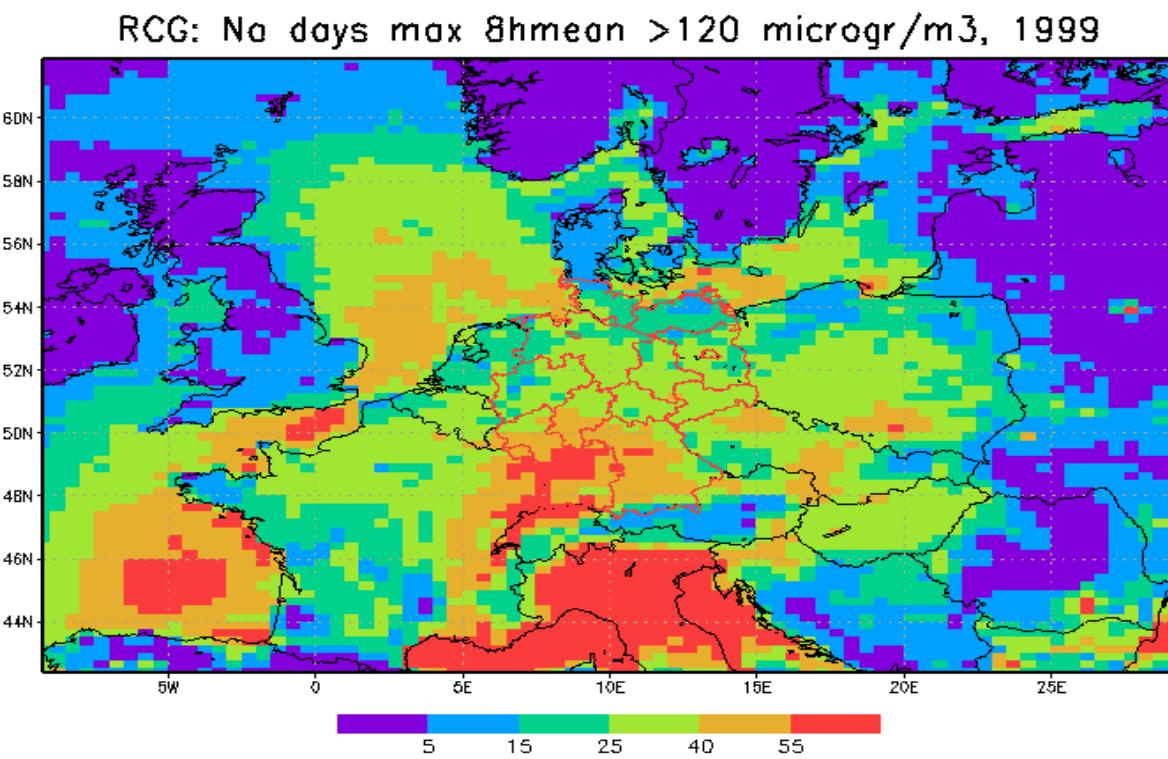
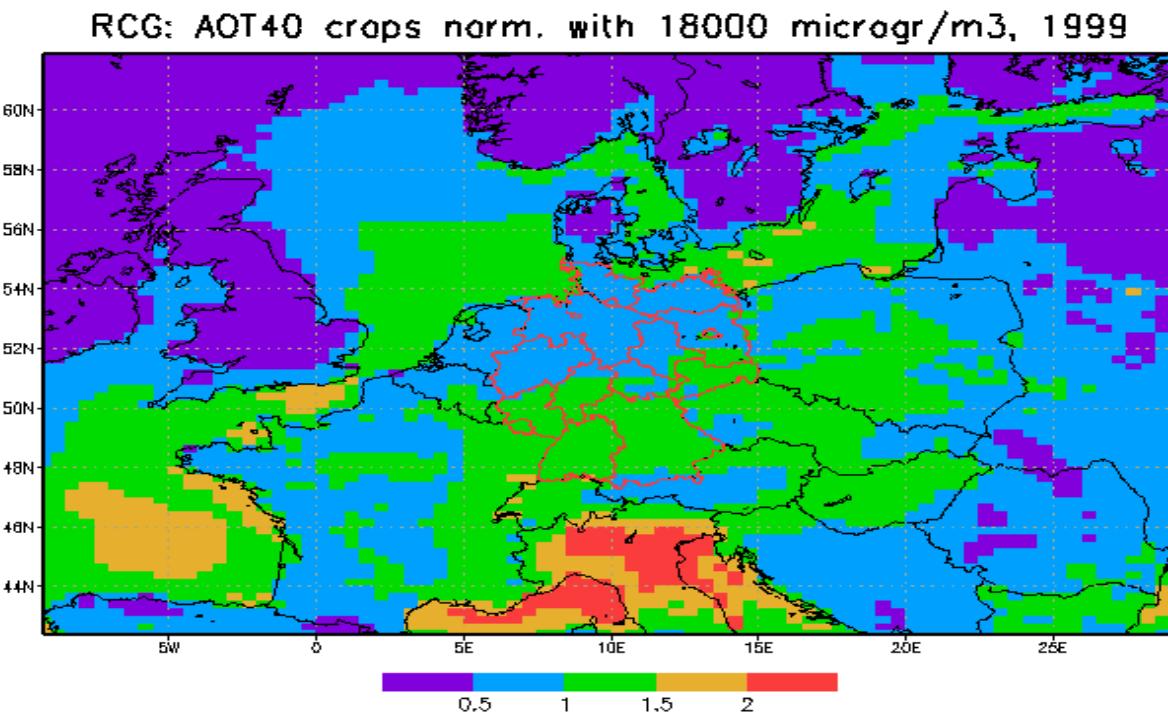


Abbildung 66: Berechnete Anzahl der Tage in 1999, in denen der höchste tägliche 8-Stundenmittelwert von Ozon größer als 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt.



GRADS: COLA/KES

2003-02-27-14:23

Abbildung 67: Berechnete AOT40-Werte für Pflanzen normiert mit dem Grenzwert (18000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ h) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Bezugsjahr 1999.

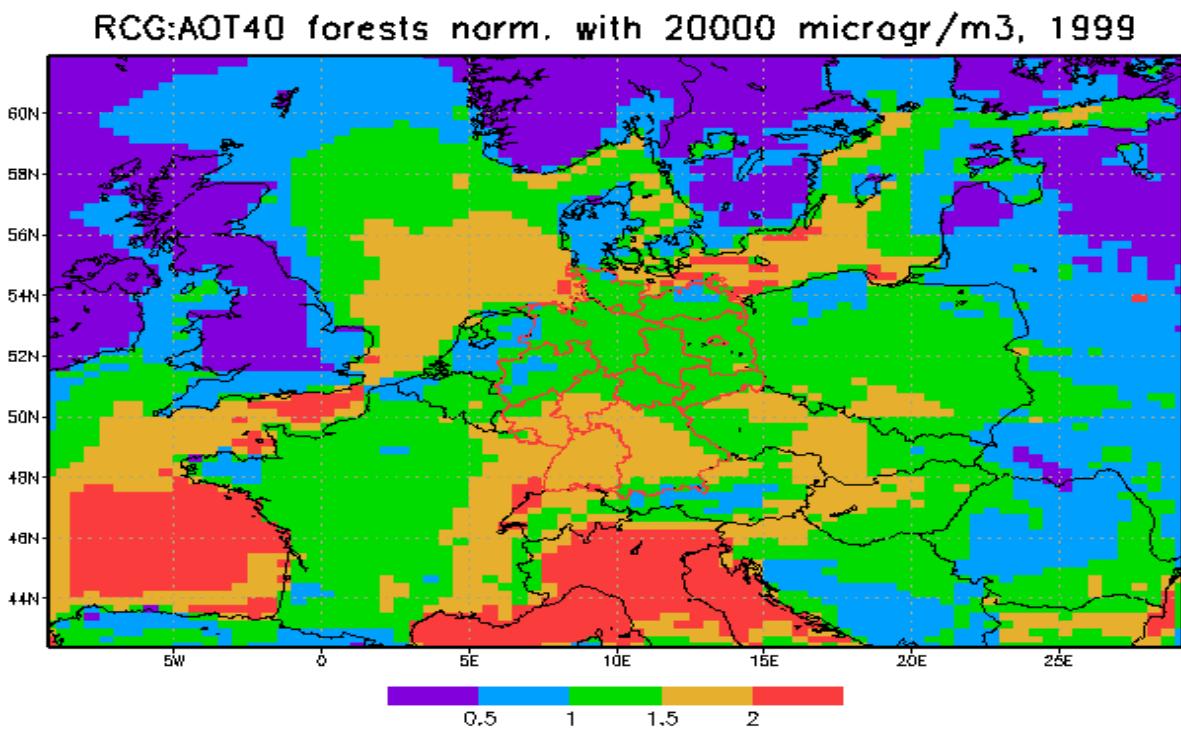


Abbildung 68: Berechnete AOT40-Werte für Wälder normiert mit dem Grenzwert (20000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Bezugsjahr 1999.

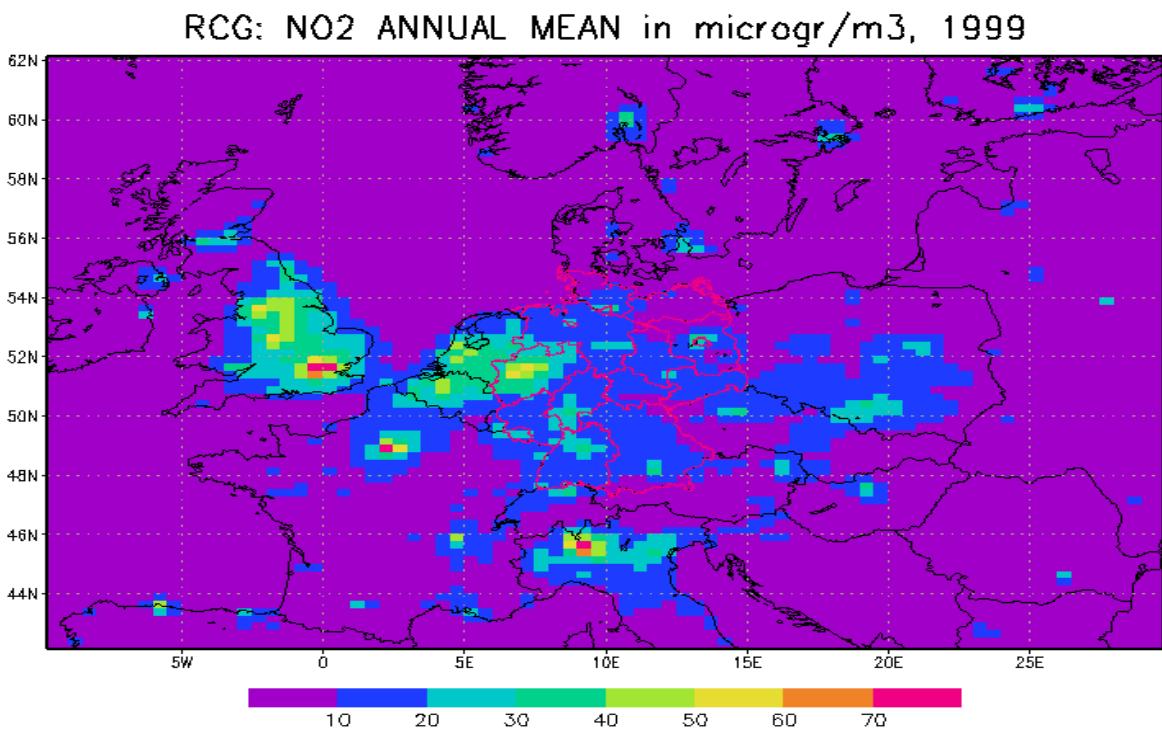


Abbildung 69: Berechnete NO₂-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

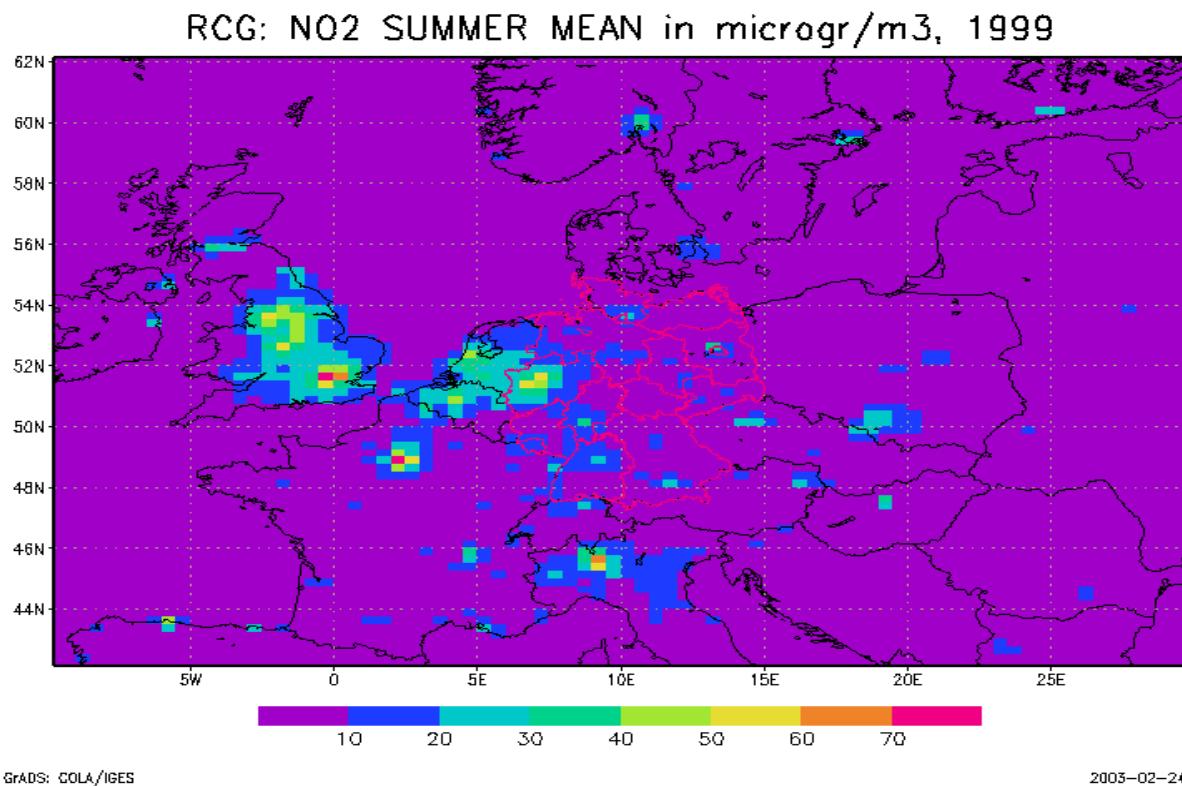


Abbildung 70: Berechnete NO₂-Sommermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

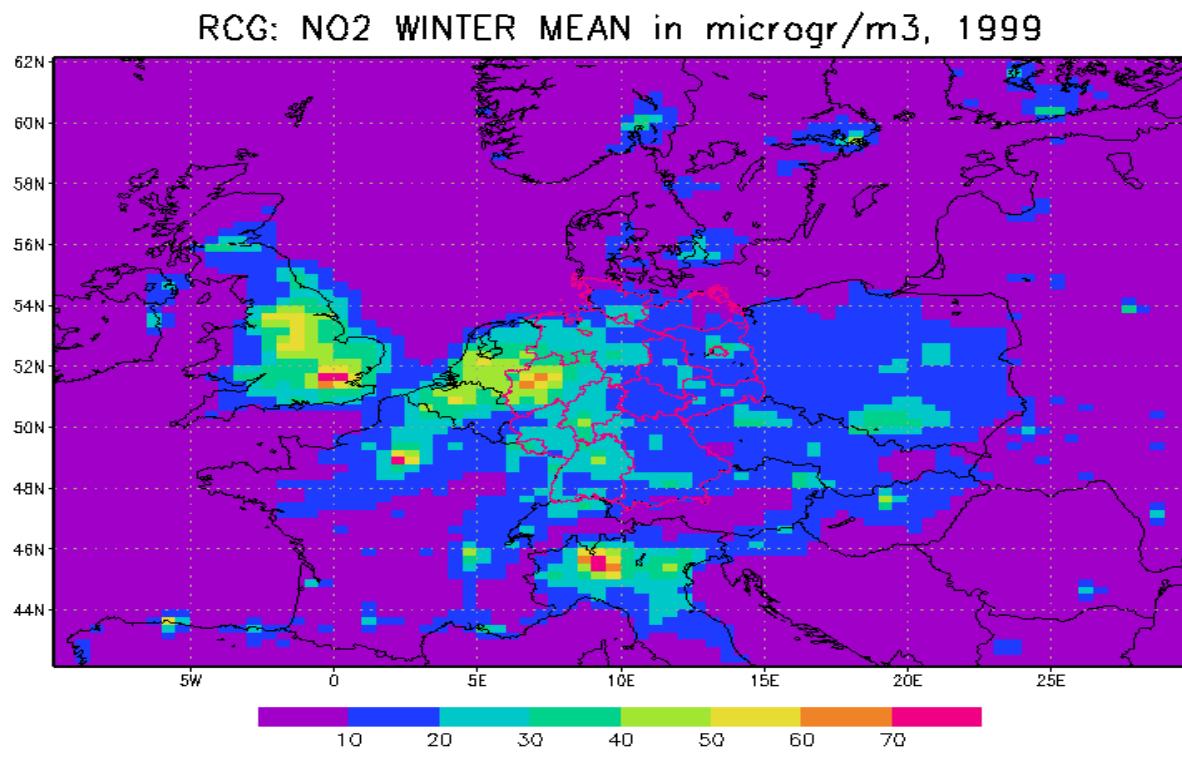


Abbildung 71: Berechnete NO₂-Wintermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

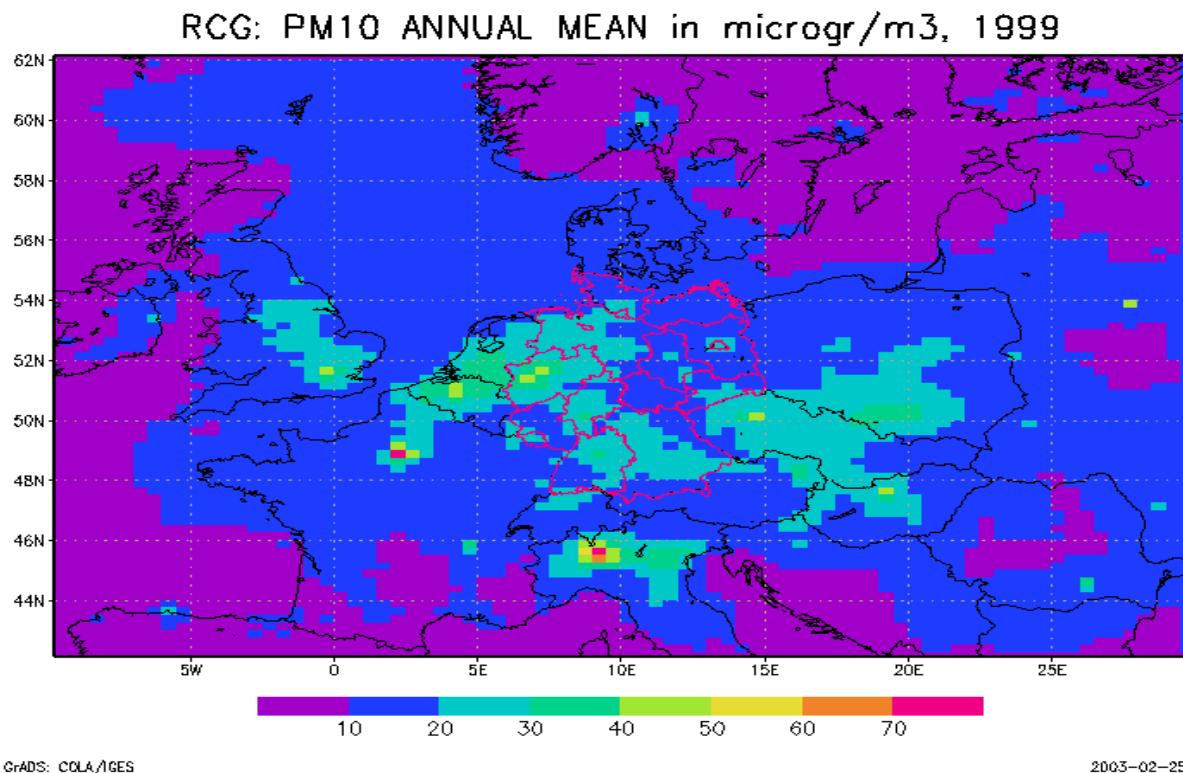


Abbildung 72: Berechnete PM10-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

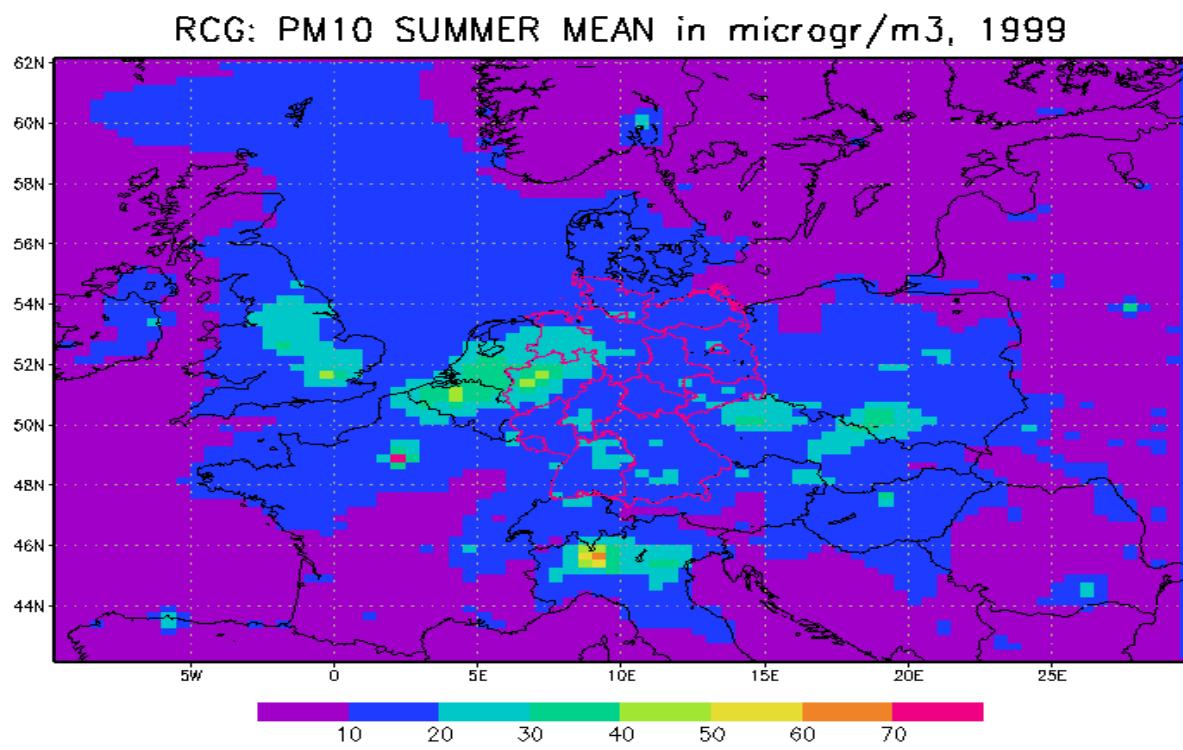


Abbildung 73: Berechnete PM10-Sommermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

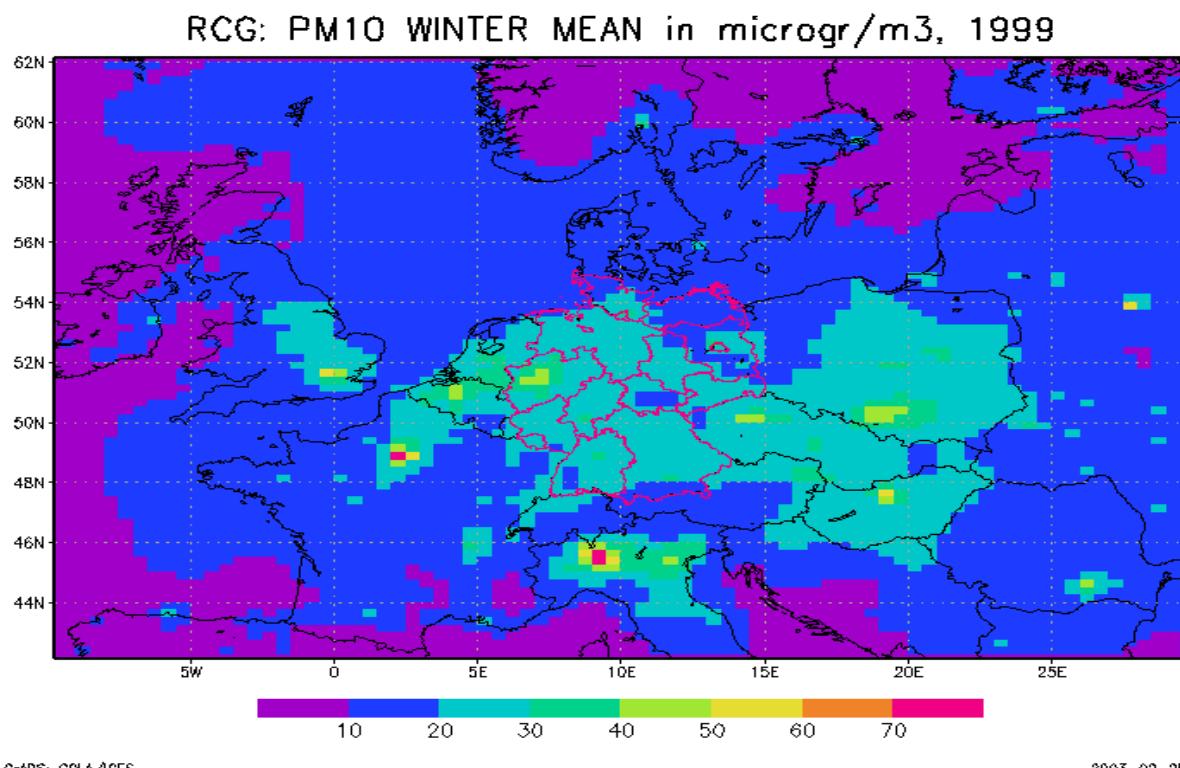


Abbildung 74: Berechnete PM10-Wintermittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

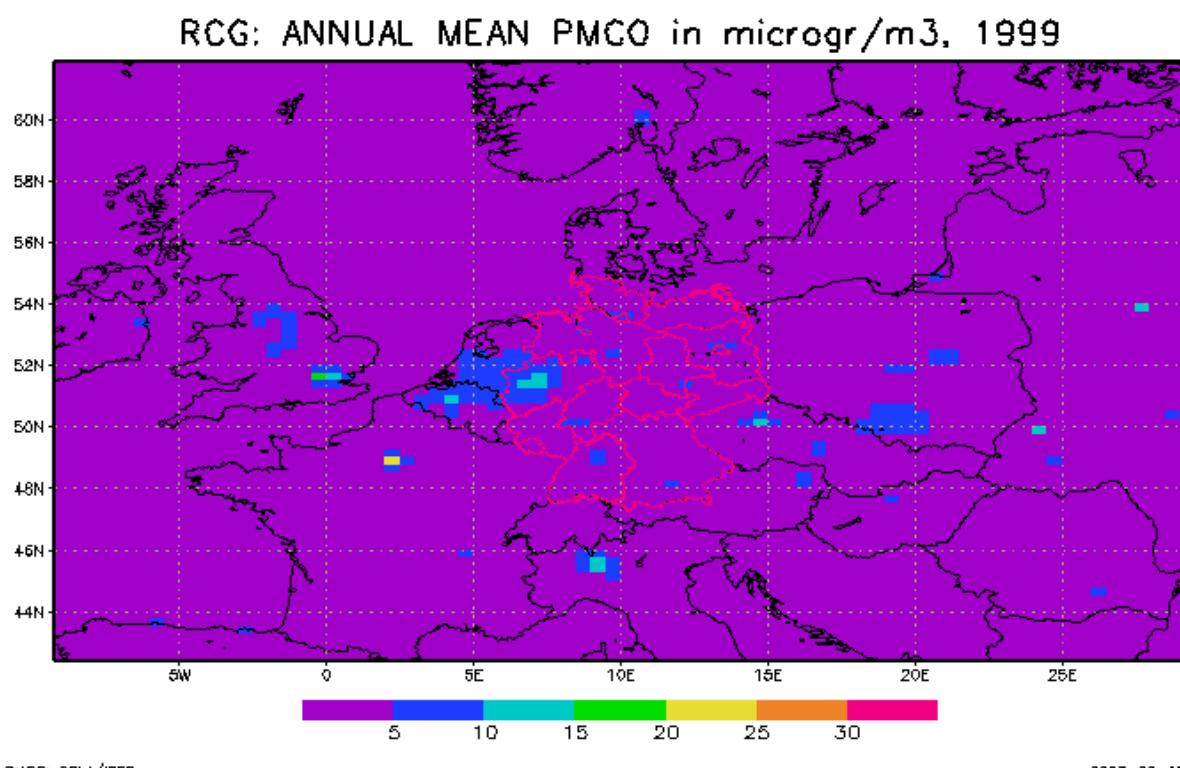


Abbildung 75: Berechnete primäre PMCO (PM10-PM2.5)-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

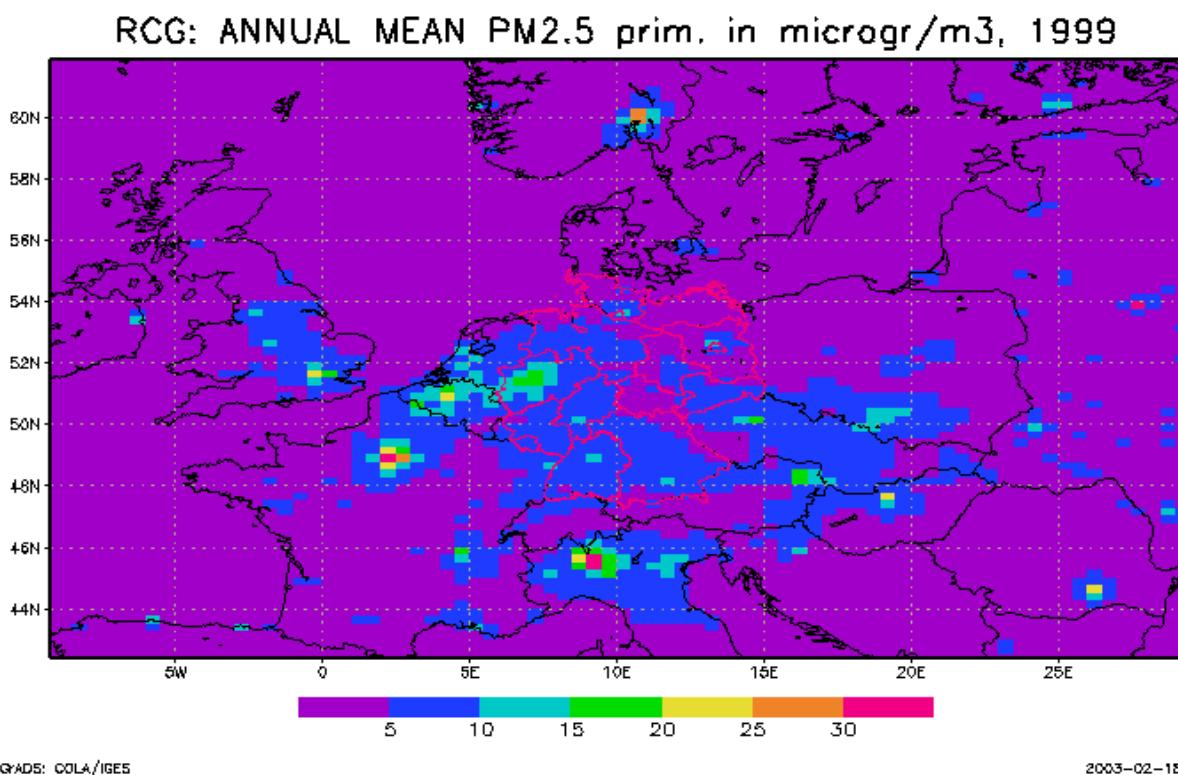


Abbildung 76: Berechnete primäre PM2.5-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

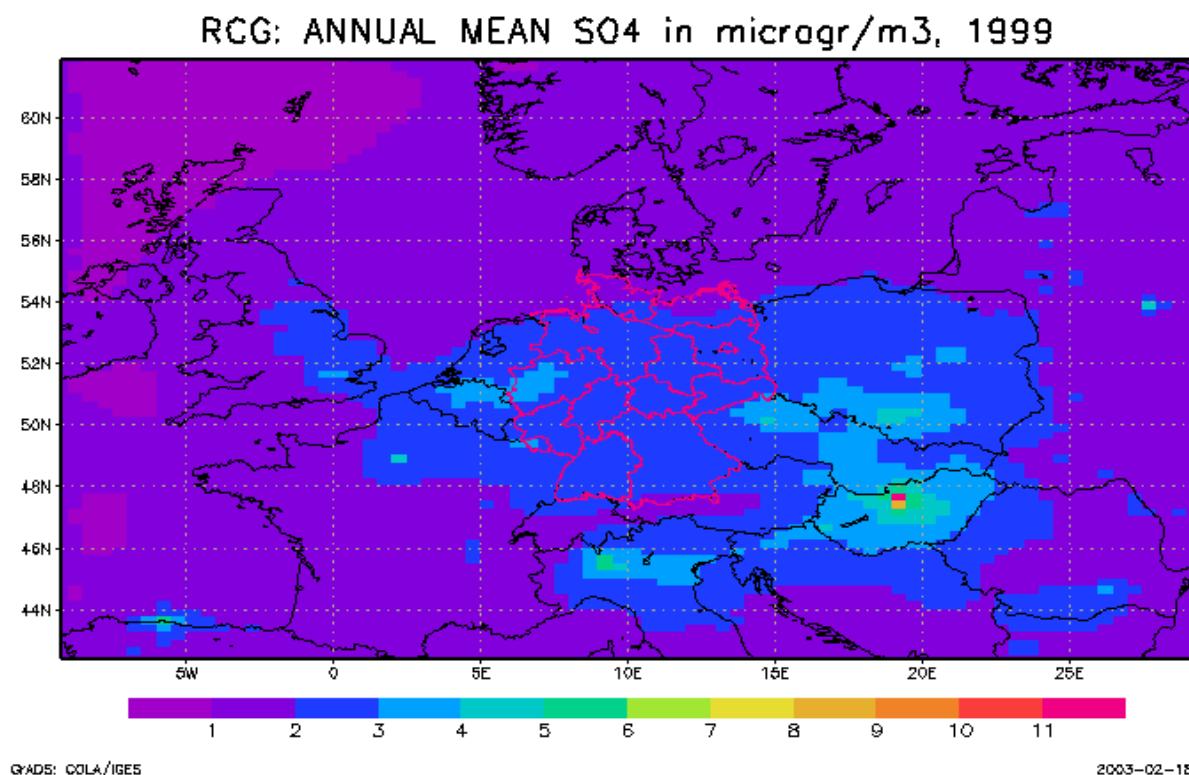


Abbildung 77: Berechnete SO₄-Aerosol-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

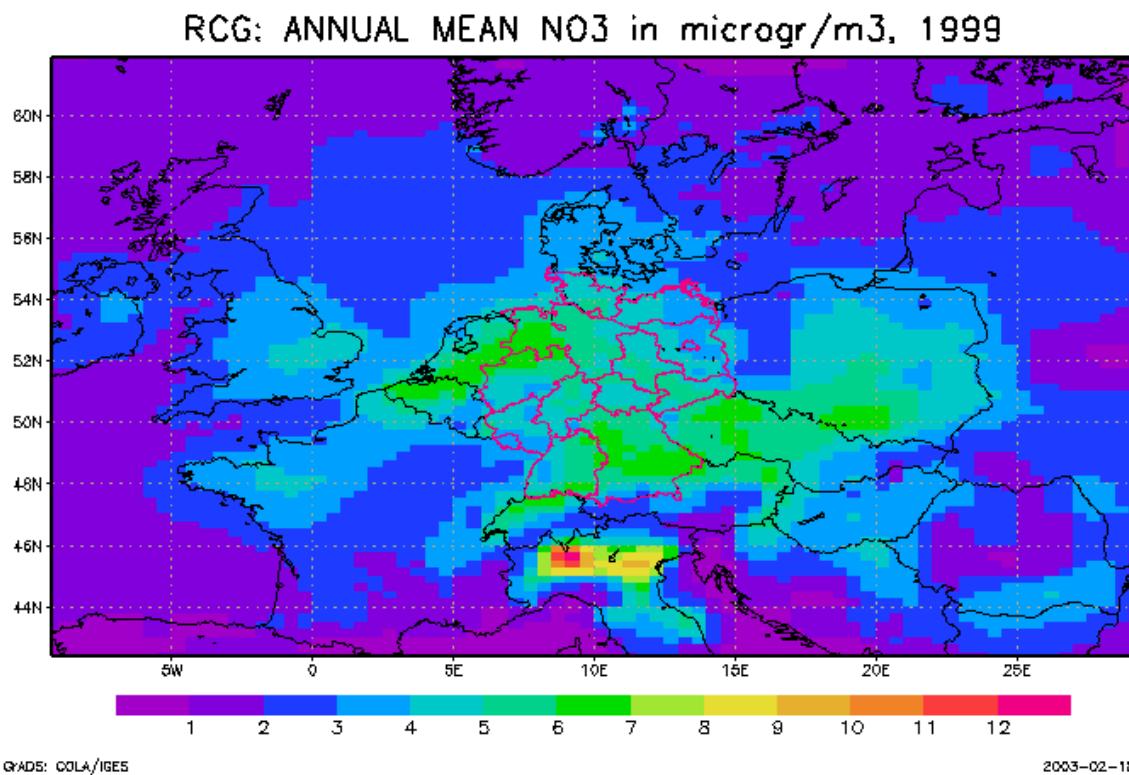


Abbildung 78: Berechnete NO₃-Aerosol-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

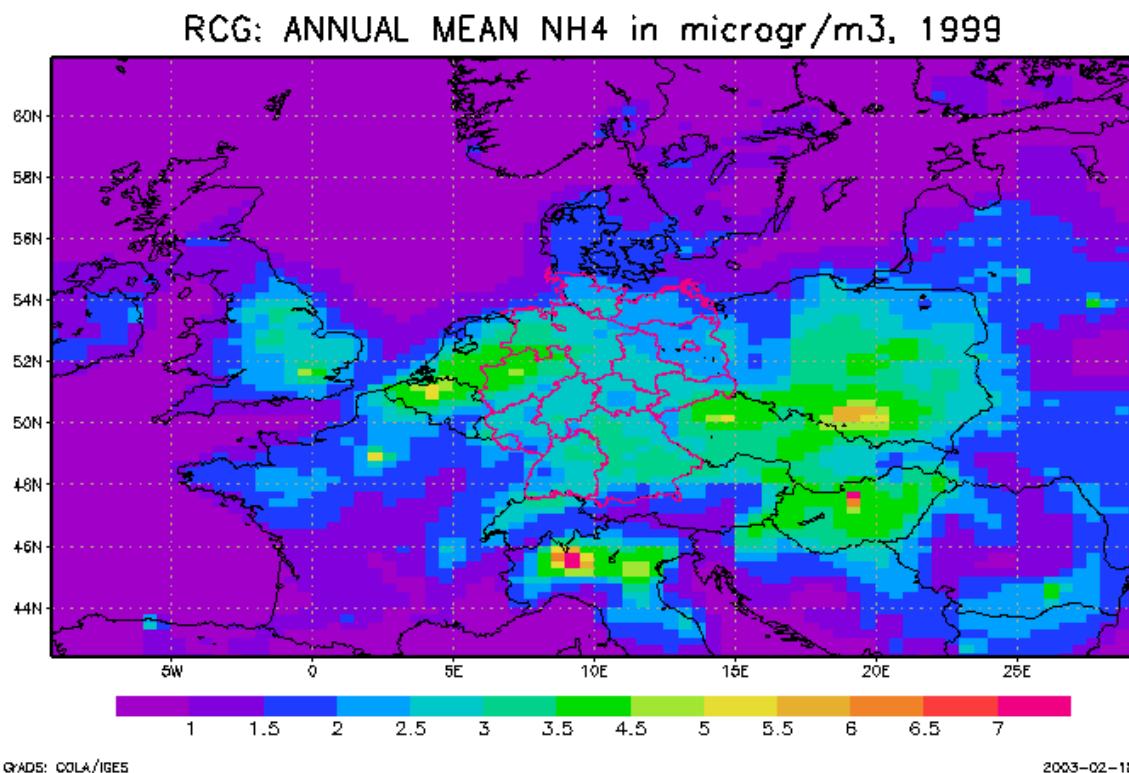


Abbildung 79: Berechnete NH₄-Aerosol-Jahresmittelwerte 1999 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$

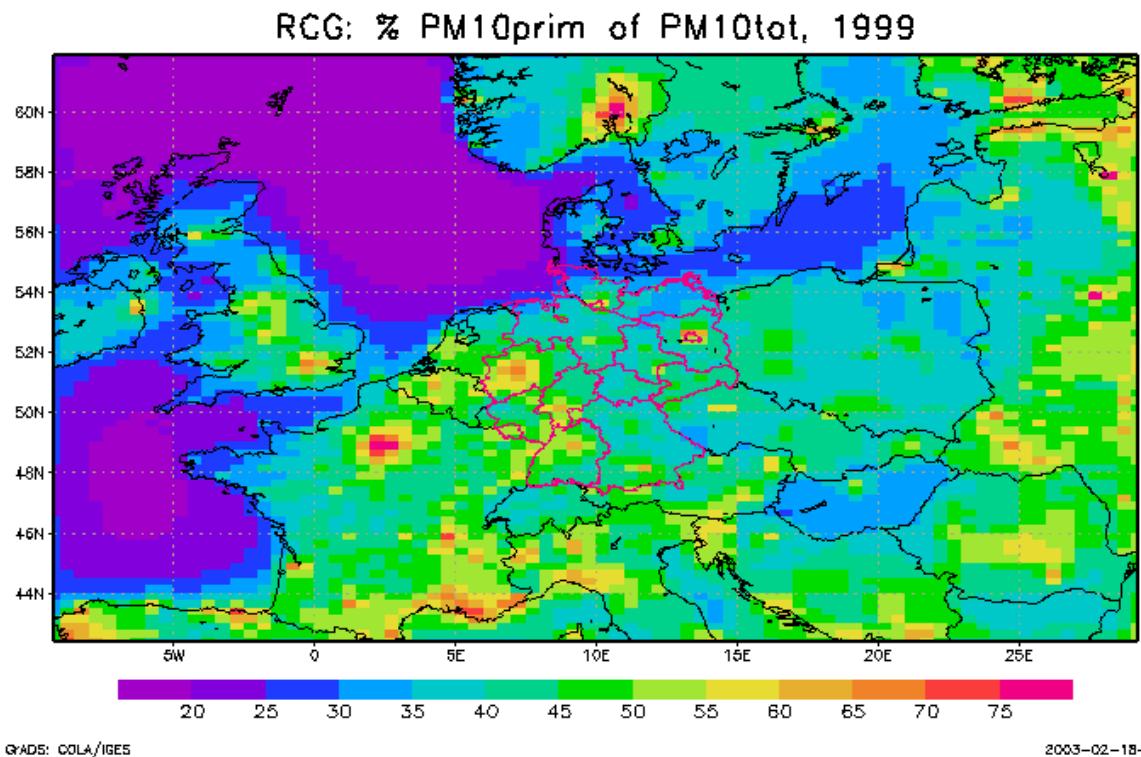


Abbildung 80: Berechneter Anteil (%) der Primärkomponenten PM2.5 und (PM10-PM2.5) an den gesamten PM10-Konzentrationen (Jahresmittelwert 1999).

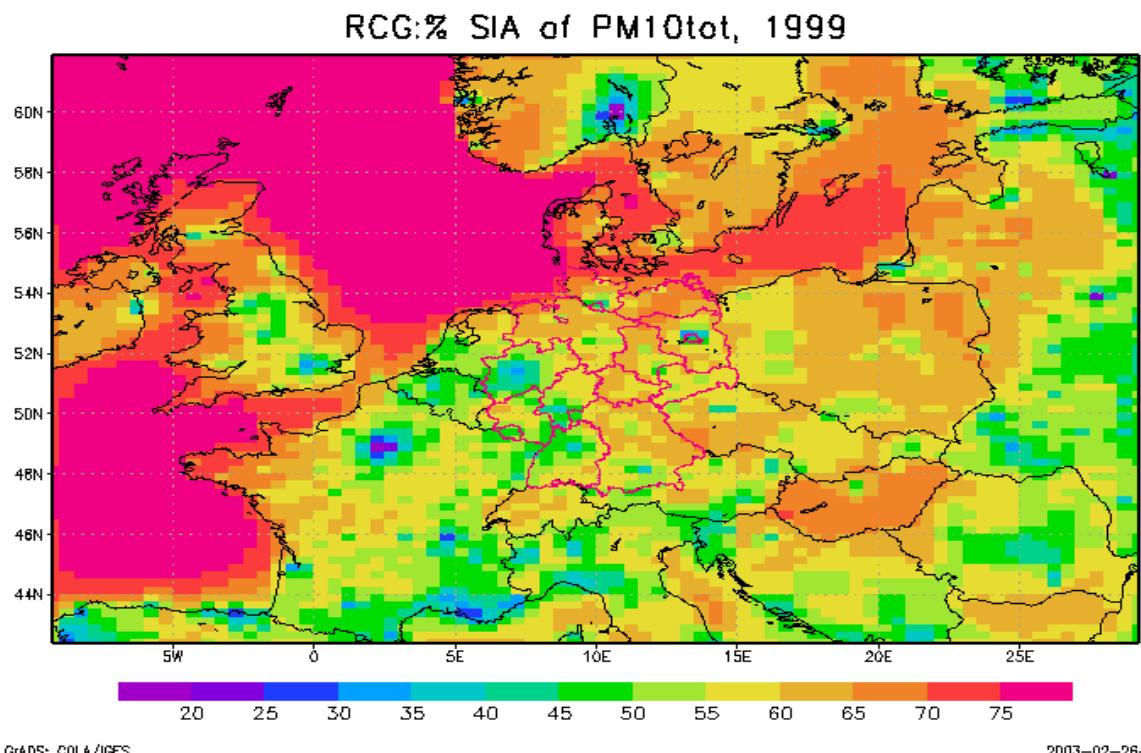


Abbildung 81: Berechneter Anteil (%) der Sekundärkomponenten SO₄, NO₃, NH₄ an den gesamten PM10-Konzentrationen (Jahresmittelwert 1999).

5. Emissionszenarien

5.1. Überblick

Wie schon in Kap. 3.2.3 ausgeführt, wurden im Rahmen dieses Vorhabens zwei Emissionsszenarien berechnet:

- Emissionen 2005
- Emissionen 2010, CLE-Szenario von IIASA

Das CLE-Szenario basiert auf der sog. „Current Legislation“ und den NEC-Werten („National Emission Ceilings“) der EU. Für das Jahr 2005 liegen keine konkreten Emissionsabschätzungen von IIASA vor. Nach Aussage von IIASA kann aber zwischen 1995 und 2010 von einer an-nähernd linearen Emissionsentwicklung ausgegangen werden.

Für Deutschland wurden basierend auf der IIASA-Information die in der Tabelle 8 zusam-mengestellten Emissionsverminderungen berechnet. Die Änderungen pro Verursachergruppe und Land sind in Stern (2003) zu finden.

Als Basisjahr wurde das Jahr 1999 gewählt, da dieses Jahr auch das Ausgangsjahr für alle Mo-dellrechnungen im Rahmen des City-Delta-Projekts ist⁵. Die Konzentrationsprognosen für 2005 und 2010 werden in den folgenden Kapiteln schadstoffweise diskutiert. Die Auswertung der Szenarioläufe orientiert sich an den in den EU-Tochterrichtlinien definierten Zielgrößen.

5.2. Szenario 2005 und 2010: Ozon

Für Ozon sind in der Tochterrichtlinie Ozon (EU, 2002) folgende Zielwerte und Langfristziele definiert:

Zielwerte

Schutz	Parameter	Zielwert	Jahr, in dem der Zielwert einzuhalten ist
Menschliche Gesundheit	Höchster 8-Stundenmittelwert eines Tages	120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; zulässige Zahl der Überschreitungen im Kalenderjahr: 25	2010
Schutz der Pflanzen	AOT40, berechnet aus den 1-Stundenwerten von Mai bis Juli, 8-20 Uhr	18000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$	2010

Langfristziele

Schutz	Parameter	Langfristziel
Menschliche Gesundheit	Höchster 8-Stundenmittelwert während eines Kalenderjahres berechnet aus den stündlich gleitenden 8-Std.-Mittelwerten	120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Schutz der Pflanzen	AOT40, berechnet aus den 1-Stundenwerten von Mai bis Juli, 8-20 Uhr	6000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$

Als Informationswerte sind unter anderem noch definiert:

- Ozonjahresmittelwert, der zum Schutz von Werkstoffen 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht überschreiten sollte.

5 siehe <http://rea.ei.jrc.it/netshare/thunis/citydelta/>

- AOT40-Wert zum Schutz von Wäldern, akkumuliert über den Zeitraum von April bis September, der den Wert von 20000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht überschreiten sollte.

Die Auswertung erfolgt für diese Größen.

Die Szenariorechnungen beruhen auf den in Stern (2003) zusammengestellten europaweiten Emissionsänderungen. Die Emissionsminderungen in Deutschland sind für die die Ozonbildung bestimmenden Stickoxide und die Kohlenwasserstoffe hier noch einmal angeführt:

Deutschland Änderung bezogen auf 1995	2005	2010, CLE
Stickoxide	-23%	-45%
Kohlenwasserstoffe	-27%	-59%

Die Abbildung 82 zeigt die berechneten Ozonmaxima an der Station Waldhof für die Jahre 1999, 2005 und 2010. Es kommt vor allen in den hohen Ozonbereichen zu einer Abnahme der Ozonmaxima, in den niedrigen Bereichen werden aber auch Zunahmen berechnet. Der Summenhäufigkeit kann man entnehmen, dass Ozonabnahmen oberhalb des Medians berechnet werden. Die Abnahmen nehmen mit zunehmender Summenhäufigkeit zu, d.h. die größten Abnahmen werden für die höchsten Konzentrationen des Basislaufs berechnet. Das untere Bild der Abbildung 82 zeigt die absoluten Ozonabnahmen für die der Größe nach geordneten Ozonmaxima des Basislaufs. Das höchste berechnete Ozonmaxima an der Station Waldhof für 1999 ist circa 193 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Jahre 2005 würde dieses Maximum nach den Berechnungen auf 180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ absinken, was einer Abnahme von 7% entspricht. Für das Jahr 2010 werden nur noch 163 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet, was einer Abnahme von 15% entspricht. Die Abnahmen für das 95-Perzentil liegen im Bereich von 6% für das Jahr 2005 und von 13% für das Jahr 2010. Zunahmen werden überwiegend nur in dem Konzentrationsbereich unter 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet.

Die Abbildung 83 zeigt dieselbe Auswertung für die täglichen Ozonmittelwerte der Station Waldhof. Die Abnahmen der Mittelwerte sind deutlich geringer als die der Maxima, die Zunahmen im unteren Bereich der Konzentrationsverteilung sind in derselben Größenordnung wie bei den Maxima. Abnahmen der Tagesmittelwerte werden nur im Bereich der Summenhäufigkeit größer 70% berechnet. Wie schon bei den Maxima treten die Zunahmen hauptsächlich bei den niedrigen Winterwerten auf. Der höchste berechnete Ozonmittelwert an der Station Waldhof für 1999 ist circa 122 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Jahre 2005 würde dieser höchste Mittelwert nur noch 115 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen, was einer Abnahme von knapp 6% entspricht. Für das Jahr 2010 werden nur noch 107 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet, was einer Abnahme von 12% entspricht. Die Abnahmen für das 95-Perzentil der Tagesmittelwerte liegen im Bereich von 4% für das Jahr 2005 und von 10% für das Jahr 2010. Insgesamt nehmen die Tagesmittelwerte in Waldhof in den oberen 5% der Summenhäufigkeit nach den Berechnungen bis 2005 im Mittel um circa 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-5%), bis 2010 um 9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-6%) ab. Die entsprechenden Zahlen für die Tagesmaxima sind 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-11%), bis 2005 und 21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (13%) bis 2010.

Die für die ländliche Station Deuselbach berechneten Ozonminderungen (Abbildung 84 und Abbildung 85) sind ähnlich denjenigen für Waldhof. Der im Jahre 1999 höchste berechnete tägliche Ozonmaximalwert von 181 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ würde in der Emissionssituation des Jahres 2005 nur noch 166 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen. Dies entspricht einer Abnahme um 8%. Im Jahre 2010 hätte man eine Abnahme um 31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ auf 149 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-18%). Auch in Deuselbach kommt es unterhalb von circa 90 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu Zunahmen der Maximalwerte. Im Bereich des 95-Perzentils wird für 2005 eine mittlere Abnahme der Maximalwerte um knapp 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-6%) berechnet, für 2010 um 21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ oder 14%. Die Tagesmittelwerte nehmen wieder etwas geringer ab als die Maximalwerte (Abbildung 85). Hier ist im 95-Perzentil- bis zum 100-Perzentilbereich bis 2005 mit Abnahmen von circa 5 bis 6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-5% bis -6%) zu rechnen, bis 2010 werden Abnahmen von circa 12 bis

15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-12% bis -15 %) erreicht. Auch in Deuselbach erfolgt der Übergang von Ozonabnahmen zu Ozonzunahmen bei den Tagesmittelwerten in höheren Perzentilbereichen als bei den Tagesmaxima.

An der städtischen Hintergrundstation Berlin-Nansenstraße (Abbildung 86 und Abbildung 87) verschiebt sich der Übergang von Ozonzunahmen zu Ozonabnahmen bei den Tagesmaxima in das obere Drittel, bei den Tagesmittelwerten sogar in das obere Viertel der Summenhäufigkeitsverteilung. Ozonabnahmen werden damit nur für den höheren Bereich der Basiskonzentrationen berechnet. Die erreichbaren Abnahmen sind geringer als an den ländlichen Stationen. Der maximale Tagesmittelwert nimmt bis 2005 um 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-3%), bis 2010 um 8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-7%) ab. Die entsprechenden Zahlen für den höchsten Tageswert des Ozonmaximums sind -8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-5%) bis 2005, bzw. -17 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-11%) bis 2010. In Stadtgebieten können NO_x-Minderungen zu Ozonzunahmen führen, da eine Verminderung der Stickoxidemissionen, die im Wesentlichen aus NO bestehen, das photochemische Gleichgewicht in Richtung höhere Ozonkonzentrationen drücken. Dies ist ein Hinweis darauf, dass Gebiete mit hohen Stickoxidemissionen Kohlenwasserstoff kontrolliert sind, d. h. eine Minderung der Stickoxidemissionen führt nicht notwendigerweise zu einer Abnahme der Ozonkonzentrationen (Titrationseffekt). Die geringere Abnahme der Ozonkonzentrationen an der städtischen Hintergrundstation Nansenstraße zeigt sich auch deutlich in den in der Tabelle 22 zusammengestellten mittleren Ozonabnahmen im oberen 5%-Bereich der Summenhäufigkeitsverteilung.

95-100% der Summenhäufigkeit	Tagesmittelwert	Tagesmaximum
Waldhof 2005	-5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-5%)	-9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-6%)
Waldhof 2010	-10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-11%)	-21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-13%)
Deuselbach 2005	-5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-5%)	-10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-6%)
Deuselbach 2010	-11 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-12%)	-22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-13%)
Nansenstr. 2005	-2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-2%)	-8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-5%)
Nansenstr. 2010	-5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-6%)	-17 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (-11%)

Tabelle 22: Mittlere Ozonabnahmen in den oberen 5% der Summenhäufigkeitsverteilung als Folge der europaweiten Emissionsveränderungen bis 2005, bzw. 2010 an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstraße.

Die Abbildung 88 und Abbildung 89 zeigen die berechnete Änderung der Ozon-Jahresmittelwerte des Basislaufs (Abbildung 62) als Folge der europaweiten Emissionsveränderungen bis 2005, bzw. 2010. Nach den Berechnungen nehmen die Mittelwerte vor allem im westlichen Europa um einige $\mu\text{g}/\text{m}^3$ zu. In Deutschland werden bis 2005 Zunahmen bis zu 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, bis 2010 Zunahmen bis zu 7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet. Die größten Zunahmen ergeben sich für die Ballungsgebiete mit hohen Stickoxidemissionen. Die Gründe für die Ozonzunahmen wurden schon bei der Diskussion der Änderungen an der Station Berlin-Nansenstraße dargelegt. Der Vergleich der berechneten Abnahmen für die Winter- bzw. Sommermittelwerte (Abbildung 90 und Abbildung 91 bzw. Abbildung 92 und Abbildung 93) zeigt, dass die Ozonmittelwerte vor allem im Winter zunehmen. Es wurde bereits mehrfach ausgeführt, dass die gegenwärtige meteorologische Datenbasis eine wahrscheinlich zu stabile winterliche Atmosphäre beschreibt. Dieser Umstand verstärkt die Auswirkungen des Titrationseffekts, so dass mit bei einer wenigen stabilen Atmo-

sphäre wahrscheinlich mit geringeren Ozonzunahmen der Mittelwerte als Folge einer NO_x-Minderung gerechnet werden kann.

Die zu erwartenden Änderungen der maximalen Ozonwerte zeigen die Abbildung 94 und die Abbildung 95. Die Ozonmaxima nehmen nahezu in ganz Europa infolge der zu prognostizierten Emissionsänderung ab. Lediglich in Osteuropa werden zum Teil Zunahmen berechnet, die mit den dort von IIASA prognostizierten Emissionszunahmen erklärt werden können (siehe Stern, 2003). In Deutschland werden für 2005 Abnahmen der Ozonmaxima von 5 bis circa 15 µg/m³ berechnet. Dies entspricht für das Basisjahr 1999 relativen Abnahmen bis zu circa 10%. Für das Jahr 2010 werden in großen Teilen Deutschlands Abnahmen zwischen 20 und 40 µg/m³ (-10 bis über -20%) berechnet. Vereinzelt ergeben sich in den Ballungsgebieten Europas oder in Gitterboxen mit großen Punktquellen, deren Emission bis 2010 stark reduziert werden wird, kaum Veränderungen oder sogar, wenn auch geringe, Zunahmen.

Die Anzahl der Tage mit Überschreitungen des Grenzwerts von 120 µg/m³ für den höchsten täglichen 8-Stunden-Ozonmittelwert nehmen im Szenario 2005 (Abbildung 96) im Vergleich zum Basisjahr 1999 (Abbildung 66) ab. Vor allem im süddeutschen Raum ist aber immer noch mit Überschreitungen des Grenzwerts an mehr als 25 Tagen im Jahr zu rechnen. Auch im Jahre 2010 kann nicht davon ausgegangen werden, dass es nirgendwo in Deutschland mehr zu Überschreitungen der 25-Tagemarke kommen wird (Abbildung 97), auch wenn diese Überschreitungen nach den Rechnungen nur noch vereinzelt auftreten werden.

Auch bei den AOT40-Werten für Pflanzen gehen die Überschreitungen des Grenzwerts bis 2005 zurück (Abbildung 98). Für die Emissionsbedingungen 2010 werden auf der Basis der meteorologischen Bedingungen des Jahres 1999 so gut wie keine Überschreitungen mehr berechnet (Abbildung 99). Es muss aber noch einmal betont werden, dass die flächenhaften AOT-Werte in den Bergregionen nicht repräsentativ sind, da zur Darstellung nur die Bodenwerte verwendet wurden. Eine Einbeziehung der Bergwerte in der flächenhaften Darstellung ist schwierig, da die eingeschränkte räumliche Repräsentativität hoher Erhebungen in der hier benutzten Auflösung nicht darstellbar ist. In solchen Regionen muss also mit höheren AOT40-Werten gerechnet werden. Der AOT40-Informationswert für Wälder wird auch im Jahre 2005 noch in großen Teilen Deutschlands überschritten sein (Abbildung 100). Erst für 2010 kann man von einer deutlichen Abnahme der Fläche mit Überschreitungen ausgehen, wobei aber vor allem in Süddeutschland weiterhin mit Überschreitungen des Werts von 20000 µg/m³ h zu rechnen ist (Abbildung 101).

Die Langfristzielwerte Ozon für den Schutz der menschlichen Gesundheit und den Schutz der Vegetation werden nach den Modellrechnungen bis zum Jahre 2010 auf keinen Fall erreicht werden (nicht abgebildet).

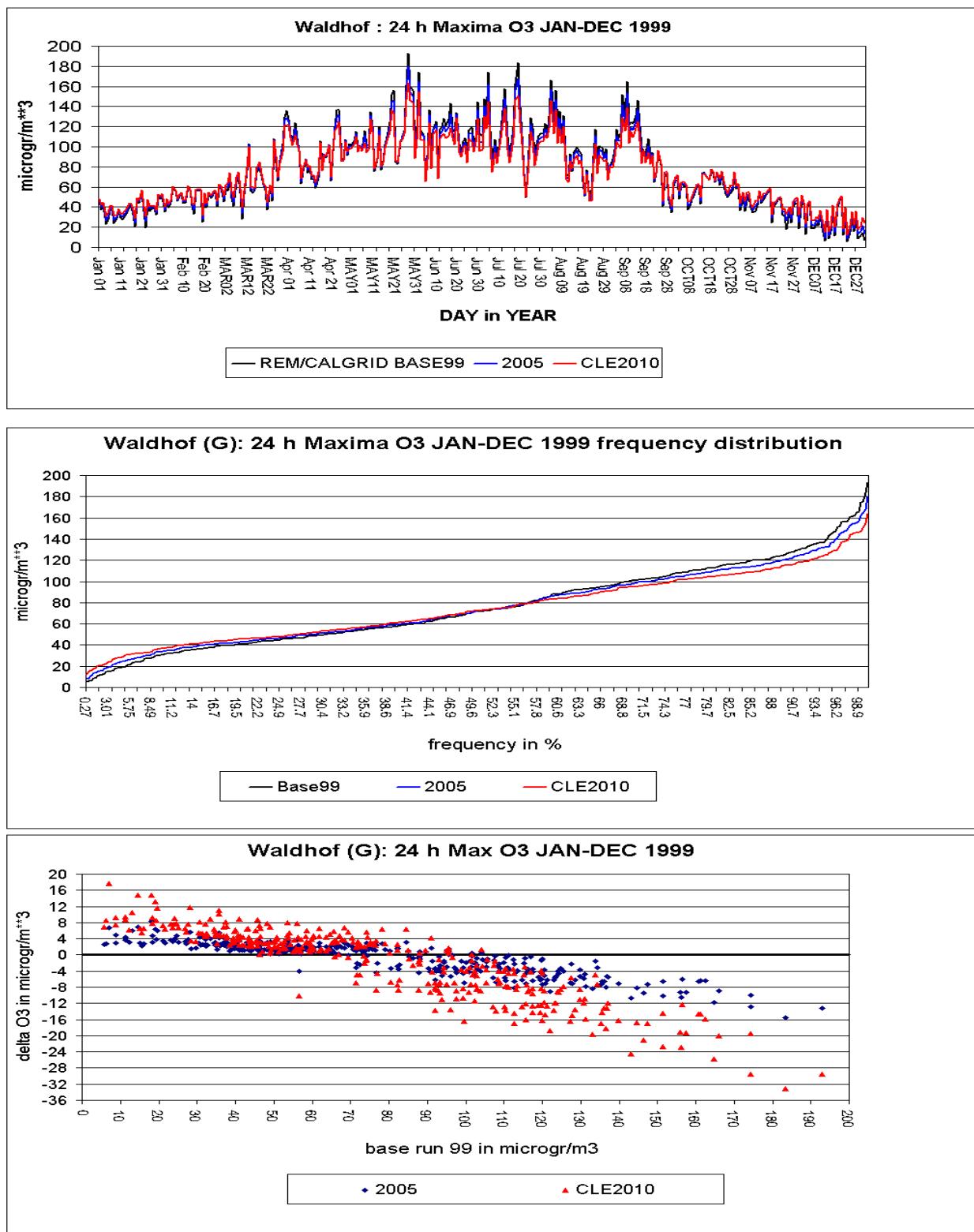


Abbildung 82: Berechnete tägliche Ozonmaxima an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmaxima (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmaxima 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

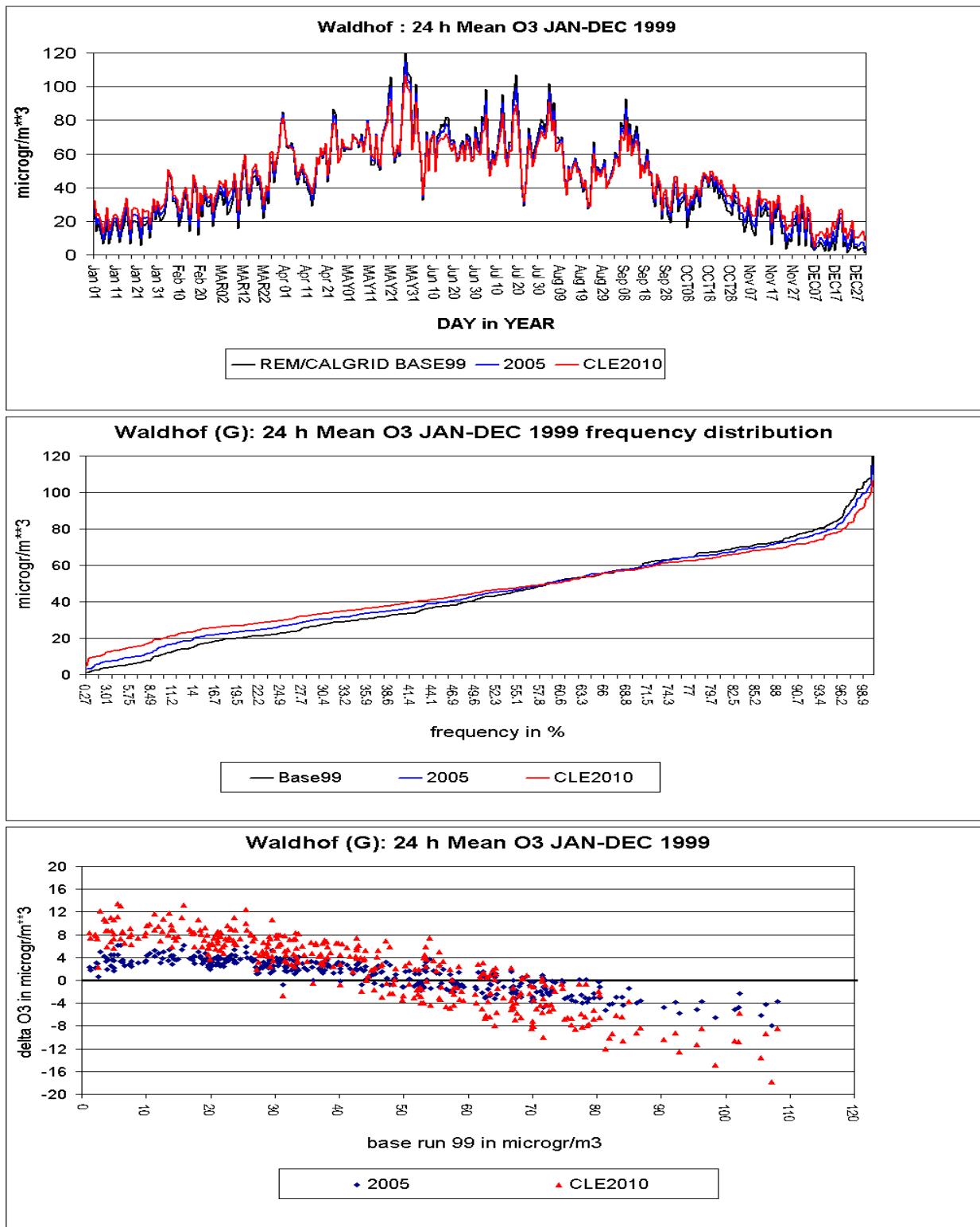


Abbildung 83: Berechnete tägliche Ozonmittelwerte an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

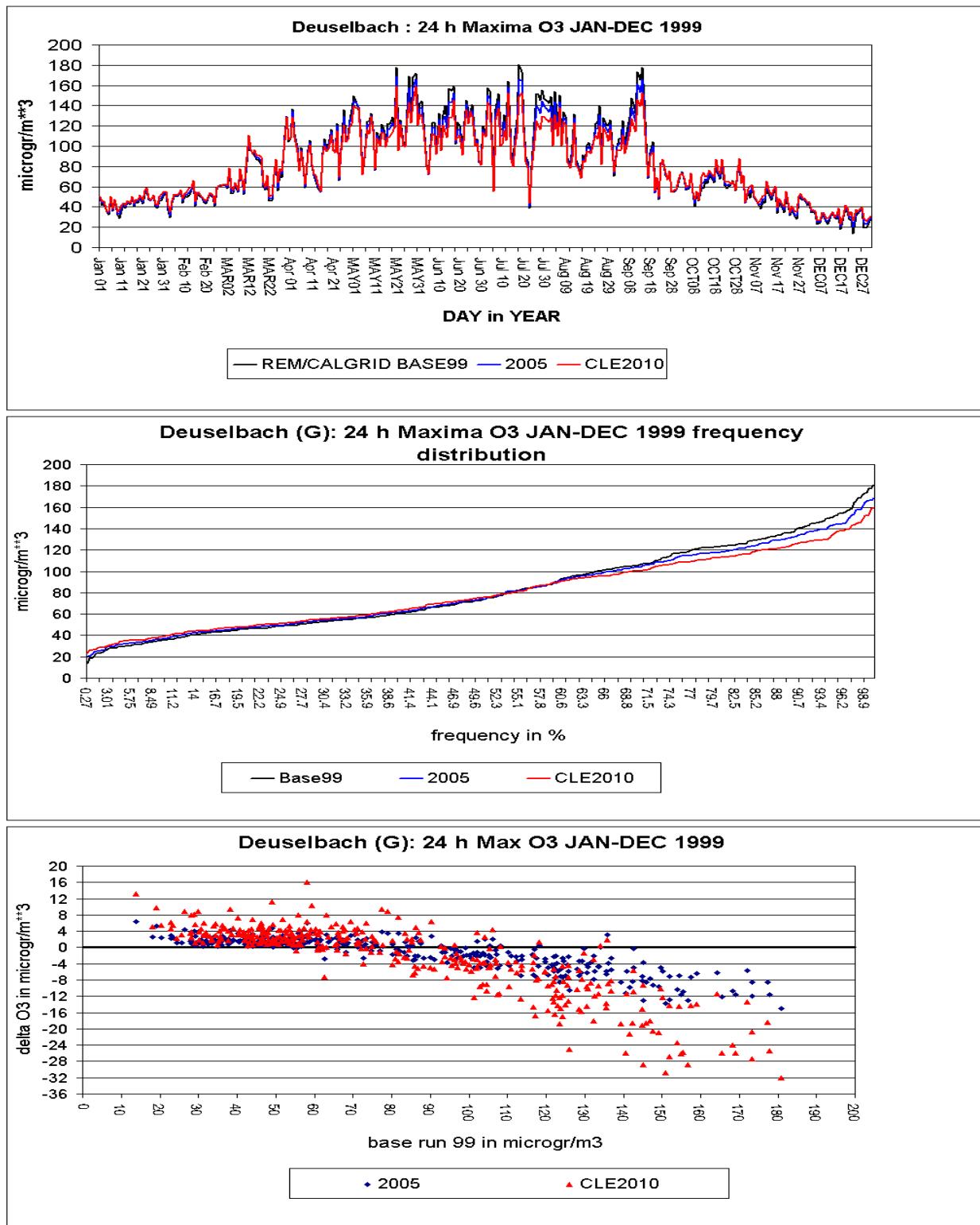


Abbildung 84: Berechnete tägliche Ozonmaxima an der Station Deuselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmaxima (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmaxima 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

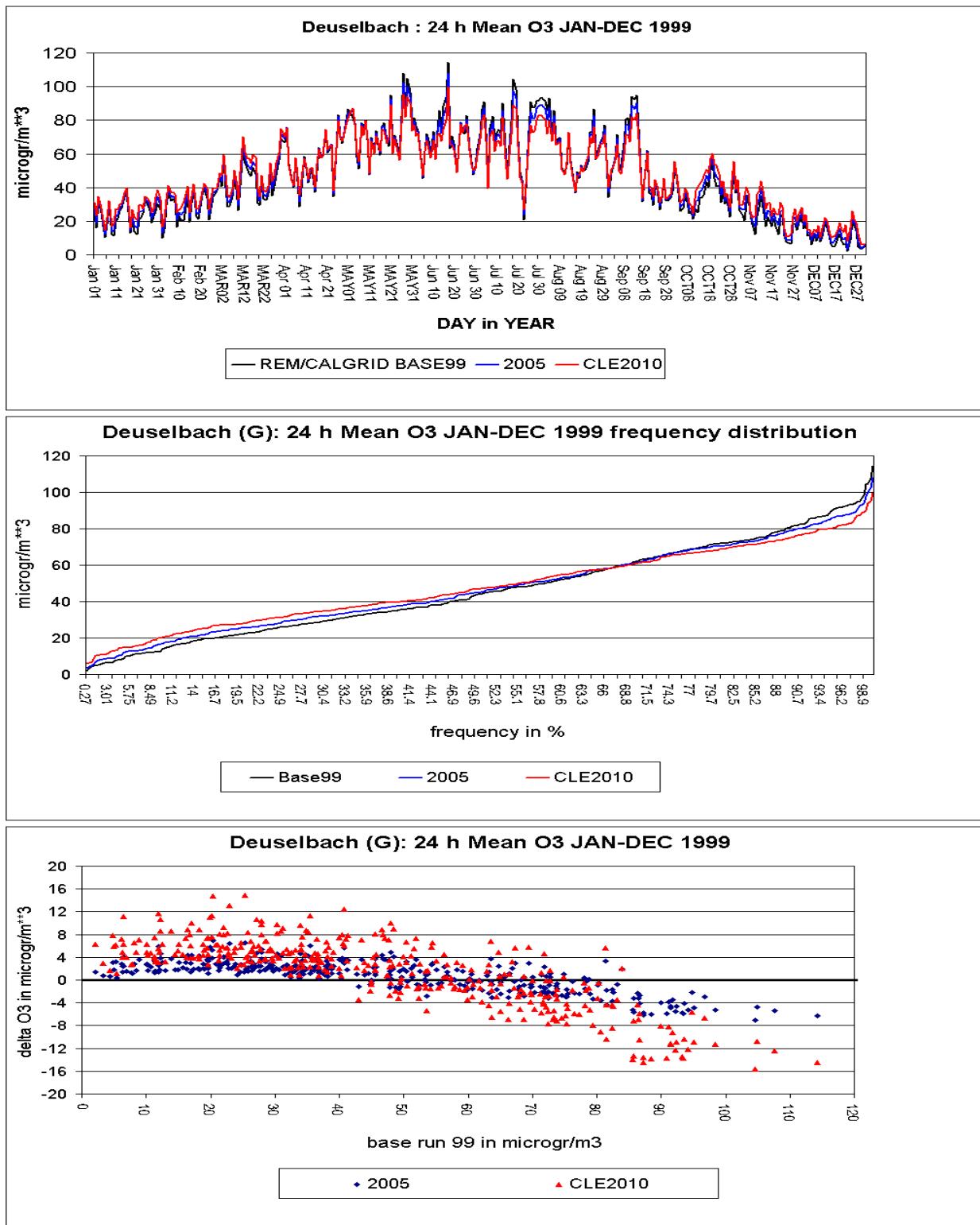


Abbildung 85: Berechnete tägliche Ozonmittelwerte an der Station Deieselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

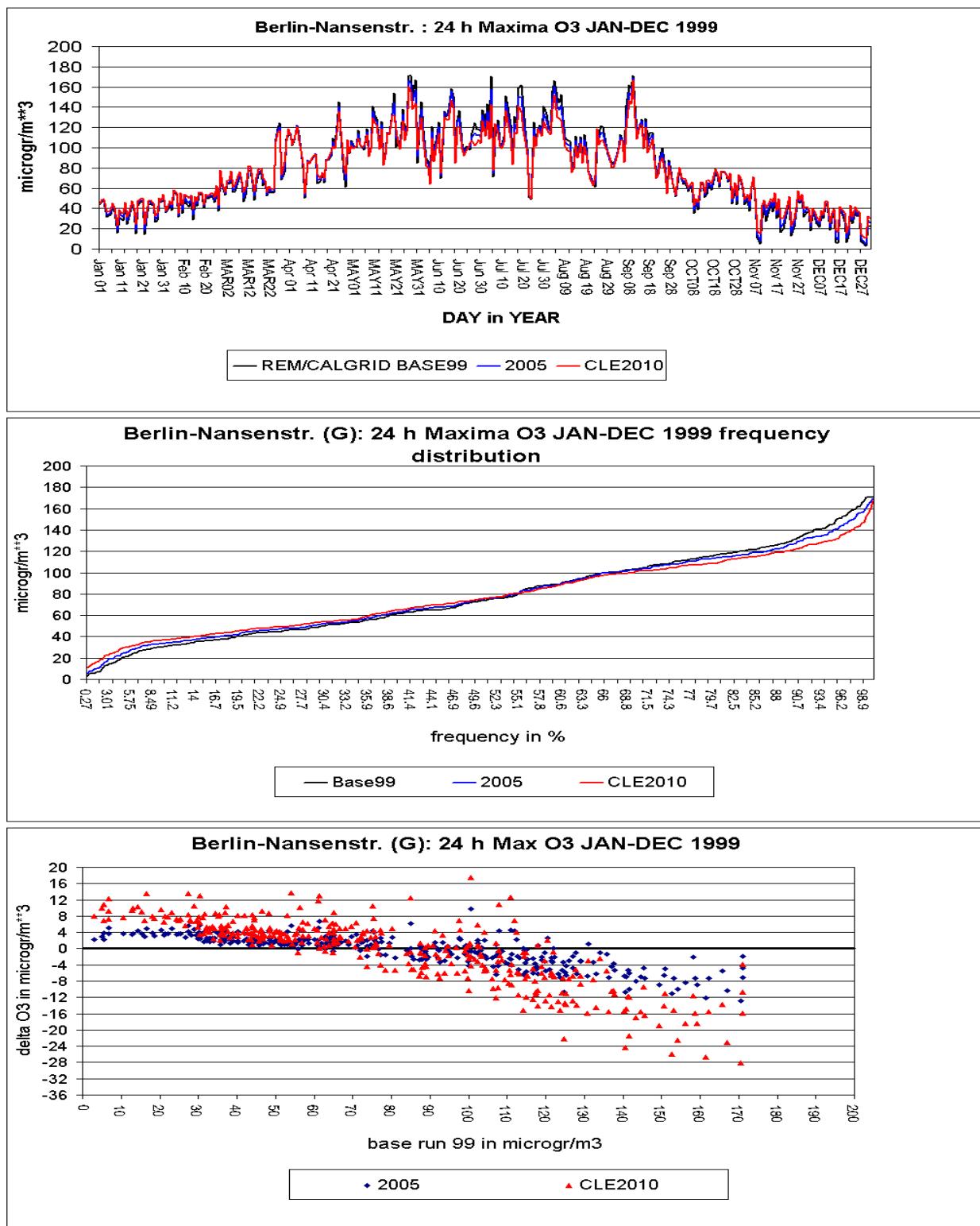


Abbildung 86: Berechnete tägliche Ozonmaxima an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmaxima (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmaxima 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

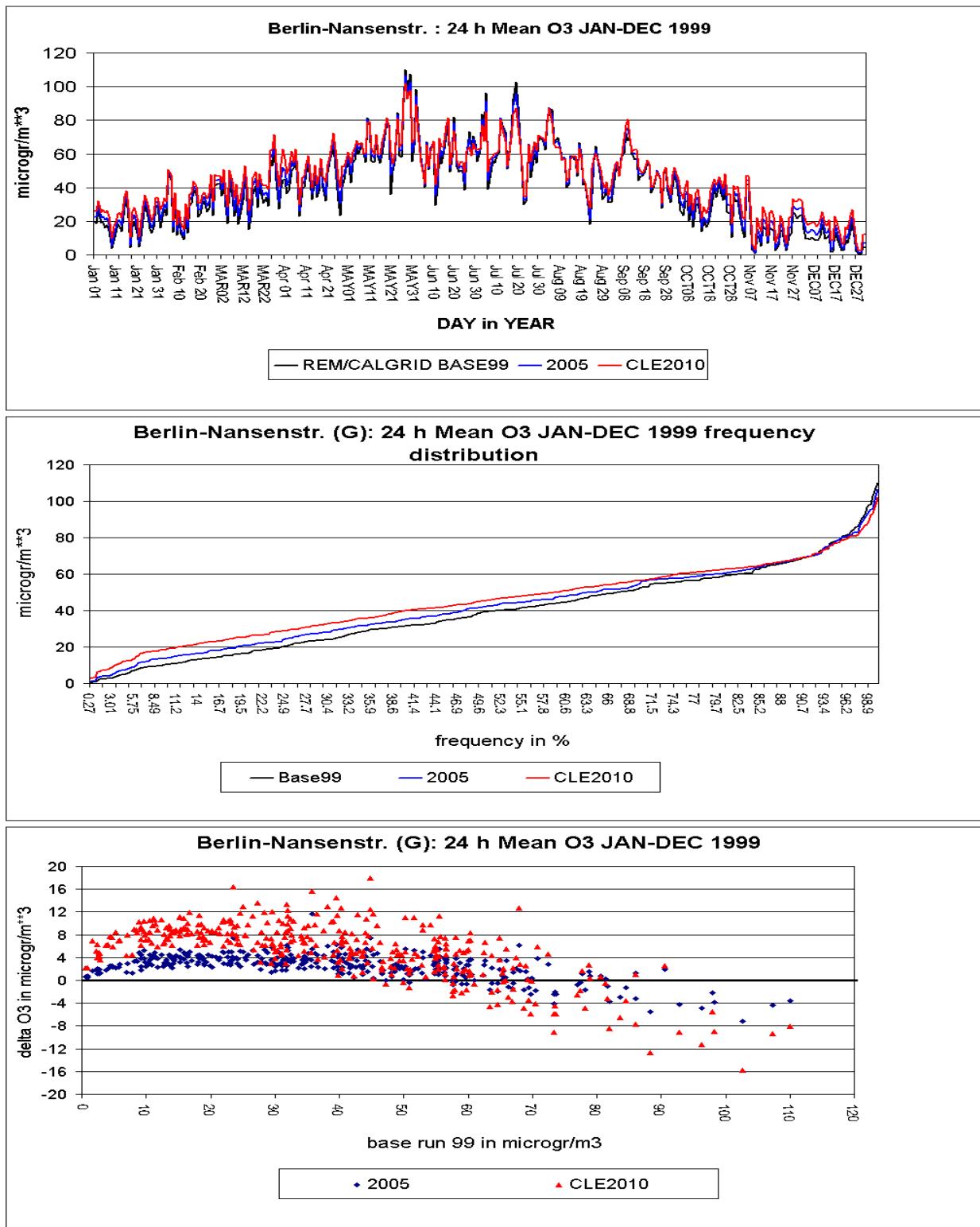


Abbildung 87: Berechnete tägliche Ozonmittelwerte an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der Ozonmittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen Ozonmittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

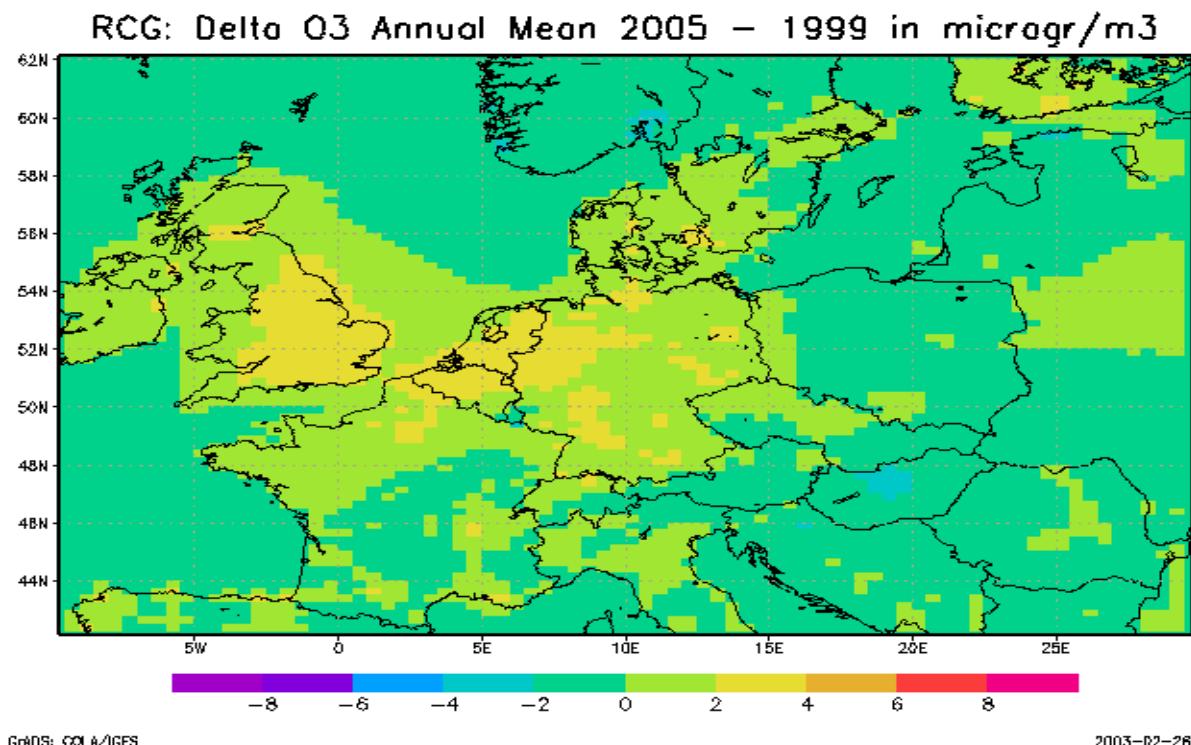


Abbildung 88: Berechnete Änderung der Ozon-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 62).

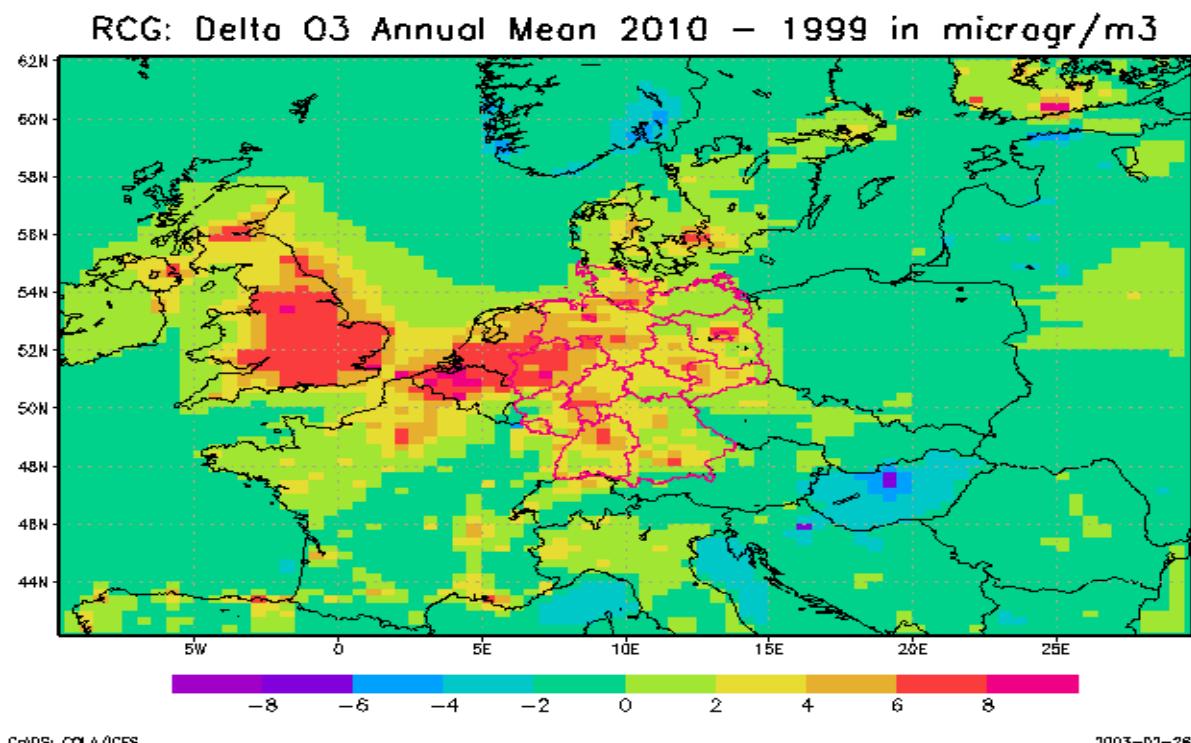


Abbildung 89: Berechnete Änderung der Ozon-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 62).

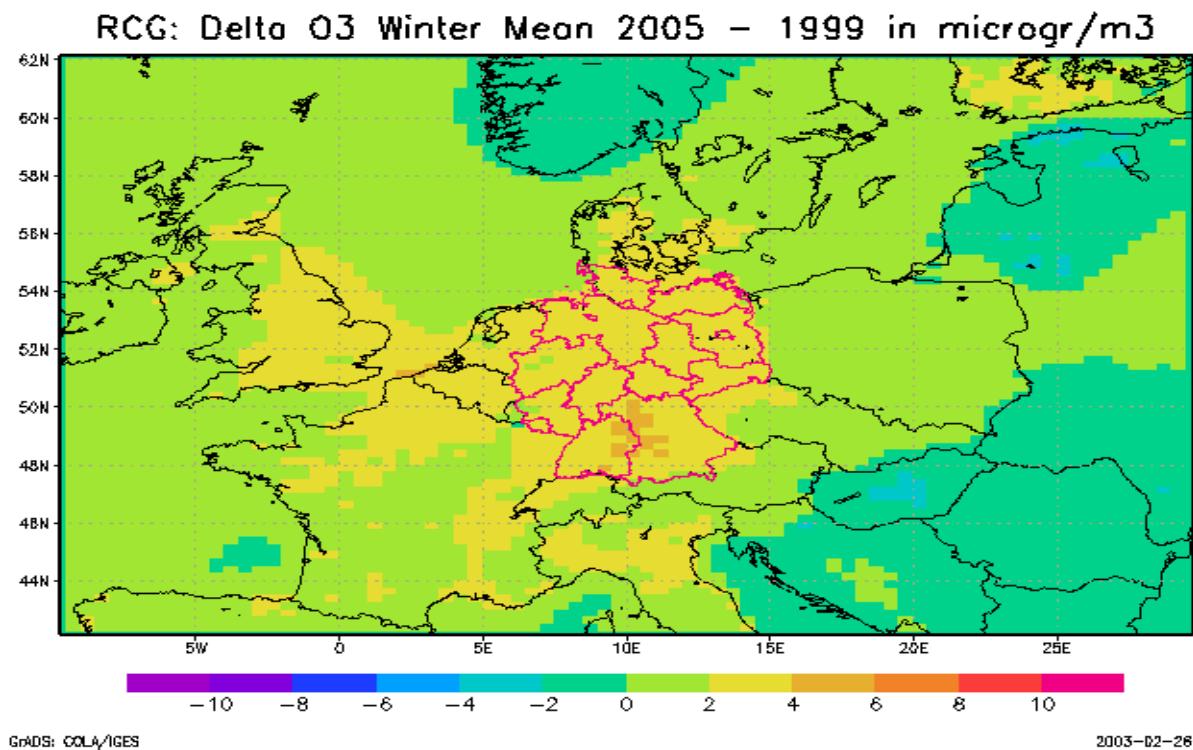


Abbildung 90: Berechnete Änderung der Ozon-Wintermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 64).

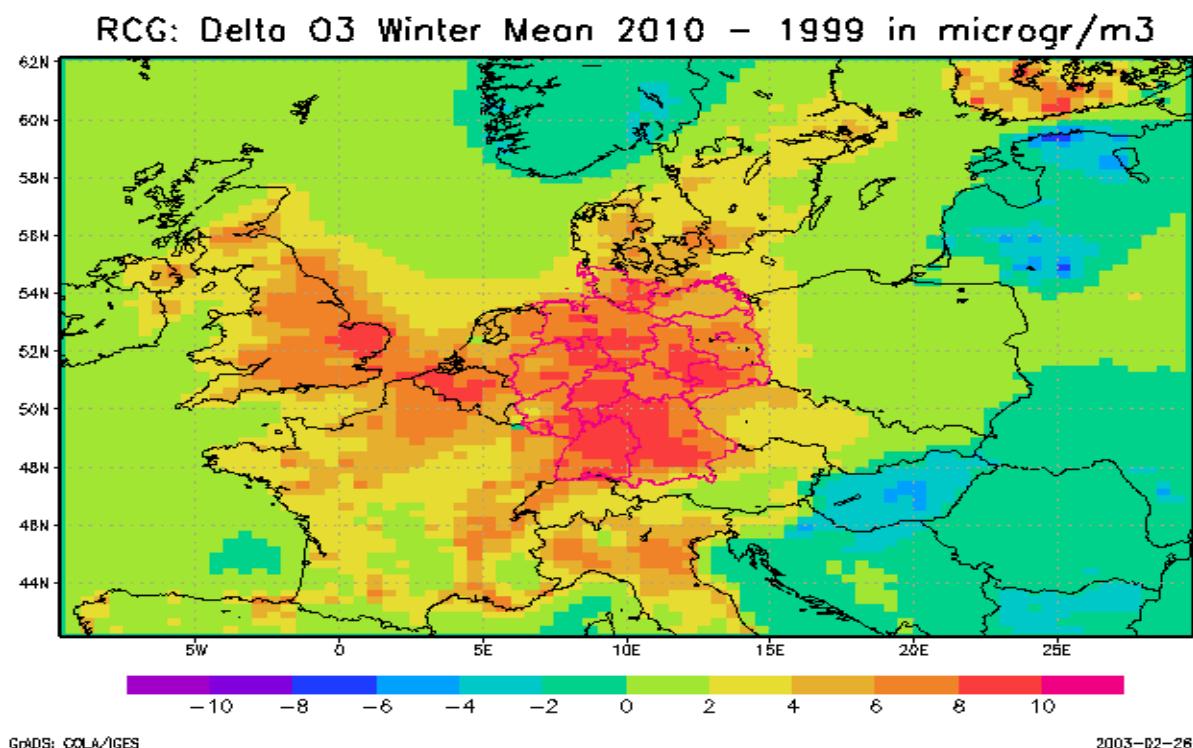


Abbildung 91: Berechnete Änderung der Ozon-Wintermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 64).

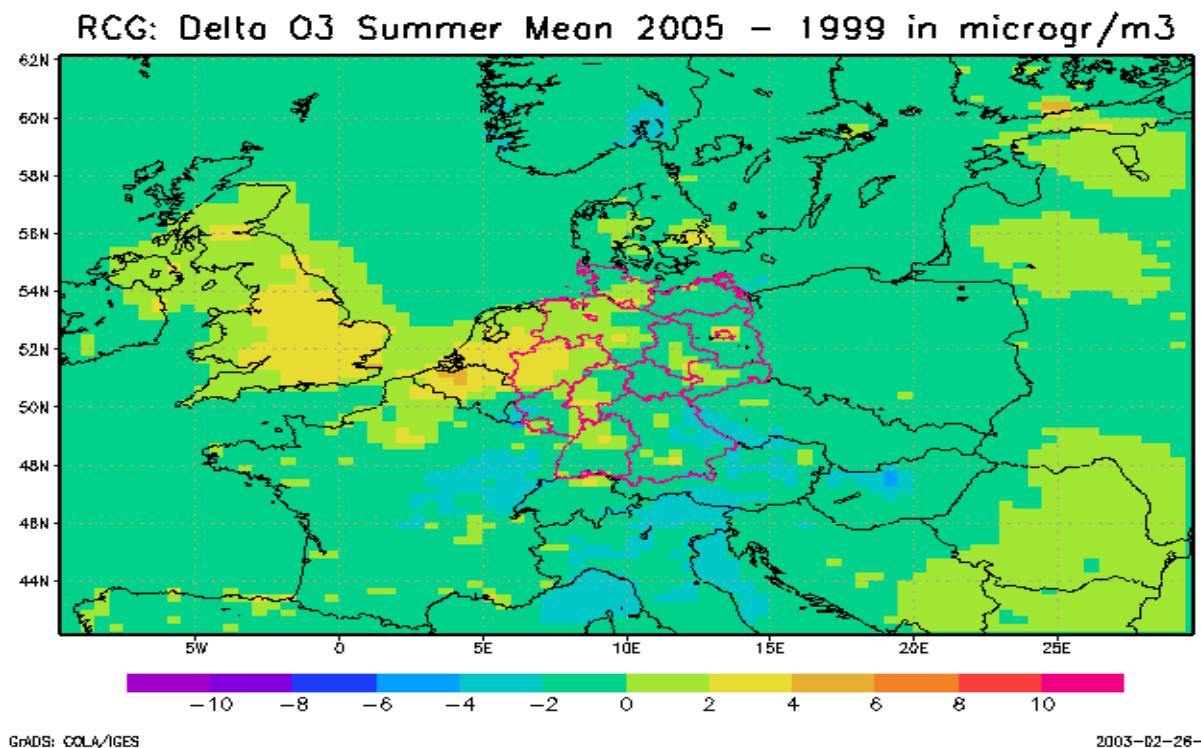


Abbildung 92: Berechnete Änderung der Ozon-Sommermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 63).

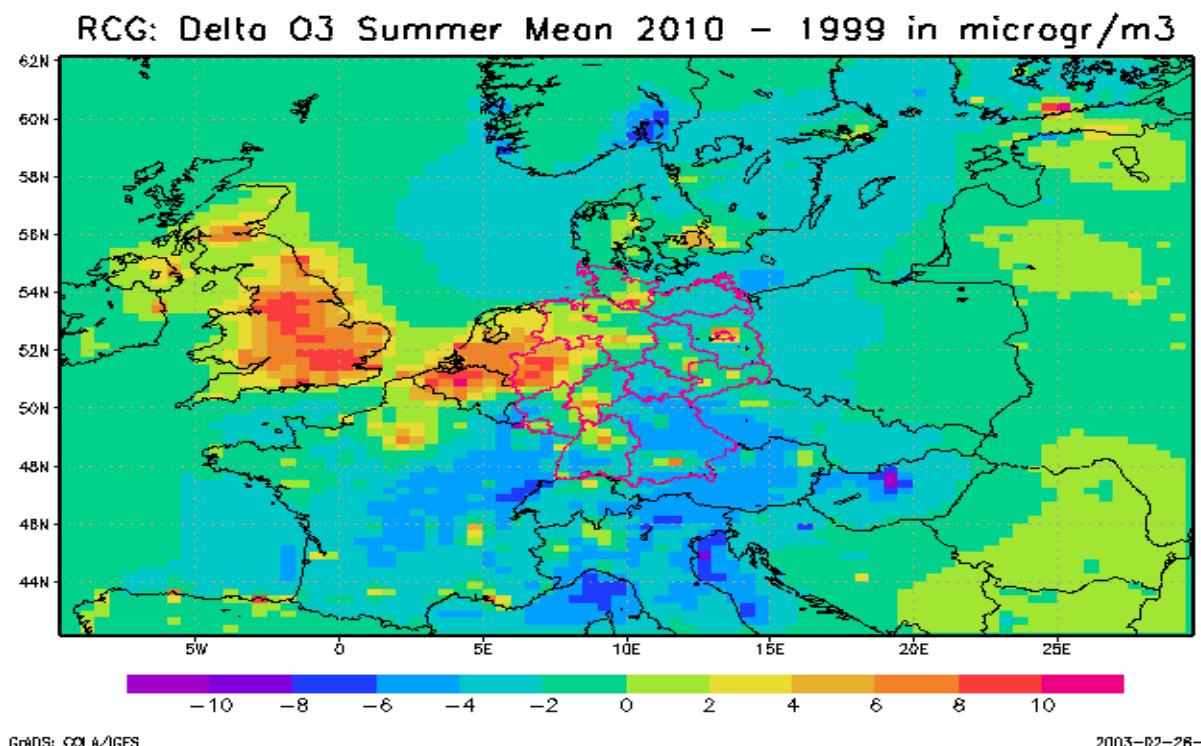


Abbildung 93: Berechnete Änderung der Ozon-Sommermittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 63).

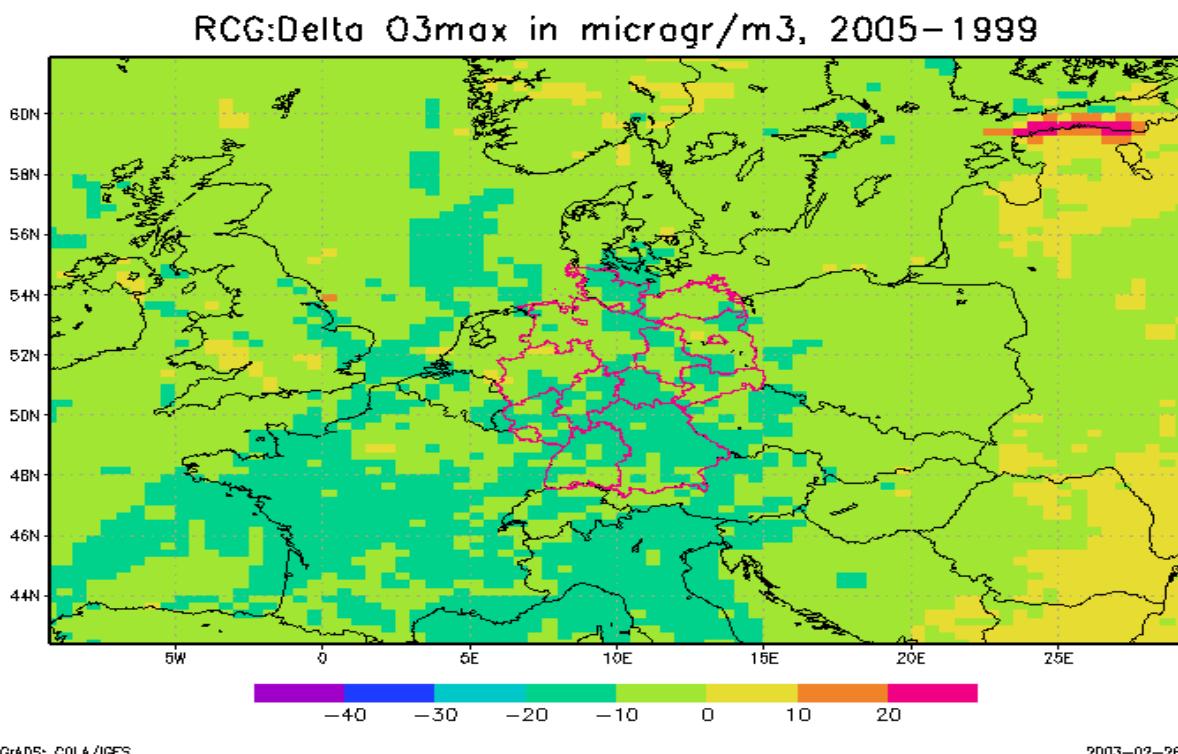


Abbildung 94: Änderung der höchsten berechneten Ozonkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 65).

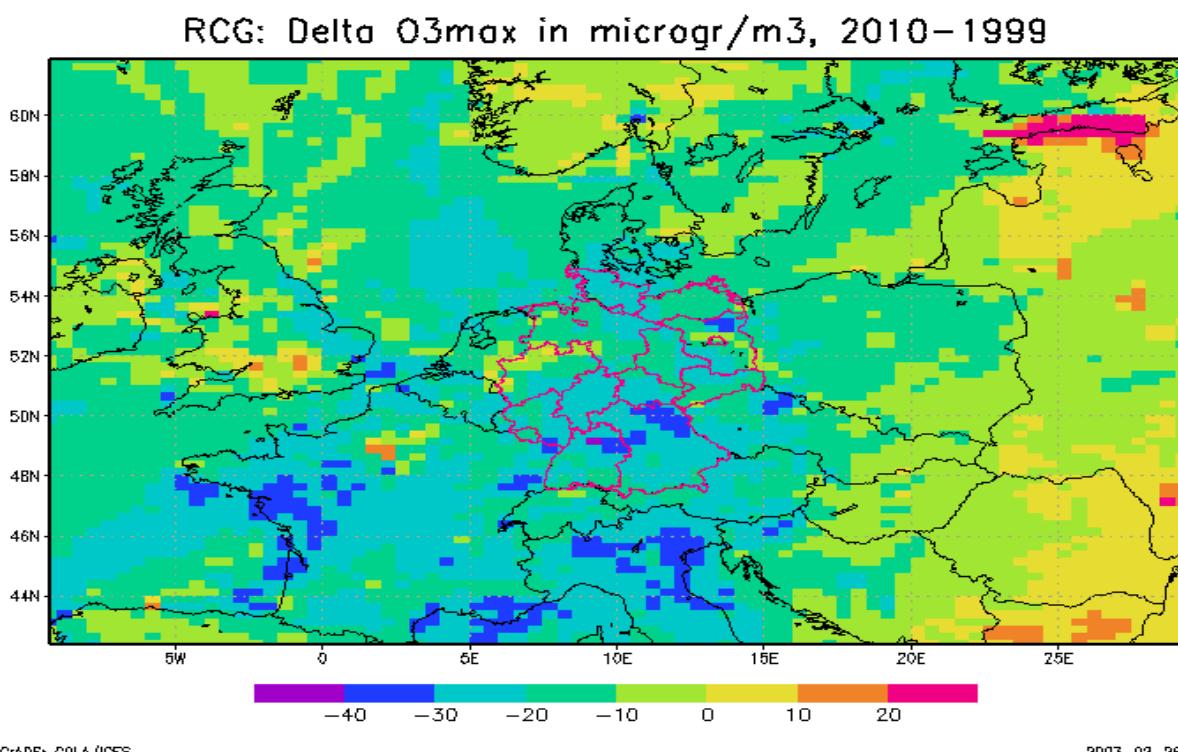


Abbildung 95: Änderung der höchsten berechneten Ozonkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 65).

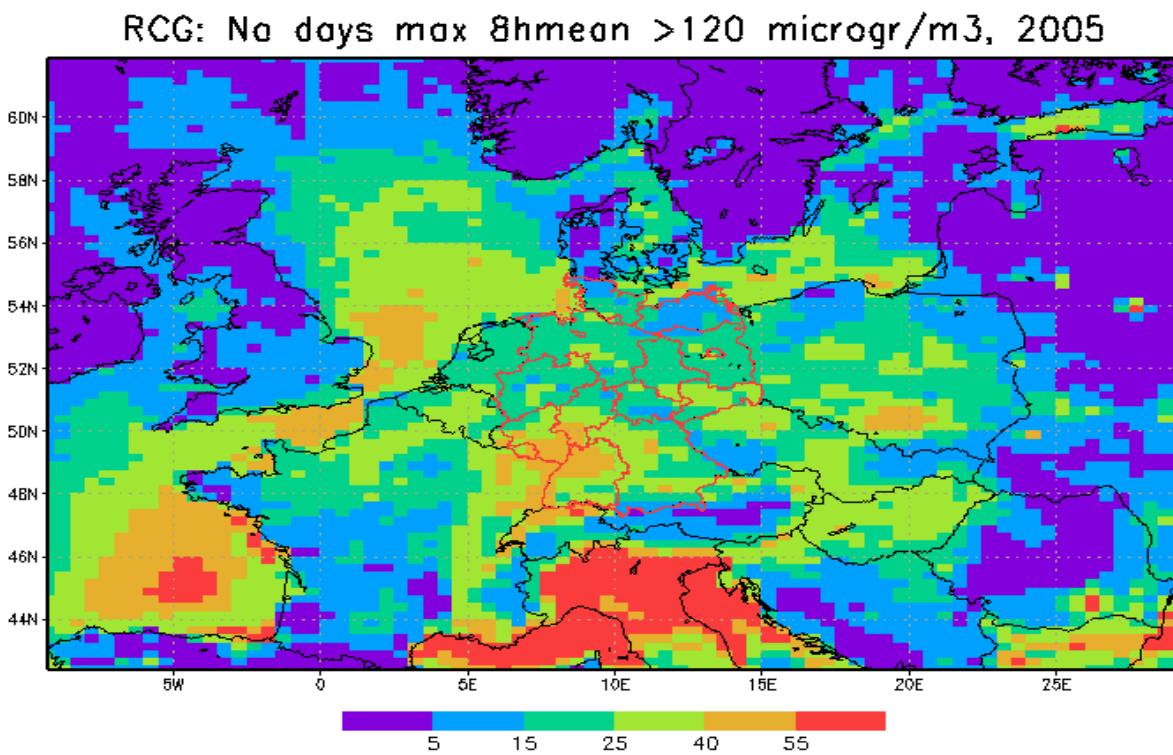


Abbildung 96: Berechnete Anzahl der Tage in 2005, in denen der höchste tägliche 8-Stundenmittelwert von Ozon größer als $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt.

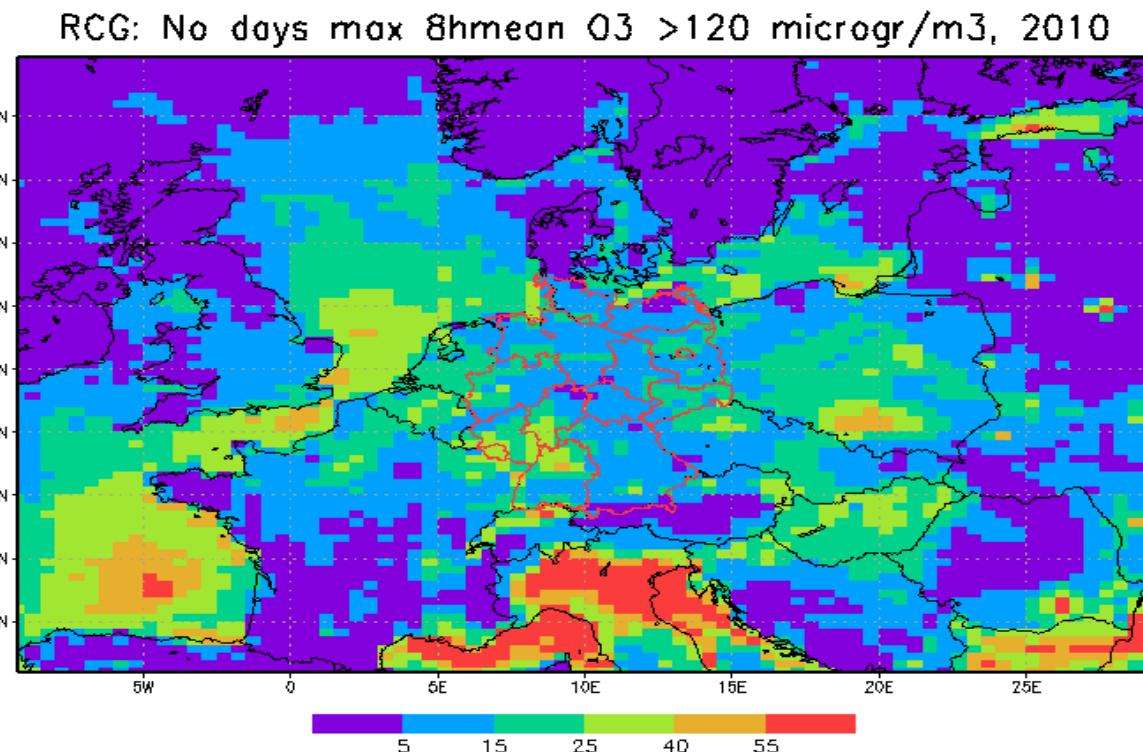


Abbildung 97: Berechnete Anzahl der Tage in 2010, in denen der höchste tägliche 8-Stundenmittelwert von Ozon größer als $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt.

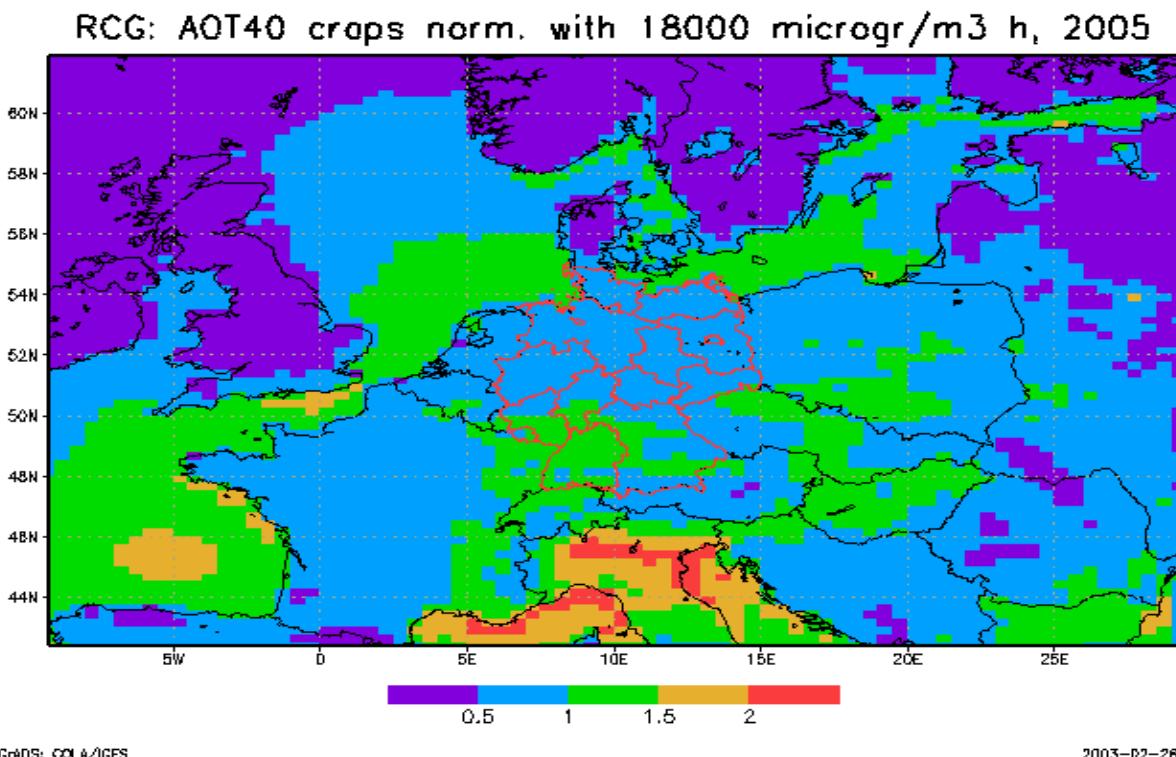


Abbildung 98: Berechnete AOT40-Werte für Pflanzen normiert mit dem Grenzwert (18000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2005.

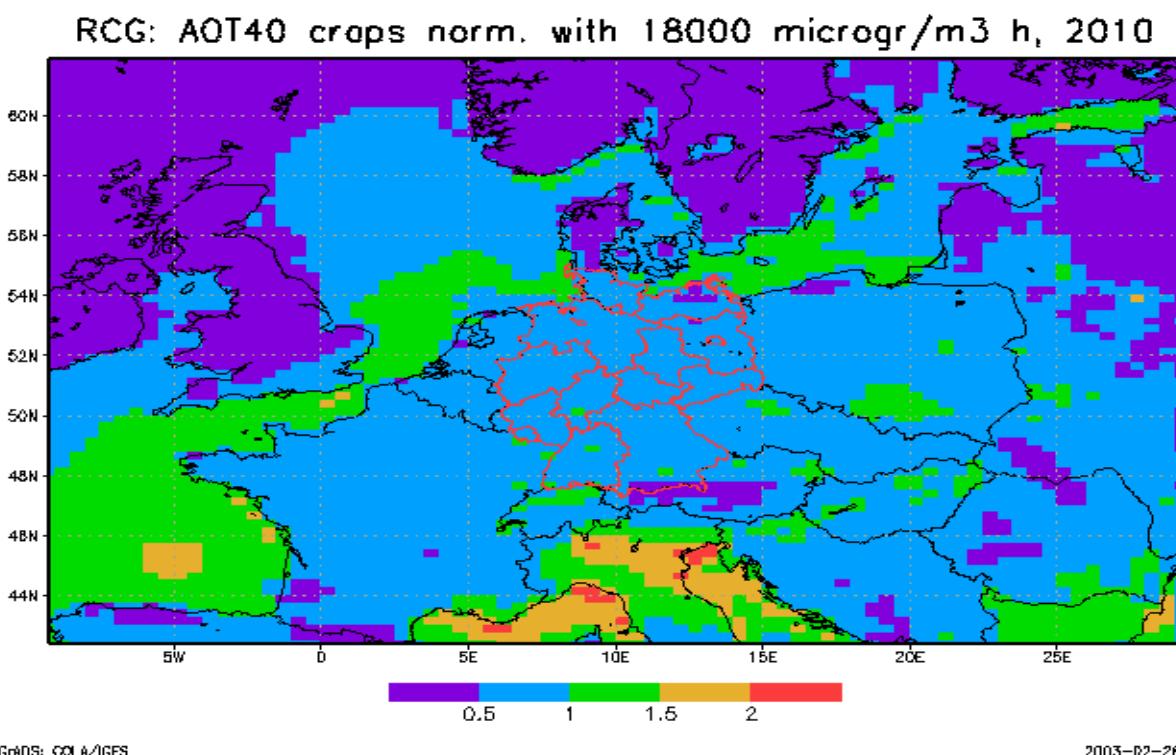


Abbildung 99: Berechnete AOT40-Werte für Pflanzen normiert mit dem Grenzwert (18000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2010.

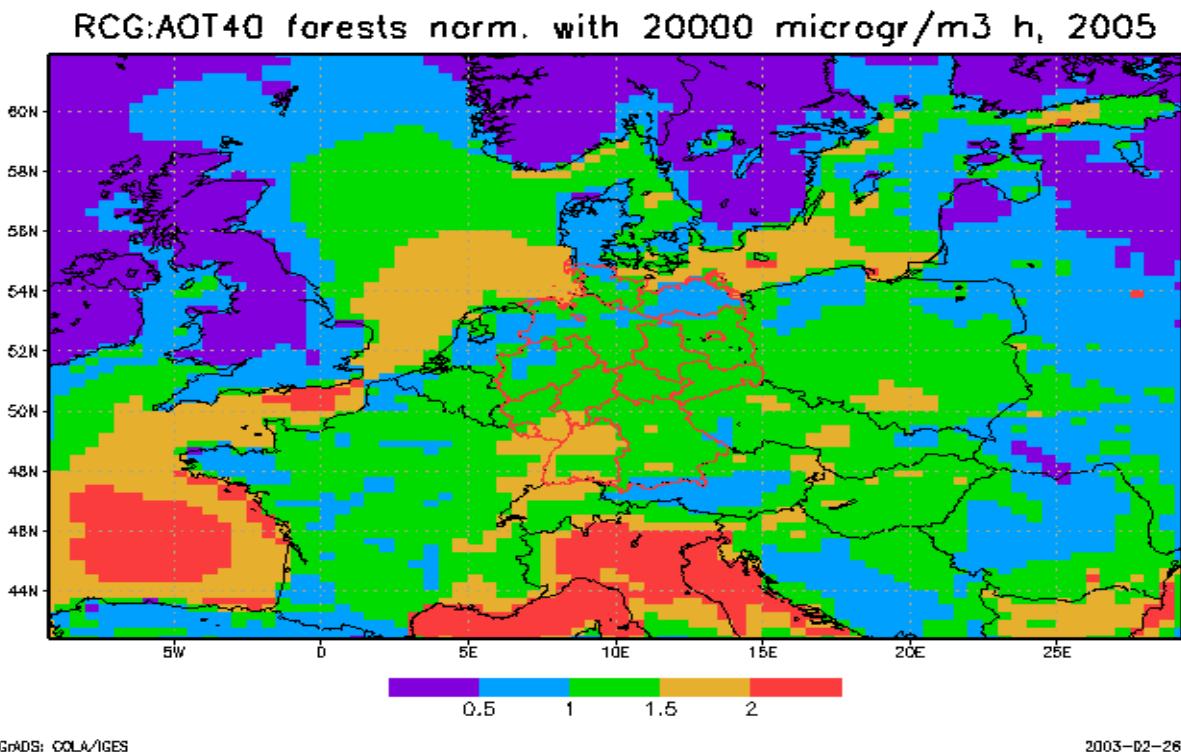


Abbildung 100: Berechnete AOT40-Werte für Wälder normiert mit dem Grenzwert (20000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2005

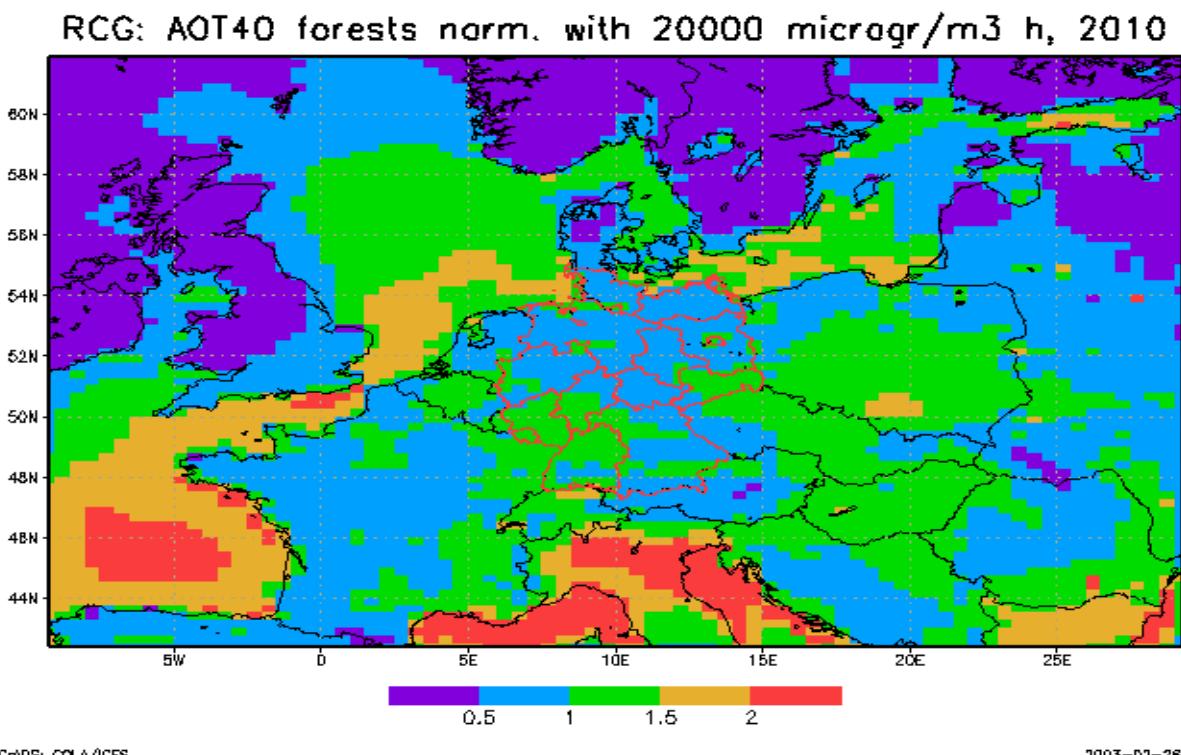


Abbildung 101: Berechnete AOT40-Werte für Wälder normiert mit dem Grenzwert (20000 $\mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$) der EU-Tochterrichtlinie Ozon. Szenariojahr 2010

5.3. Szenario 2005 und 2010: NO₂

Für NO₂ sind in der entsprechenden EU-Tochterrichtlinie (EU, 1999) folgende Grenzwerte, Toleranzmargen und Beurteilungsschwellen definiert:

Schutz	Mittelungs-zeitraum	Grenzwert	Toleranz-marge	Zeitpunkt, bis zu dem der Grenzwert einzuhalten ist	Obere Beurtei-lungs-schwelle	Untere Beurtei-lungs-schwelle
Menschliche Gesundheit	1 Stunde	200 µg/m ³ NO ₂ ; zulässige Zahl der Überschreitungen im Kalenderjahr: 18	100 µg/m ³ NO ₂	1. Januar 2010	140 µg/m ³ NO ₂ ; zulässige Zahl der Überschreitungen im Kalenderjahr: 18	100 µg/m ³ NO ₂ ; zulässige Zahl der Überschreitungen im Kalenderjahr: 18
Menschliche Gesundheit	Kalenderjahr	40 µg/m ³ NO ₂	20 µg/m ³ NO ₂	1. Januar 2010	32 µg/m ³ NO ₂	26 µg/m ³ NO ₂

Die Auswertung orientiert sich wieder an diesen Größen. Die Emissionsänderung der Stickoxide in Deutschland beträgt:

Deutschland Änderung bezogen auf 1995	2005	2010, CLE
Stickoxide	-23%	-45%

Abbildung 102 bis Abbildung 104 zeigen die berechneten täglichen NO₂-Tagesmittelwerte für den Basislauf 1999 und die Szenarien 2005 und 2010 an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstraße. Die Konzentrationen nehmen in allen Größenbereichen nahezu linear ab. In Waldhof sinken die berechneten NO₂-Tagesmittel in den oberen 5% der Summenhäufigkeitsverteilung nach den Berechnungen bis 2005 um 5 bis 10 µg/ m³ ab, was einer relativen Verminderung von 10 bis 20% entspricht. Für das Szenario 2010 ergeben sich in diesem Bereich Abnahmen von 15 bis 20 µg/ m³ oder etwa 30 bis 50%. Die entsprechenden Abnahmen sind in Deuselbach etwas geringer, in Berlin-Nansenstraße etwas höher als in Waldhof. Im Jahresmittel sind an diesen Stationen bis 2005 relative Abnahmen der NO₂-Konzentration in der Größenordnung von 20%, bis 2010 in der Größenordnung von 40% zu erwarten (Tabelle 23).

NO ₂ -Jahresmittelwert	Basislauf 1999	Szenario 2005	Szenario 2010
Waldhof	12,0 µg/ m ³	9,2 µg/ m ³ - 23%	6,3 µg/ m ³ - 48%
Deuselbach	14,7 µg/ m ³	12,1 µg/ m ³ - 18%	9,6 µg/ m ³ - 35%
Berlin-Nansenstr.	21,3 µg/ m ³	16,9 µg/ m ³ - 21%	11,9 µg/ m ³ - 44%

Tabelle 23: Berechnete NO₂-Jahresmittelwerte für den Basislauf 1999 und die Szenarien 2005 und 2010.

Die Abbildung 105 zeigt noch einmal die berechneten NO₂-Jahresmittelwerte für den Basislauf 1999. Die Skalierung der Abbildung ist so gewählt, dass die in der Tochterrichtlinie zu den Stickoxiden definierten Konzentrationsgrenzen für untere Beurteilungsschwelle (26 µg/m³), obere Beurteilungsschwelle (32 µg/m³), Grenzwert (40 µg/m³) und Grenzwert+Toleranzmarge (60 µg/m³) direkt erkennbar sind. Nach den Berechnungen wird der Grenzwert nur in Teilbereichen des Ruhrgebiets überschritten. In der Realität wurden im Jahre 1999 Grenzwertüberschreitungen aber an einer Vielzahl von Stadtstationen gemessen. Diese lokal hohen Konzentrationen, die durchweg in Städten auftraten, können in der großräumigen Modellskala nicht modelliert werden. Zur Einarbeitung solcher gemessener hoher Konzentrationen in berechnete Felder wurden im Rahmen dieses Vorhabens Methodiken entwickelt, die auf der Theorie der Optimalen Interpolation (OI) beruhen (Flemming 2003b). Eine erste Anwendung zur Einschätzung der Luftqualität 1999 auf der Basis von Messungen und Modellrechnungen ist in Stern und Flemming (2001) zu finden. Die Methodik der OI kann aber nicht für Szenariorechnungen verwendet werden, da die Messungen immer nur den Istzustand der Immission wiederspiegeln können. Da die berechnete absolute NO₂-Konzentrationsabnahme als Folge von Emissionsminderungen mit zunehmender Ausgangskonzentration aber relativ linear zunimmt, können die relativen Konzentrationsänderungen in erster Näherung auch auf Konzentrationsbereiche übertragen werden, die von der Modellskala nicht erfasst werden.

Die Abbildung 106 zeigt die für das Basisjahr 1999 berechnete Verteilung des 99.79-Perzentils der stündlichen NO₂-Konzentrationen. Dieses Perzentil beschreibt den 19-höchsten Stundenwert der Summenhäufigkeitsverteilung und gibt damit die Konzentrationsgrenze an, die mehr als 18 mal überschritten wird. Der Grenzwert für diese Größe ist 200 µg/m³, die untere Beurteilungsschwelle 100 µg/m³, die obere Beurteilungsschwelle 140 µg/m³. In der Nähe oder über dem Grenzwert liegen die berechneten Konzentrationen in den Ballungsgebieten von Mailand, Paris und London. In Deutschland liegt das berechnete 99.79-Perzentil durchweg unterhalb der oberen Beurteilungsschwelle. In der Realität wurden in 1999 an circa 25 zum Großteil verkehrsnahen Stadtstationen Überschreitungen der oberen Beurteilungsschwelle gemessen (siehe Stern und Flemming, 2001). Die Skala dieser Messungen ist in einer großräumigen Modellrechnung nicht darstellbar.

Die Änderungen des NO₂-Jahresmittelwerts für die Emissionsentwicklung 2005 zeigt die Abbildung 107. Nach den Berechnungen ist für Deutschland bis zum Jahre 2005 mit einer Abnahme der NO₂-Jahresmittelwerte um 2 bis 7 µg/m³, oder bezogen auf 1999 um 10% bis 25% zu rechnen. In Osteuropa ist aufgrund der prognostizierten Emissionszunahmen mit Konzentrationszunahmen zu rechnen. Bis zum Jahre 2010 werden in Deutschland Abnahmen zwischen 7 und 15 µg/m³, oder 30% bis 50%, berechnet.

Die berechneten Änderungen des 99.79-Perzentils der NO₂-Stundenwerte bis zum Jahre 2005 reichen in Deutschland bis zu 20 µg/m³ oder 25% (Abbildung 109). Im Jahre 2010 sind nach den Rechnungen Abnahmen bis in den Bereich von 40 µg/m³ oder 50% erreichbar (Abbildung 110).

Besonders starke absolute Abnahmen werden naturgemäß in den Ballungsgebieten berechnet. Die Verteilung der relativen Abnahmen ist aber flacher, was auf einen quasi-linearen Zusammenhang zwischen relativer Emissions- und relativer Konzentrationsänderung hinweist. In diesem Zusammenhang muss noch betont werden, dass die Emissionsänderungen zwar länderweise vorgenommen wurden, innerhalb eines Landes aber überall die gleiche relative Emissionsminde rung angesetzt werden muss, da räumliche aufgelöste Information über Emissionsänderungen unterhalb der Länderebene für Europa nicht vorliegt.

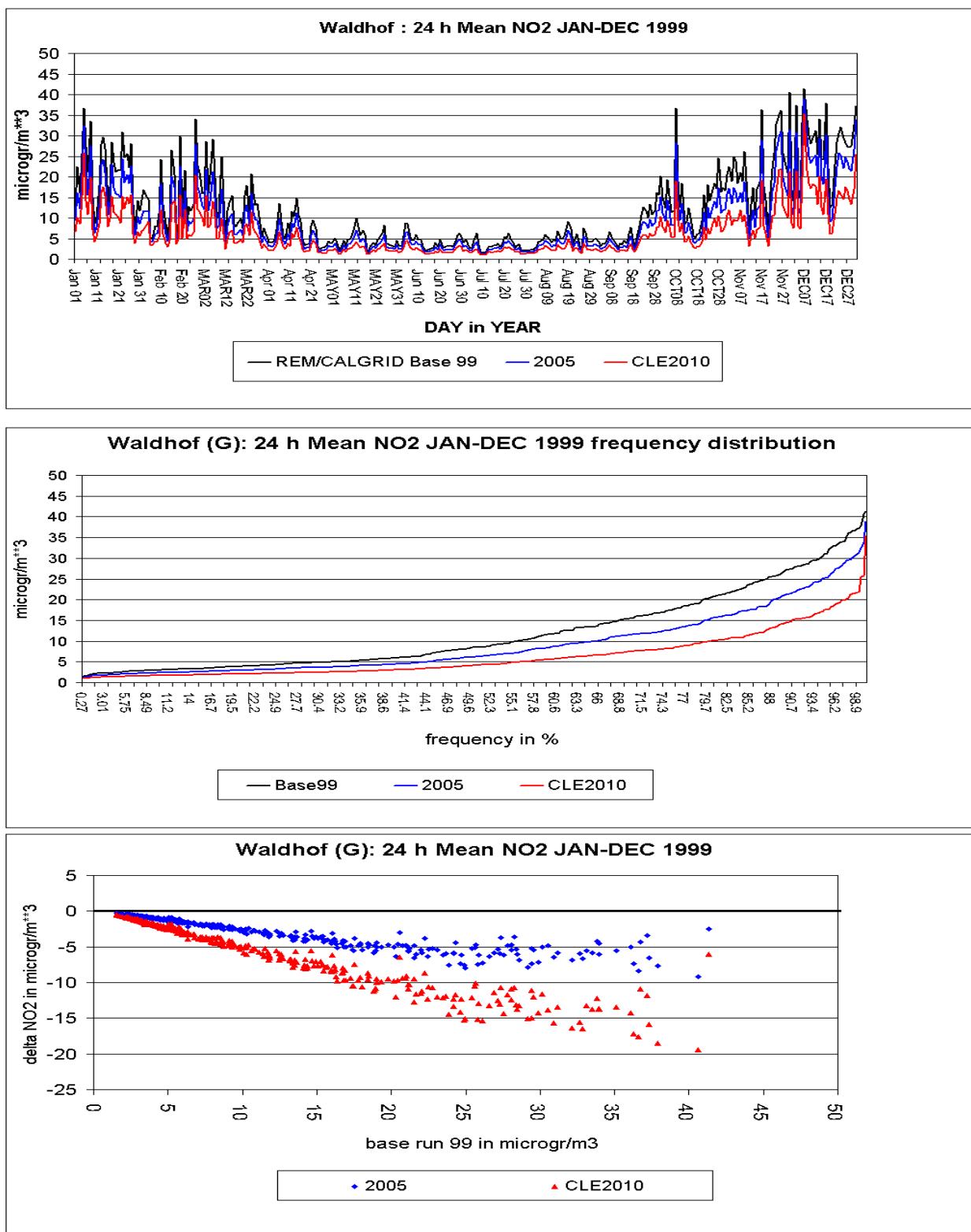


Abbildung 102: Berechnete tägliche NO₂-Mittelwerte an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der NO₂-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen NO₂-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

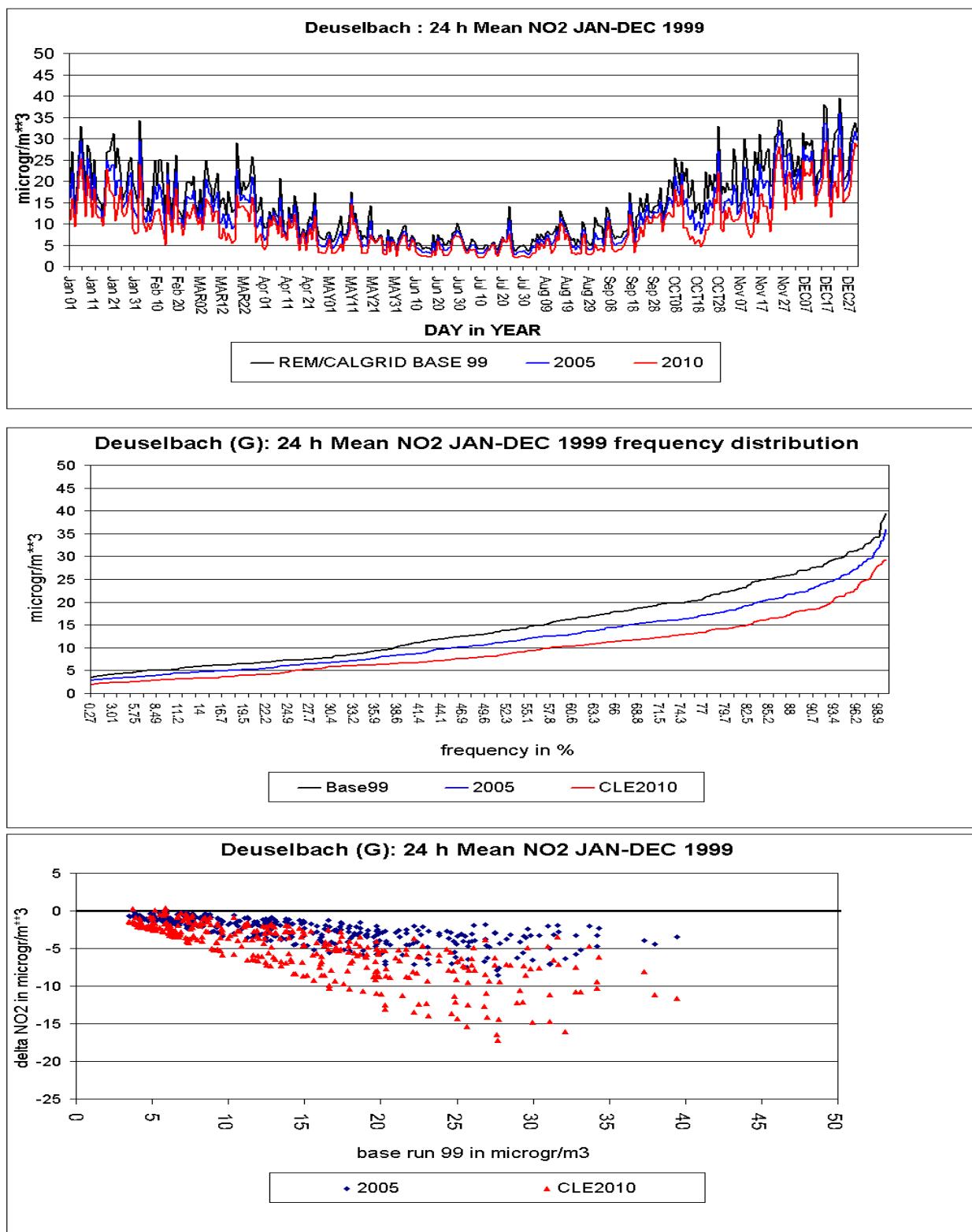


Abbildung 103: Berechnete tägliche NO₂-Mittelwerte an der Station Deuselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der NO₂-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen NO₂-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

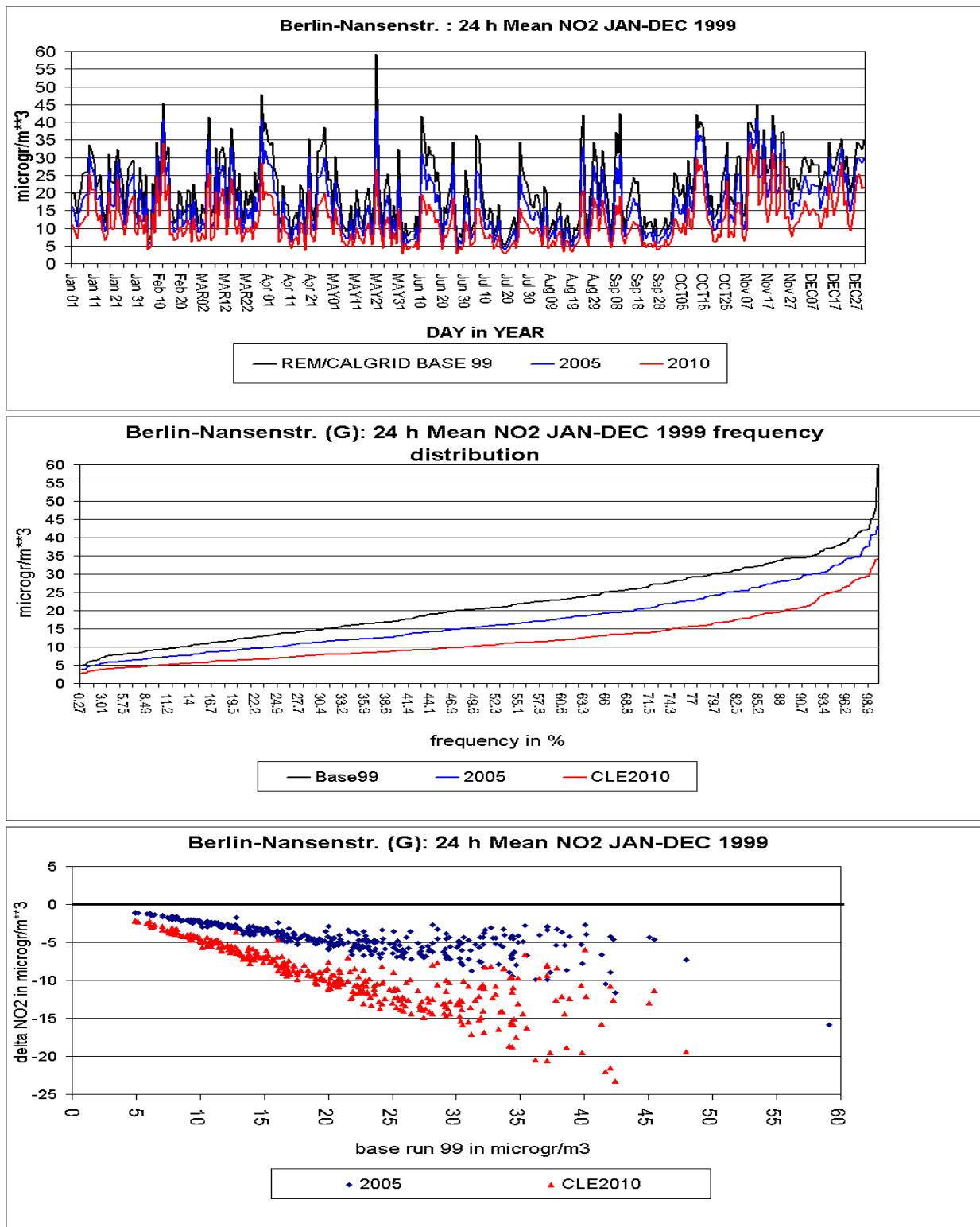


Abbildung 104: Berechnete tägliche NO₂-Mittelwerte an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der NO₂-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen NO₂-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

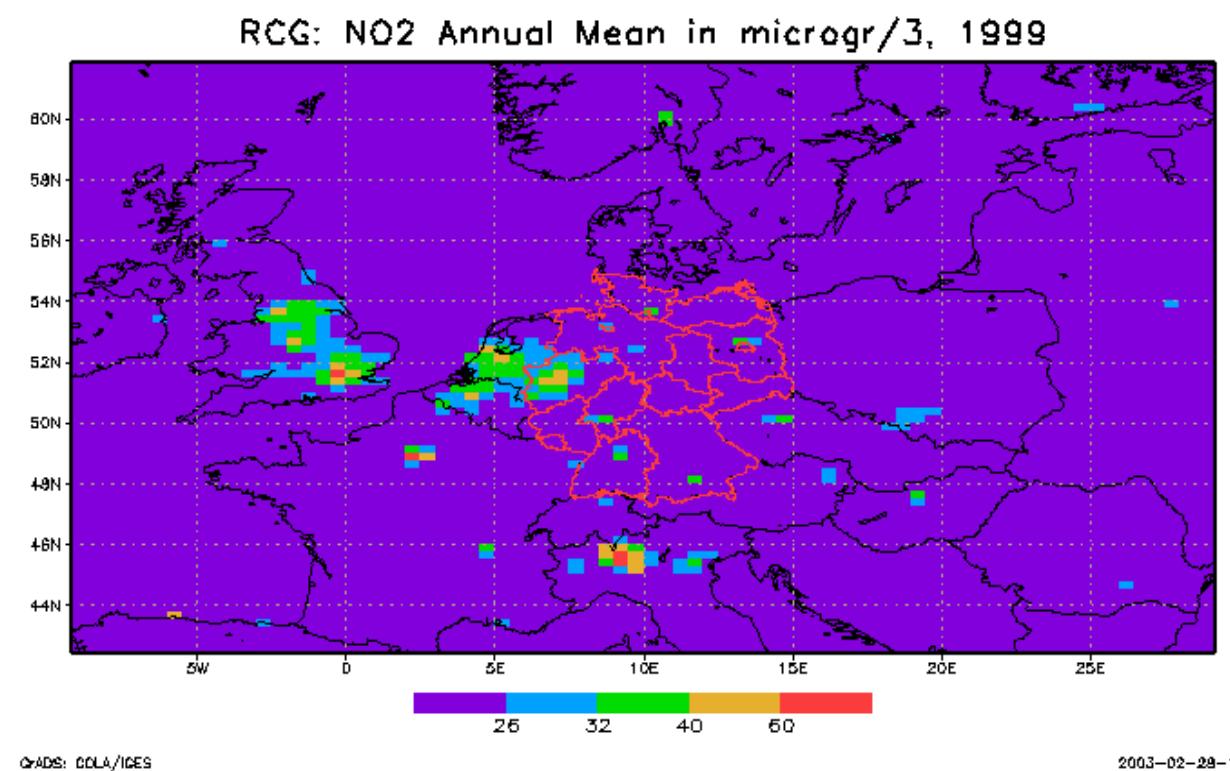


Abbildung 105: Berechnete NO₂-Jahresmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999

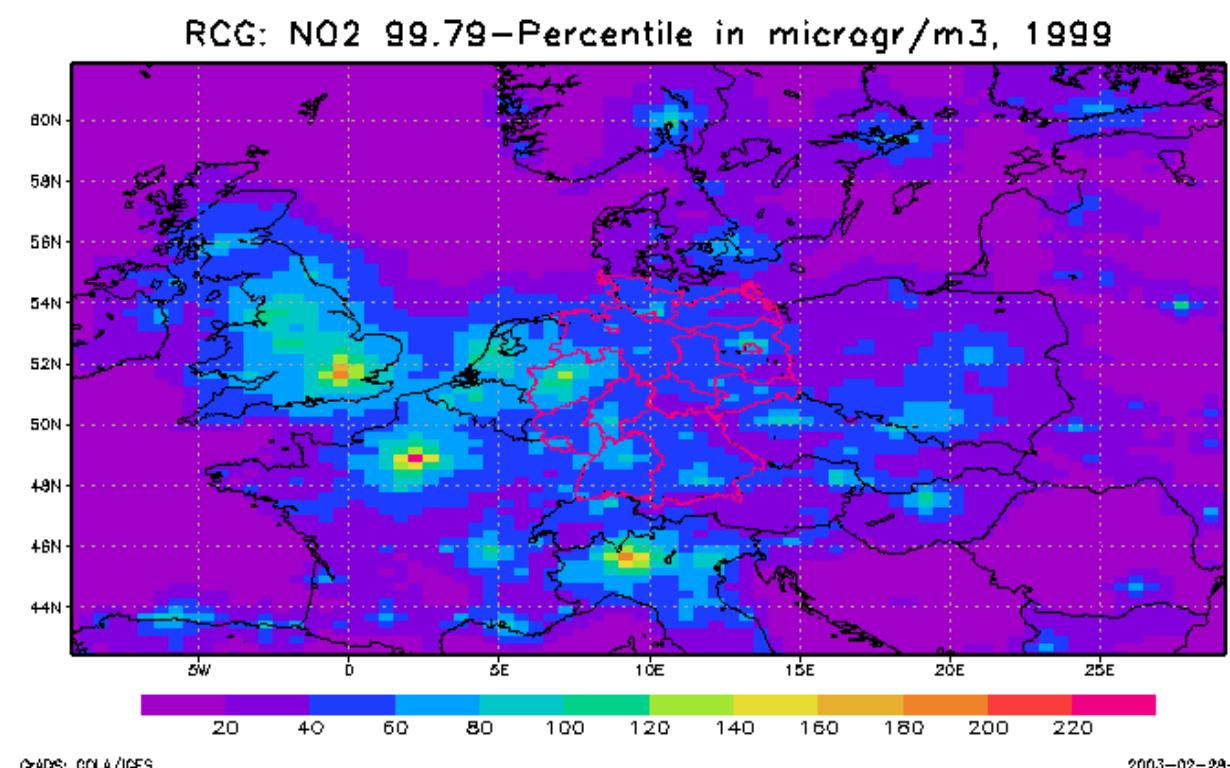


Abbildung 106: Berechnete 99.79-Perzentile der NO₂-Stundenwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999.

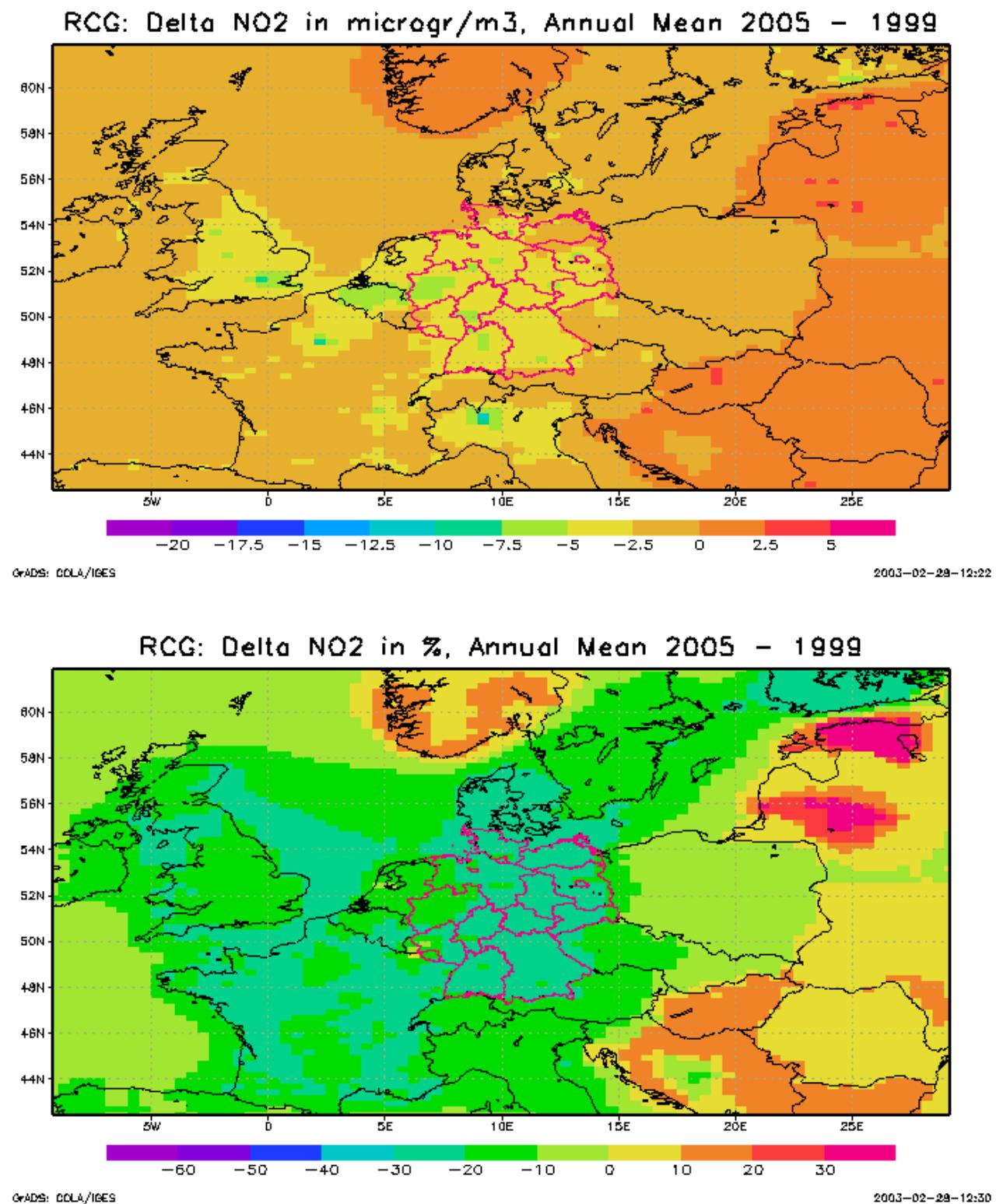


Abbildung 107: Berechnete Änderung der NO₂-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 105).

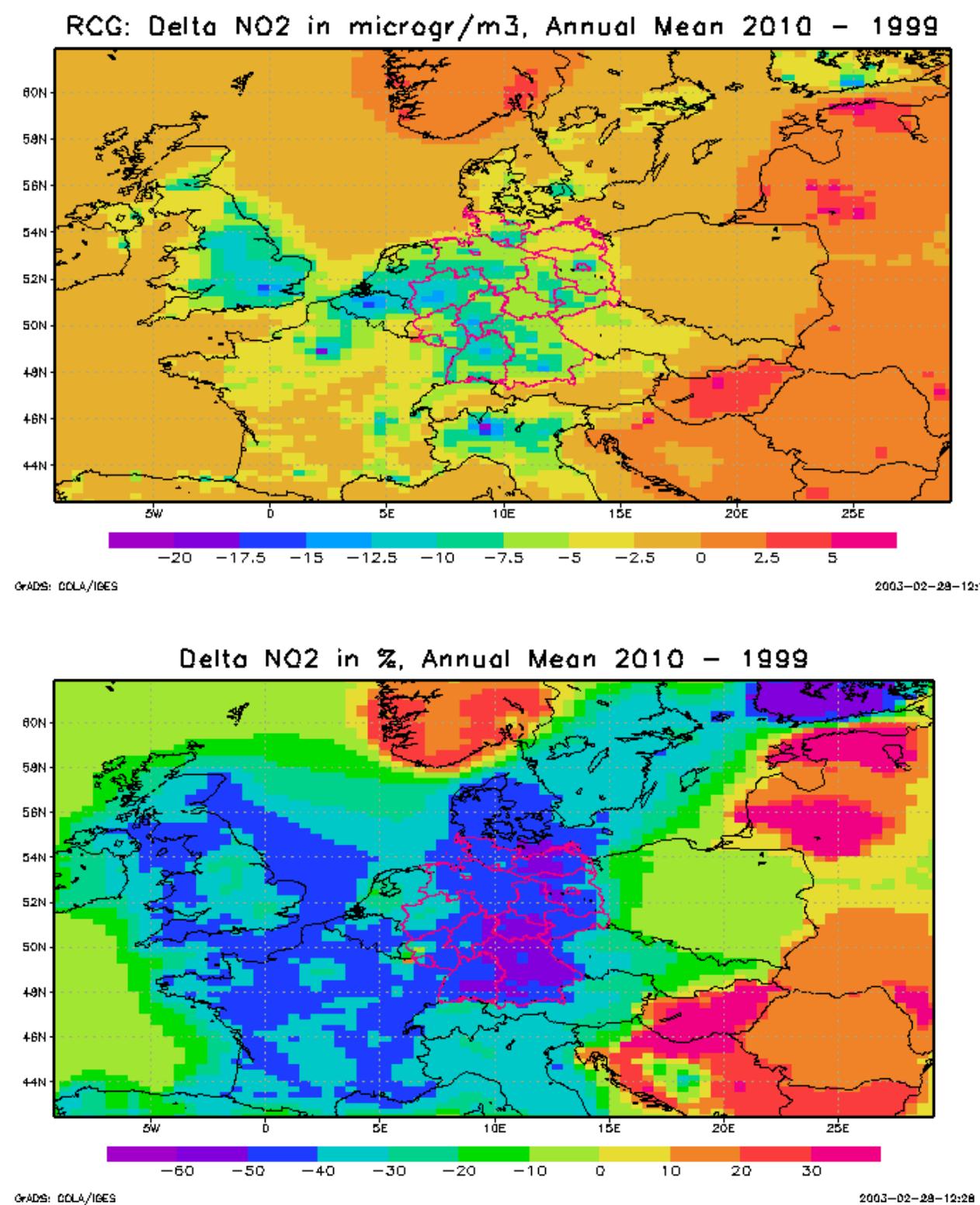


Abbildung 108: Berechnete Änderung der NO₂-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 105).

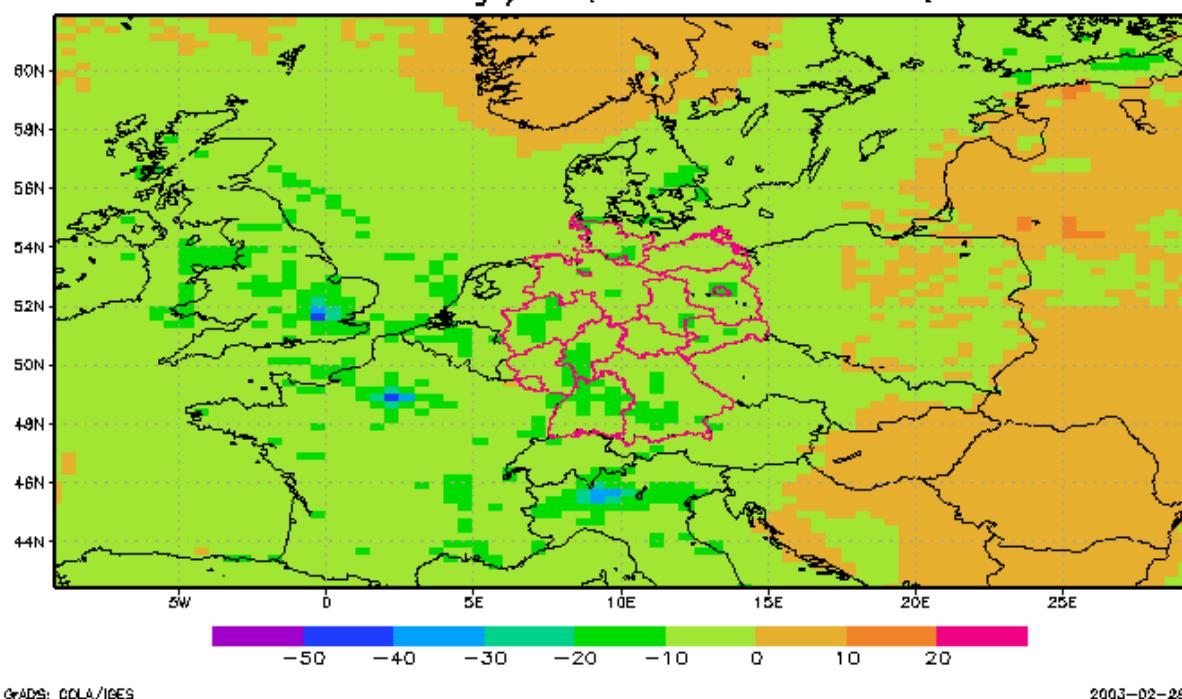
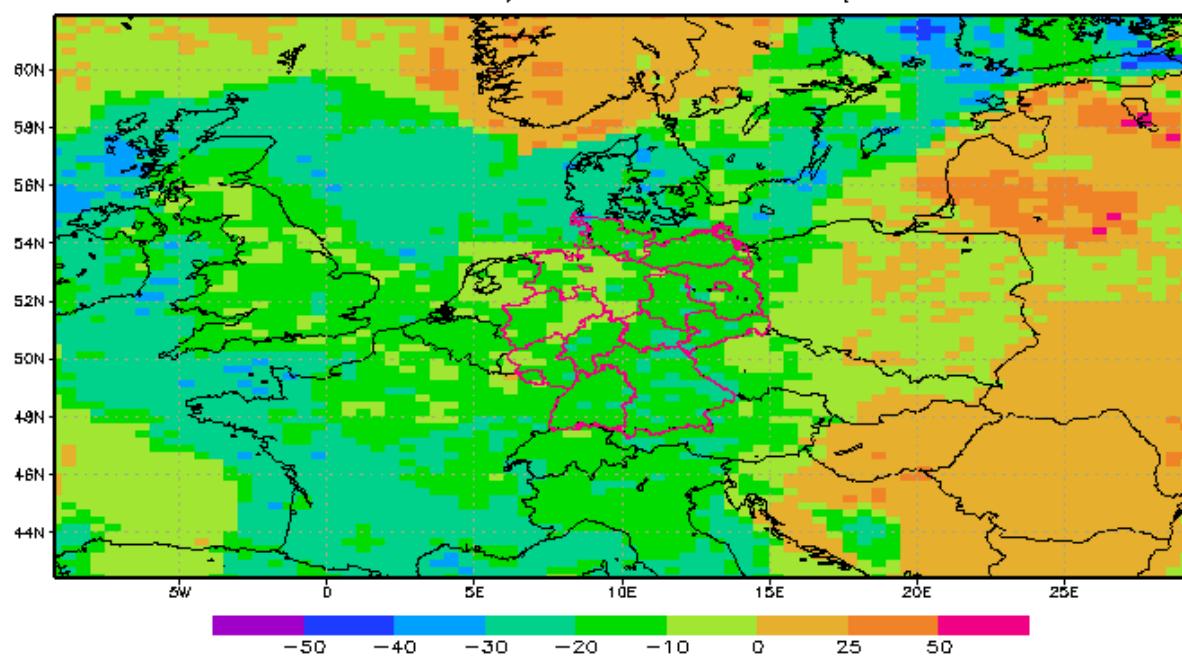
RCG: Delta NO₂ in microgr/m³, 99.79-Percentile, 2005 – 19999RCG: Delta NO₂ in %, 99.79-Percentile, 2005 – 1999

Abbildung 109: Berechnete Änderung des 99.79-Percentils der NO₂-Stundenwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 106).

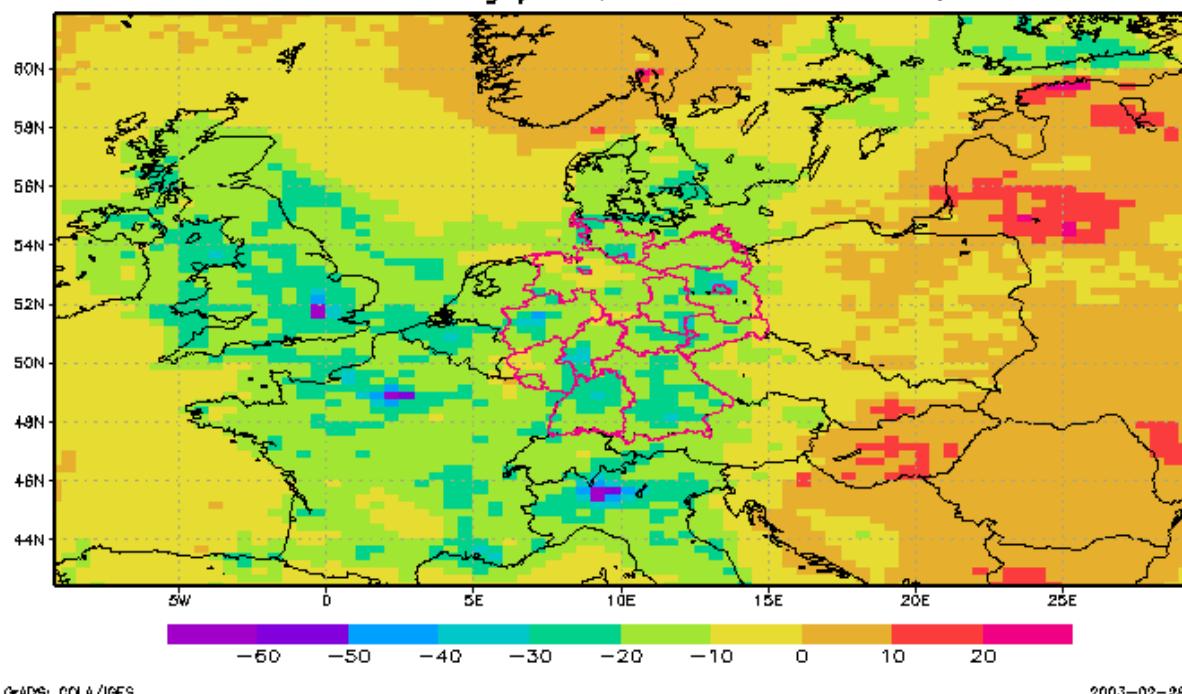
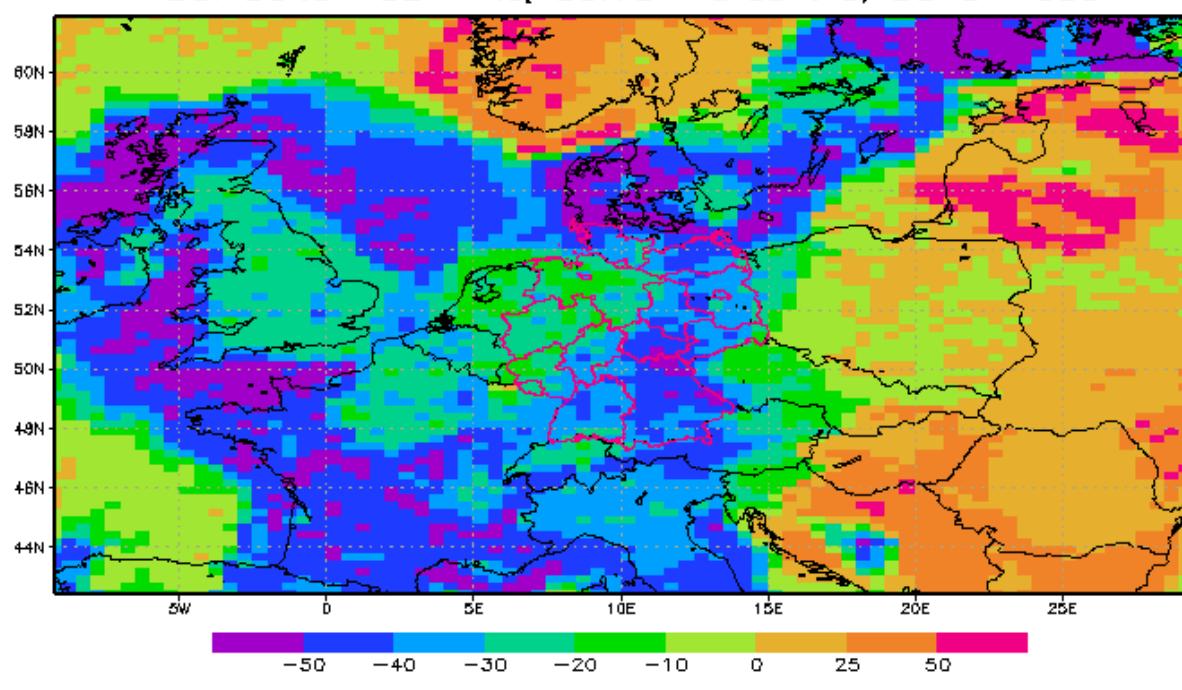
RCG: Delta NO₂ in microgr/m³, 99.79-Percentile, 2010 – 1999RCG: Delta NO₂ in %, 99.79-Percentile, 2010–1999

Abbildung 110: Berechnete Änderung des 99.79-Percentils der NO₂-Stundenwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 106).

5.4. Szenario 2005 und 2010: PM10

Für PM10 sind in der entsprechenden EU-Tochterrichtlinie (EU, 1999) für die Stufe 1 folgende Grenzwerte und Toleranzmargen definiert:

Schutz	Mittelungszeitraum	Grenzwert	Toleranzmarge	Zeitpunkt, bis zu dem der Grenzwert einzuhalten ist
Menschliche Gesundheit	24 Stunden	50 µg/m ³ ; zulässige Zahl der Überschreitungen im Kalenderjahr: 35	25 µg/m ³	1. Januar 2005
Menschliche Gesundheit	Kalenderjahr	40 µg/m ³	8 µg/m ³	1. Januar 2005

Die Auswertung orientiert sich wieder an diesen Größen. Die für Deutschland betrachtete PM10-Emissionsänderung ist:

Deutschland Änderung bezogen auf 1995	2005	2010, CLE
PM2.5	-22%	-44%
PM10 - PM2.5	-23%	-47%

Abbildung 111 bis Abbildung 113 zeigen die berechneten täglichen PM10-Tagesmittelwerte für den Basislauf 1999 und die Szenarien 2005 und 2010 an den Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstraße. In Waldhof sinken die berechneten PM10-Tagesmittel in den oberen 5% der Summenhäufigkeitsverteilung nach den Berechnungen bis 2005 um circa 5 µg/m³ ab, was einer relativen Verminderung von 12 bis 13% entspricht. Für das Szenario 2010 ergeben sich in diesem Bereich Abnahmen von circa 10 µg/m³ oder etwa 27% bezogen auf den Basilauf 1999. In Deuselbach werden ähnliche Abnahmen berechnet. An der Berliner Nansenstraße sind die erzielbaren relativen Abnahmen etwas geringer als in Waldhof oder Deuselbach. Die maximal berechneten PM10-Tagesmittelwerte nehmen übereinstimmend an den Stationen um 5 bis 7 µg/m³ (2005), bzw. 15 µg/m³ (2010) ab. Im Jahresmittel sind an diesen Stationen bis 2005 relative Abnahmen der PM10-Konzentration um circa 12%, bis 2010 um circa 25% zu erwarten (Tabelle 24).

PM10-Jahresmittelwert	Basislauf 1999	Szenario 2005	Szenario 2010
Waldhof	17,8 µg/m ³	15,7 µg/m ³ - 12%	13,4 µg/m ³ - 25%
Deuselbach	19,6 µg/m ³	17,2 µg/m ³ - 12%	14,6 µg/m ³ - 26%
Berlin-Nansenstr.	22,0 µg/m ³	19,5 µg/m ³ - 11%	16,9 µg/m ³ - 23%

Tabelle 24: Berechnete PM10-Jahresmittelwerte für den Basislauf 1999 und die Szenarien 2005 und 2010. Stationen Waldhof, Deuselbach und Berlin-Nansenstraße.

Die Abbildung 114 zeigt die berechneten PM10-Jahresmittelwerte für den Basislauf 1999. Die Skalierung der Abbildung ist so gewählt, dass die in der Tochterrichtlinie zu PM10 definierten Konzentrationsgrenzen für untere Beurteilungsschwelle, Stufe 2, ($10 \mu\text{g}/\text{m}^3$), obere Beurteilungsschwelle, Stufe 2, ($14 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Grenzwert, Stufe 2, ($20 \mu\text{g}/\text{m}^3$), Grenzwert, Stufe 1, ($40 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und Grenzwert+Toleranzmarge ($48 \mu\text{g}/\text{m}^3$) erkennbar sind. Der Grenzwert, Stufe 1, wird in allen großen Ballungsgebieten Europa überschritten. In Deutschland kommt es nach den Berechnungen nur in Teilbereichen des Ruhrgebiets zu Grenzwertüberschreitungen der Stufe 1. In der Realität wurden im Jahre 1999 PM10-Jahresmittelwerte über $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ außer an drei Stationen im Ruhrgebiet (Gelsenkirchen, Meiderich, Essen) noch in den Städten Augsburg, München, Chemnitz, Poessneck und Erfurt gemessen (Stern und Flemming, 2001). Diese lokal hohen Konzentrationen werden wie schon die hohen gemessenen NO₂-Konzentrationen in der großräumigen Modellskala nicht erfasst. Der Grenzwert der Stufe 2, $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$, kann für die Emissionssituation 1999 in weiten Teilen Deutschlands und Europas nicht eingehalten werden.

Die Abbildung 115 zeigt die für das Basisjahr 1999 berechnete Verteilung des 90.41-Perzentils der PM10-Tagesmittelwerte. Dieses Perzentil beschreibt den 36-höchsten Tagesmittelwert der Summenhäufigkeitsverteilung und gibt damit die Konzentrationsgrenze an, die mehr als 35 mal überschritten wird (Stufe 1). Der Grenzwert für diese Größe beträgt $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In vielen Ballungsgebieten Europas werden an mehr als 35 Tage PM10-Tagesmittel größer $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet.

Die Änderungen der PM10-Jahresmittelwerte für die Emissionsentwicklung 2005 zeigt die Abbildung 116. Nach den Berechnungen ist für Deutschland bis zum Jahre 2005 mit einer Abnahme der PM10-Jahresmittelwerte in den ländlichen Regionen zwischen 2 und $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, in den Ballungsgebieten bis zu $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, oder bezogen auf 1999 um 10% bis 15% zu rechnen. In Ost-europa werden aufgrund der prognostizierten Emissionszunahmen Konzentrationszunahmen berechnet. Für das Emissionsszenario 2010 ergeben sich in Deutschland Abnahmen zwischen $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den ländlichen Gebieten und $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den Stadtgebieten, was relativen Abnahmen zwischen 20% und 30% entspricht (Abbildung 117). Bezogen auf die Emissionsänderungen des anthropogenemittierten Feinstaubs sind die PM10-Konzentrationsabnahmen unterproportional, da PM10 außerhalb der Ballungsgebiete circa zur Hälfte aus in der Atmosphäre gebildeten Sekundäraerosolen besteht (siehe Abbildung 80 und Abbildung 81). Die Konzentration dieser Aerosole ändert sich zwar mit einer Änderung der Konzentrationen der Vorläuferstoffe HNO₃, SO₂ und NH₃, aber nicht durch eine Änderung der Emission der Primäranteile des PM10. In den Ballungsgebieten überwiegt der Anteil des primär emittierten PM10 und demzufolge sind die dort erreichbaren Abnahmen des gesamten PM10 infolge der Minderung der Primäremissionen auch größer als in den Landgebieten.

Die berechneten Änderungen des 90.41-Perzentils der PM10-Tagesmittelwerte bis zum Jahre 2005 reichen in Deutschland von circa $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den Landgebieten bis zu $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den Gebieten mit höherer Emissionsdichte. Dies entspricht relativen Abnahmen von 8% bis 16% (Abbildung 118). Im Jahre 2010 sind nach den Rechnungen in Deutschland Abnahmen in den Bereichen 5 bis $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ oder 20% bis 30% erreichbar (Abbildung 119). Der erlaubte Anzahl von 35 Überschreitungen eines PM10-Tagesmittelwerts von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ kann nach den Rechnungen bis zum Jahre 2005 zumindestens in den Gebieten mit hoher Emissionsdichte also nicht eingehalten werden. Dies zeigt die Abbildung 120 noch einmal im Deutschlandausschnitt.

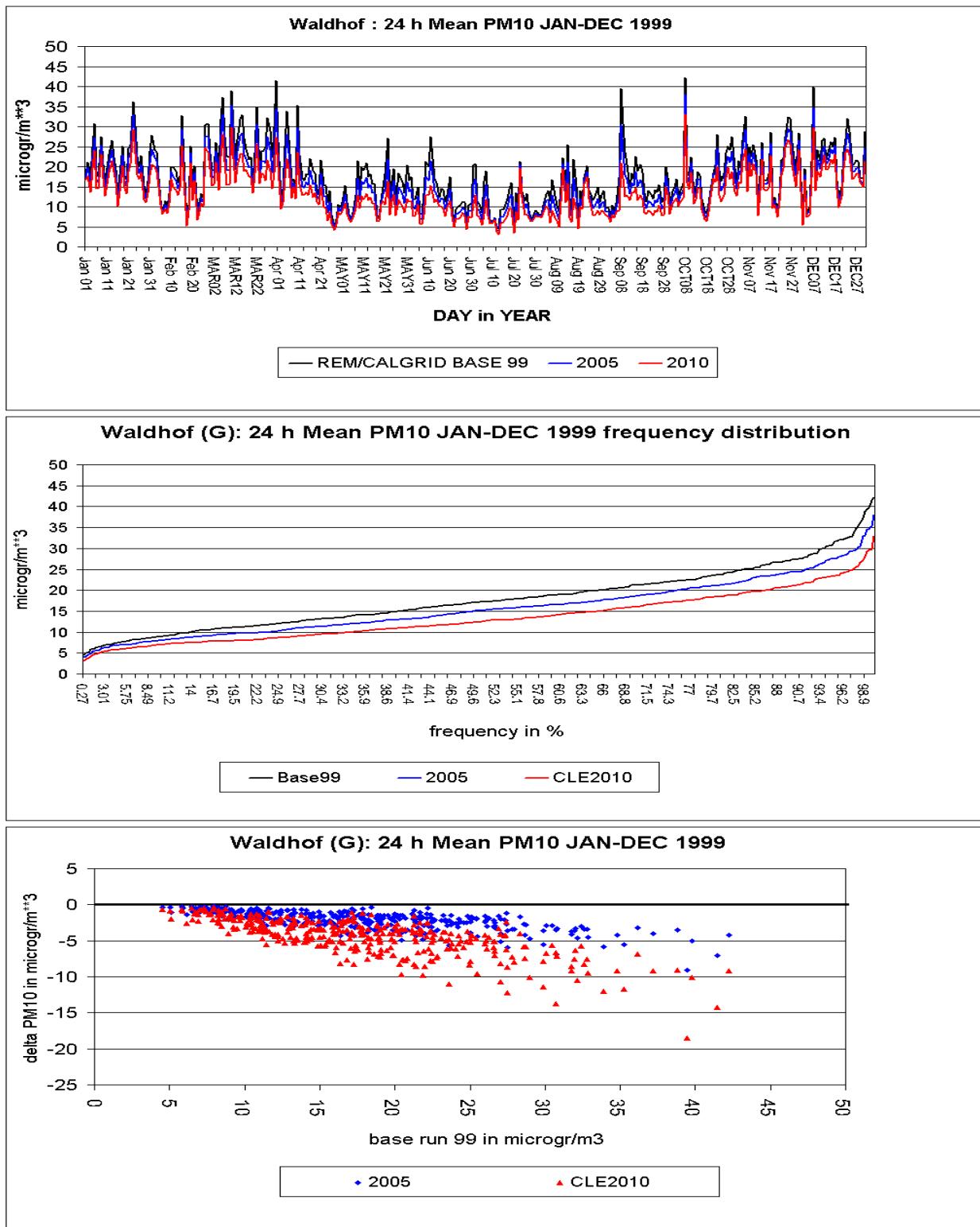


Abbildung 111: Berechnete tägliche PM10-Mittelwerte an der Station Waldhof für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der PM10-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen PM10-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

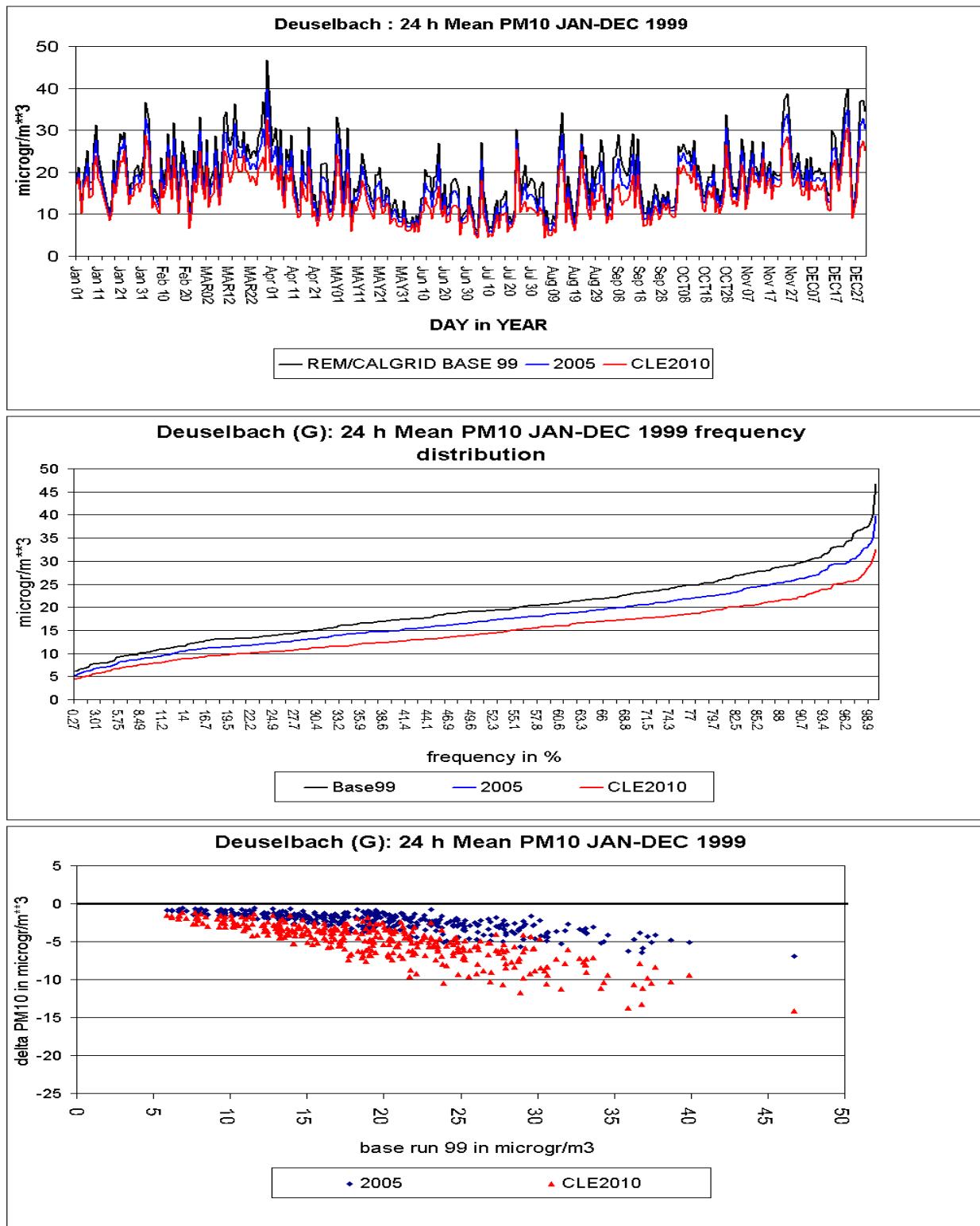


Abbildung 112: Berechnete tägliche PM10-Mittelwerte an der Station Deieselbach für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der PM10-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen PM10-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

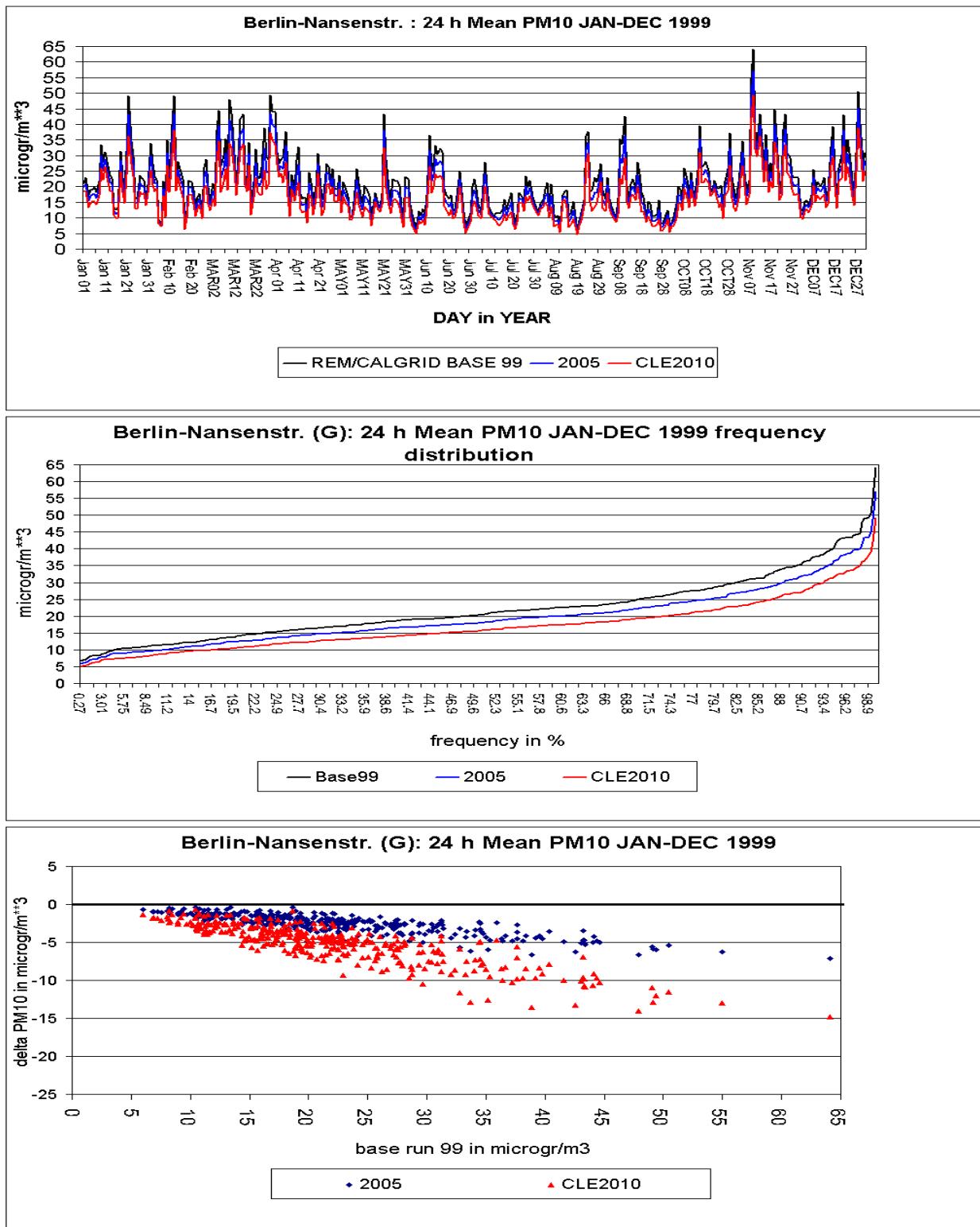


Abbildung 113: Berechnete tägliche PM10-Mittelwerte an der Station Berlin-Nansenstraße für 1999, 2005 und 2010 (oben). Summenhäufigkeit der PM10-Mittelwerte (Mitte). Änderung der täglichen PM10-Mittelwerte 1999 als Folge der Emissionsminderung 2005 und 2010 (unten). Alle Angaben in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

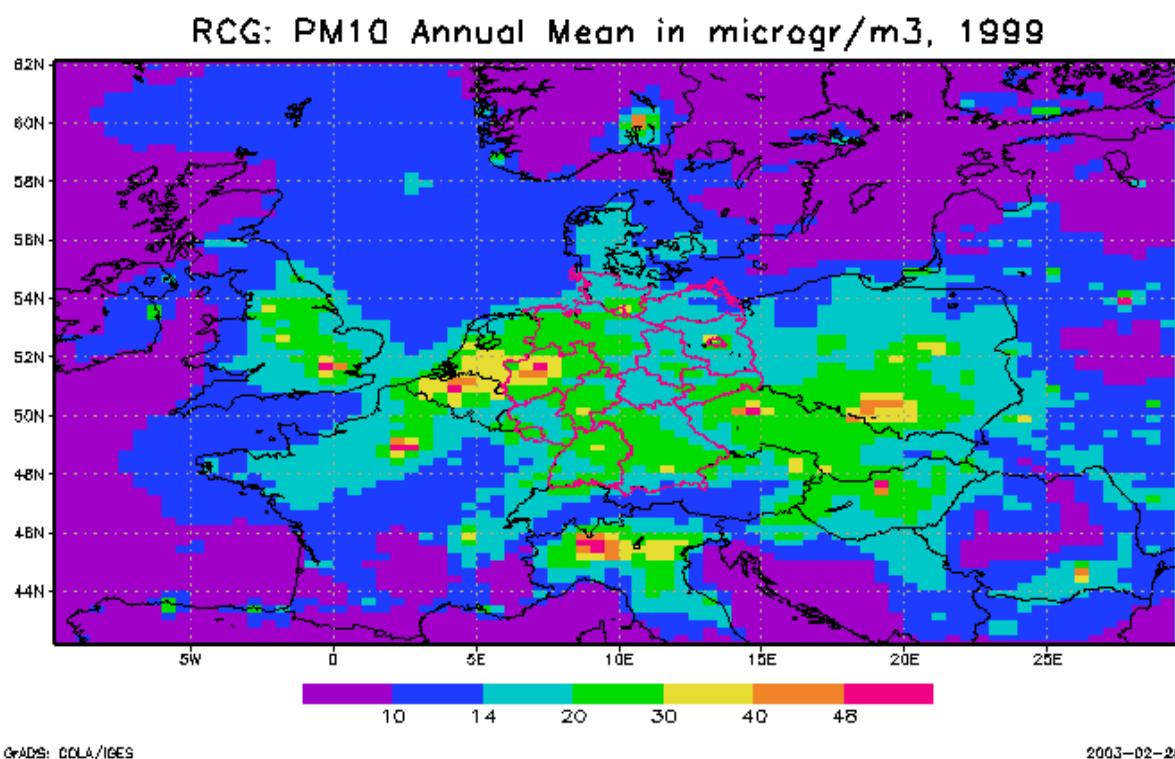


Abbildung 114: Berechnete PM10-Jahresmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999

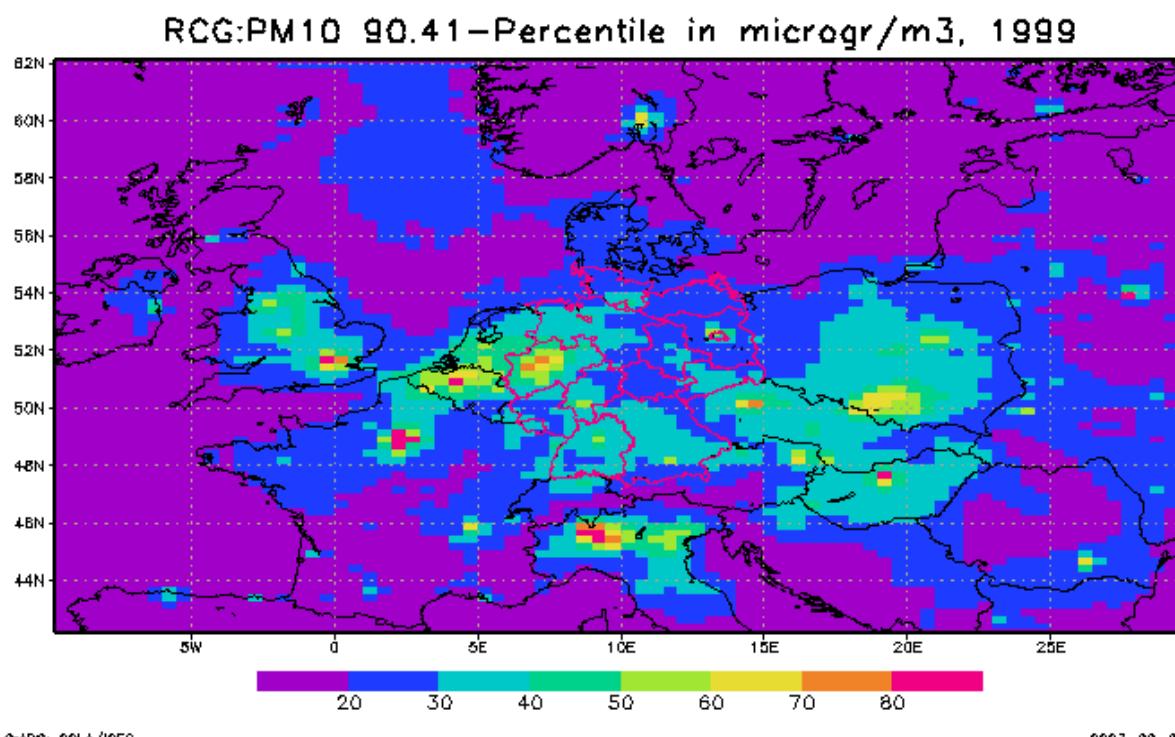


Abbildung 115: Berechnete 90.14-Perzentile der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999.

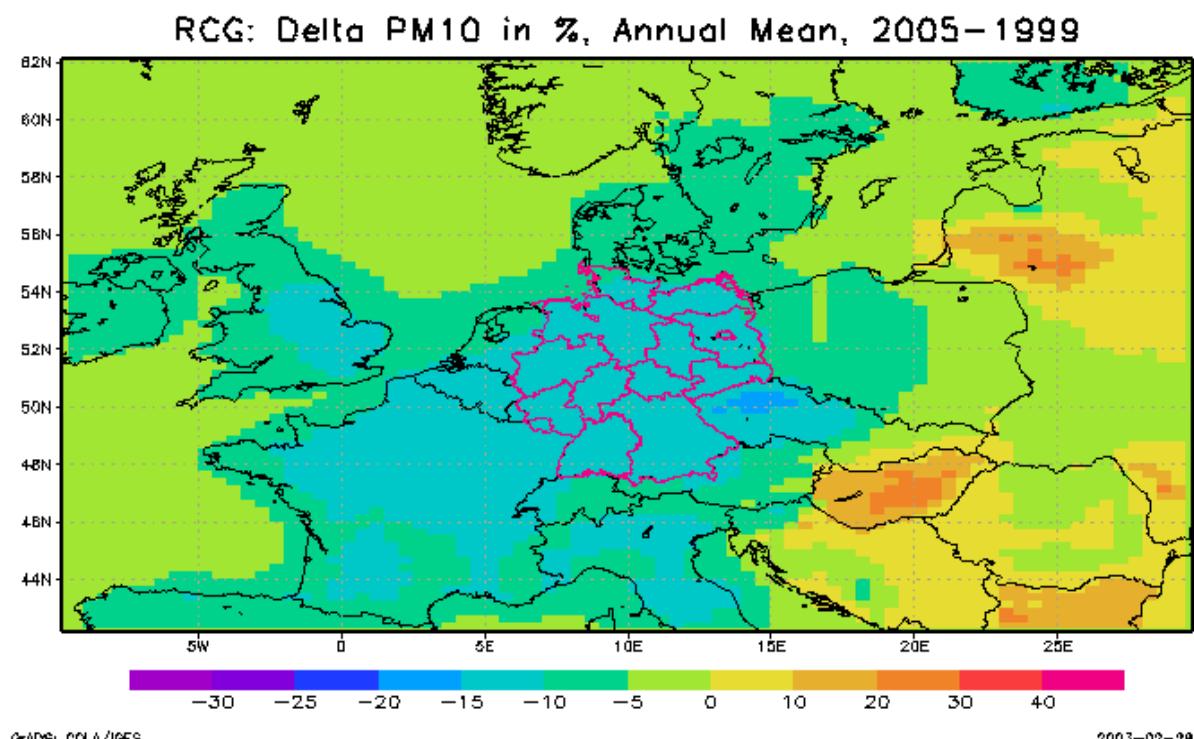
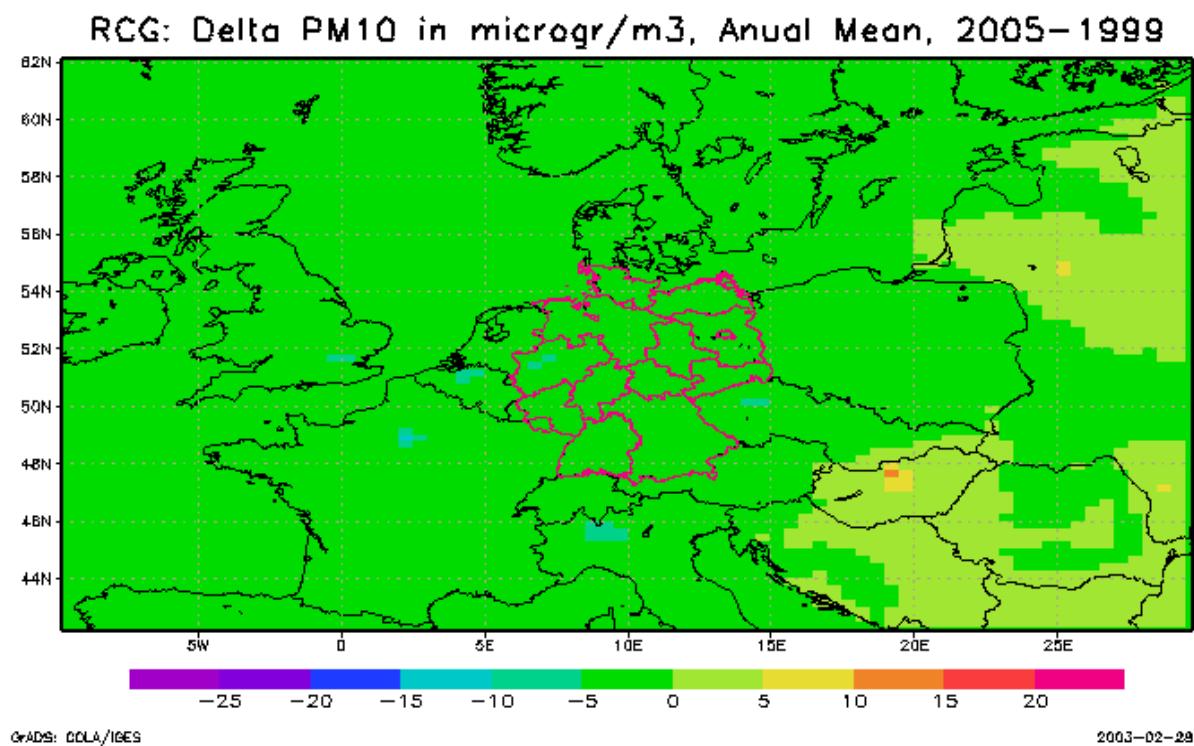


Abbildung 116: Berechnete Änderung der PM10-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 114).

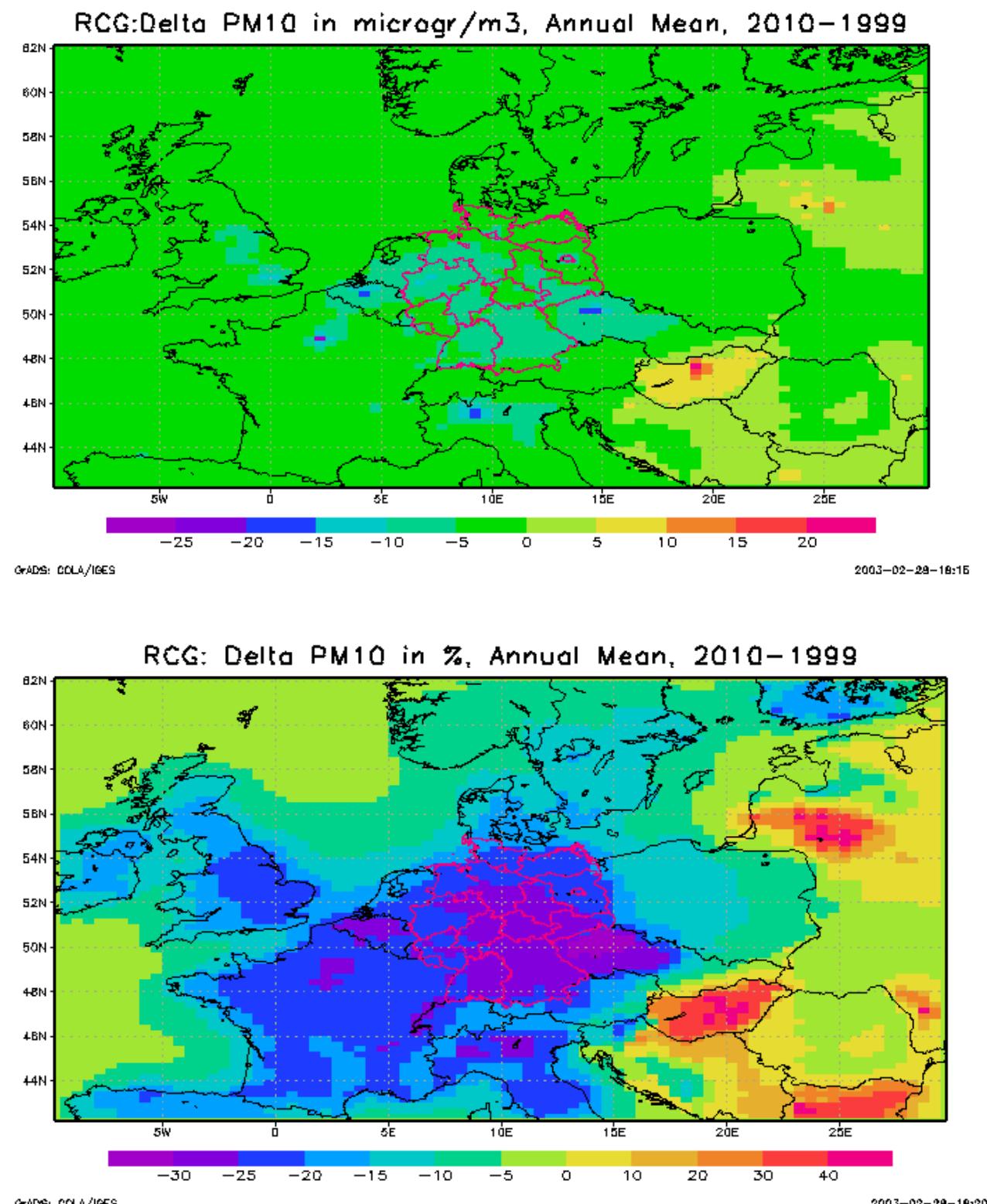


Abbildung 117: Berechnete Änderung der PM10-Jahresmittelkonzentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 114).

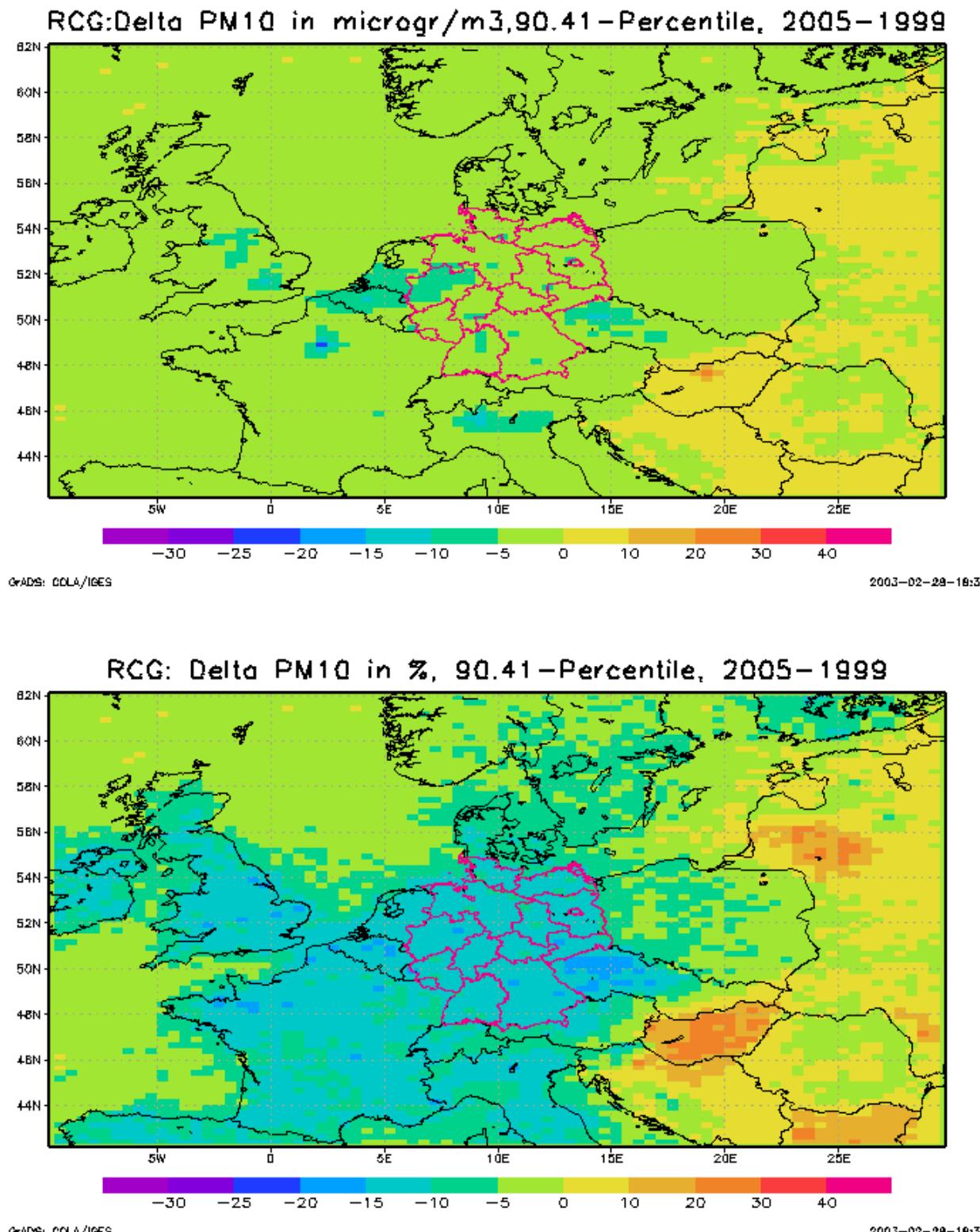


Abbildung 118: Berechnete Änderung des 90.41-Percentils der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2005. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 115).

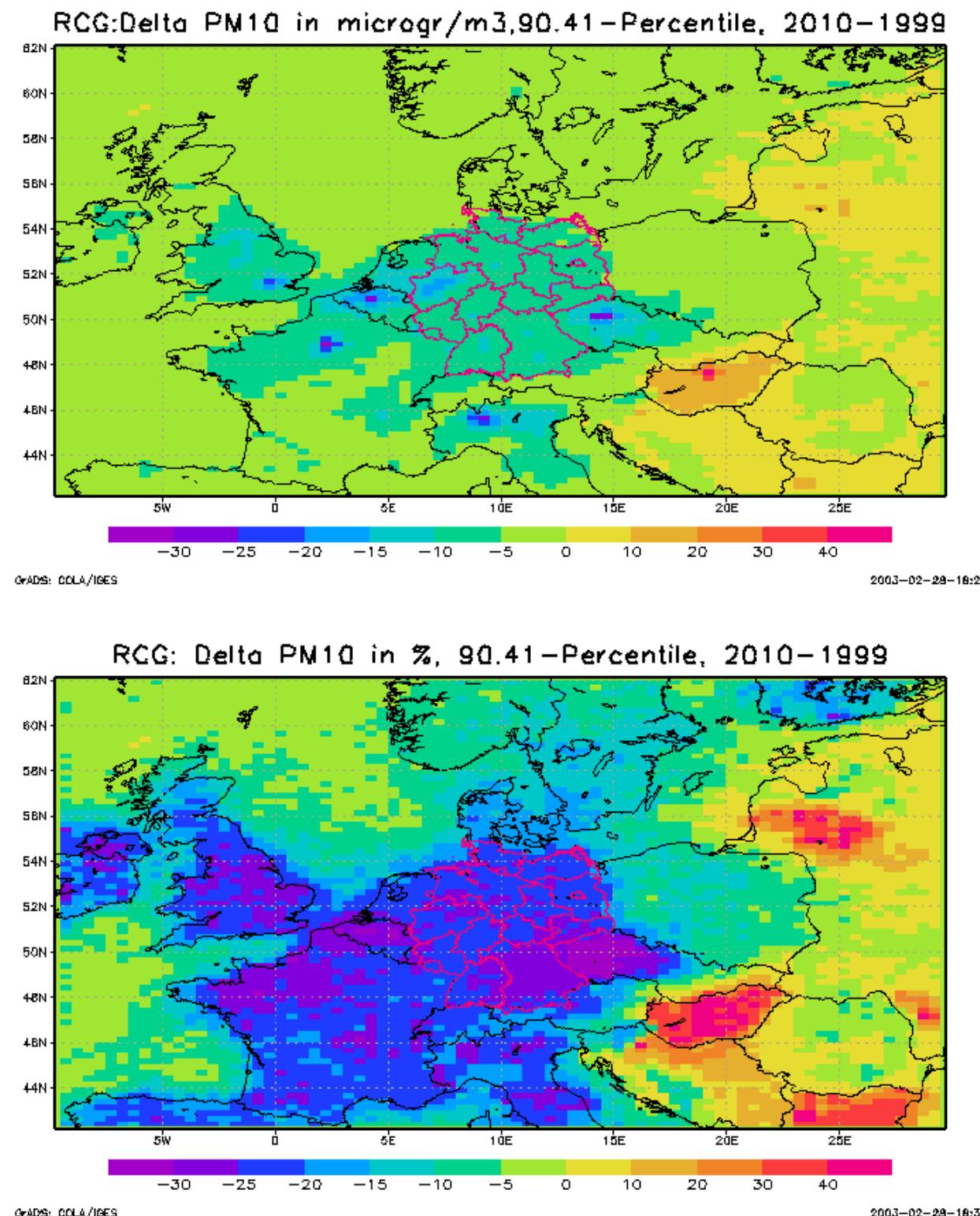


Abbildung 119: Berechnete Änderung des 90.41-Percentils der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (oben) und % (unten) als Folge der europaweiten Emissionsentwicklung bis 2010. Bezugsjahr 1999 (Abbildung 115).

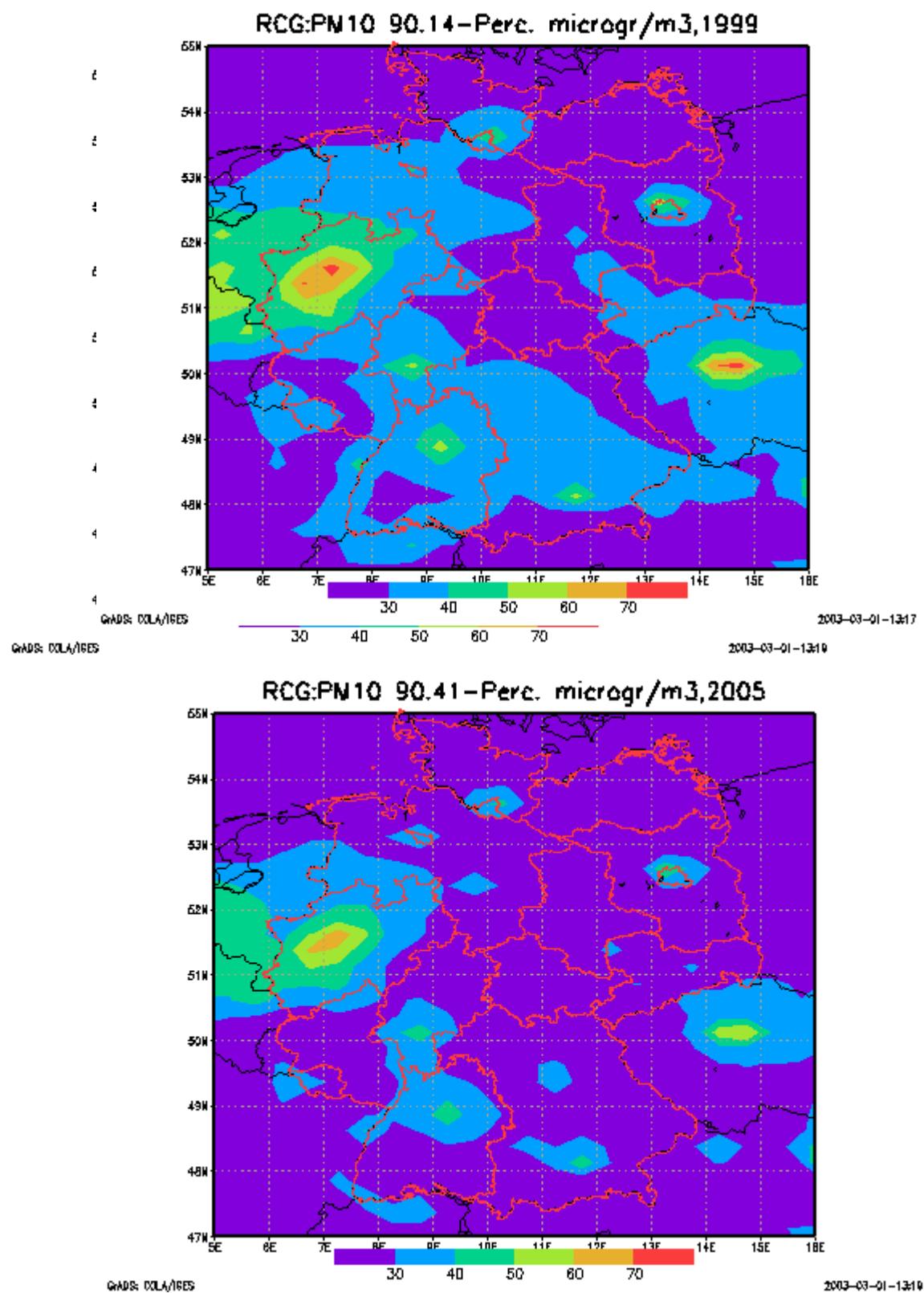


Abbildung 120: Berechnete 90.14-Perzentile der PM10-Tagesmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, Basislauf 1999 (oben) und Jahr 2005 (unten). Deutschlandausschnitt.

6. Klimatische Auswertung von modellierten und beobachteten Zeitreihen

Die klimatische Auswertung von modellierten und beobachteten Zeitreihen und die daraus abgeleitete objektive Klassifikation der Immissionsregime an Messorten, die bereits in Kap. 4.5 verwendet wurde, wird im Detail in Flemming (2003a) beschrieben. In diesem Kapitel wird eine Zusammenfassung dieser Arbeiten gegeben.

Die bodennahe Messung der Immission ist die wichtigste Informationsquelle für die Beurteilung der Luftgüte. Daneben steht die Ausbreitungsrechnung, die die Felder der Immission aufgrund der zugrunde liegenden Gesetzmäßigkeiten unter Verwendung von Emissionsdaten und meteorologischen Daten modelliert. Die Modellierung liefert im Gegensatz zur Beobachtung kontinuierliche Felder, so dass auch Informationen an den Orten ohne Beobachtung bereitgestellt werden können. Zur Evaluierung der Modellrechnungen und für die Anwendung von Techniken der Datenassimilation werden aber gemessene Informationen benötigt.

Der Gegenstand der klimatischen Auswertung sind die deutschlandweiten Felder der bodennahen Spurenstoffimmission von Ozon, NO₂, NO, SO₂ und Feinstaub (PM10, abgeleitet aus TSP). Die gemessenen Immissionswerte stammen aus den operationellen Luftgütemessnetzen der Bundesländer und des UBA, die berechneten Immissionswerte wurden mit dem Eulerschen Chemie-Transport-Modell REM/CALGRID in einer Auflösung von 0.5° Länge und 0.25° Breite erstellt. Das Modell wurde dazu auf den gesamten untersuchten Zeitraum 1995 bis 2001 angewandt.

Es wurde bereits im Kap. 4 gezeigt, dass die Auswahl von Stationen zur Modellevaluierung skalengerecht erfolgen muss. Dazu wird eine objektive Klassifikation des stoffspezifischen Immissionsregimes der Beobachtungsdaten benötigt, die im Rahmen dieses Vorhabens entwickelt wurde. Die dabei bestimmten Klassifikationskriterien wurden auch auf die modellierten Zeitreihen angewendet, so dass auch die Regime der Modellergebnisse angegeben werden können.

Die Regimeklassifikation ist die Basis für eine regimespezifische Klimatologie von Beobachtung und Modellrechnung sowie für die räumlichen Interpolation (Analyse) bzw. der Datenassimilation. Die Regimeklassifikation ist für die Analyse von großer Bedeutung, da mit ihr die unterschiedliche räumliche Repräsentativität der Immissionsmessungen erfassbar wird.

Die Klassifikation erfolgt separat für jede Spezies mit einem hierarchischen Clusterverfahren auf Basis der klimatologischen Parameter der Jahreszeitreihen. Durch Tests der linearen Unabhängigkeit und der Stabilität des Clusterergebnisses werden die Parameter für die Clusterung ausgewählt und skaliert. Die Klassifikation beruht für alle Spezies auf einem Maß für die mittlere Belastung und einem für die Ausprägung des Tagesgangs (normierte Tagesschwankung). Für NO, NO₂, SO₂ und PM10 spielt der Tagesgang eine untergeordnete Rolle, für Ozon ist er jedoch für eine stabile Klassifikation von Bedeutung. Auf Basis der gebildeten Cluster können auch Immissionszeitreihen aus anderen Ländern und von Modellrechnungen klassifiziert werden.

Für Ozon unterscheidet die Klassifikation die Regimes:

- B = Berg
- R = Land
- U1 = Vorstadt
- U2 = Stadt
- U3 = belastete Stadt
- S = Strasse

Für NO_x werden mit Ausnahme der Bergstationen die gleichen Regimetypen und zusätzlich das Regime „Straße extrem“ ermittelt. Die SO₂- und PM10-Immission wird in fünf Regimes mit zunehmender Belastung eingeteilt.

Der Vergleich des Clusterergebnisses für Ozon mit der UBA-Klassifikation nach Enke et al. (1998) ergibt eine gute Übereinstimmung und zusätzlich eine feinere Unterteilung der großen

Gruppe der urbanen Stationen nach der UBA-Klassifikation. Der Vergleich der neuen Klassifikationen für Ozon, NO und NO₂ bestätigt die Plausibilität der gewonnenen Regimes. Die Ozonregimes sind jedoch nur wenig geeignet, die PM10- und SO₂-Regimes und hohe NO-Belastungen differenziert zu beschreiben.

Bei dem Vergleich der Regimes für unterschiedliche Spezies konnten bundesländer spezifische Besonderheiten ermittelt werden. So weisen viele NO-Messungen in Nordrhein/Westfalen zu geringe Werte im Verhältnis zur hohen NO₂- und geringen Ozonimmission auf. In Baden-Württemberg und einigen ostdeutschen Ländern finden sich relativ zu hohe Ozonimmissionen bei hoher NO_x-Immission. In Baden-Württemberg ist das Niveau der PM10-Belastung bei erhöhten NO₂-Immissionen häufig geringer als in anderen Bundesländern.

Die Klassifikationen der Beobachtungen wurden auf die großräumigen Modellrechnungen übertragen, so dass jede modellierte Jahreszeitreihe einem Regime zugeordnet werden kann. Für eine Modellevaluierung ist die Kenntnis solcher Regimes unerlässlich aufgrund der unterschiedlichen Skalen von Beobachtung und Modell und der überproportional hohen Anzahl von Beobachtungen in städtischen und verkehrsnahen Bereichen. Beim Ozon zeigt sich, dass die hier durchgeführte großräumige Modellrechnung im Vergleich zur Messung eine zu starke Gewichtung des urbanen Regimes liefert. Eine mögliche Ursache der zu urbanen Charakteristik der Modellrechnung mag die sofortige Verteilung der NO-Emissionen über das gesamte Volumen einer Gitterbox sein, was zu einer großflächigen Überschätzung des Titrationseffekts in Gebieten mit erhöhter Emissionsdichte führen kann (z.B. dem Ruhrgebiet). Dieser Punkt wurde bereits in Kap. 4 angesprochen. Es sei angemerkt, dass die quantitativen Auswirkungen dieses Effekts eine Funktion der Modellauflösung sind. Damit kann nicht ausgeschlossen werden, dass eine feinere Modellauflösung zu einer Verschiebung der Regimeklassen führt.

Weiterhin wurden die Unterschiede und Übereinstimmungen der regimeorientierten Klimatologie von Beobachtungen und Modelldaten hinsichtlich der mittleren Belastung, der chemischen Kopplung und der Periodizität im Tages-, Wochen-, und Jahresgang sowie der interannuellen Variabilität untersucht: Die Modellergebnisse und die Beobachtungen stimmen in ihrer zeitlichen Variabilität gut überein. Das Modell überschätzt etwas den Tagesgang und Jahresgang und unterschätzt den Wochengang. Die Überschätzung des Tagesgangs, die wahrscheinlich auf die durch die meteorologische Datenbasis vorgegebenen Stabilitätsverhältnisse zurück zu führen ist, wurde bereits in Kap. 4 angesprochen.

Auf die interannuale Variabilität soll an dieser Stelle etwas näher eingegangen werden. In den Modellrechnungen wird eine interannuale Variabilität durch die Variation der meteorologischen und emissionsseitigen Daten hervorgerufen. Die meteorologischen Daten beruhen dabei auf den aktuellen Messungen. Die Variation der Emission erfolgt dagegen mit Hilfe geschätzter Faktoren, mit denen die Basisemissionen 1995 an das zu modellierende Jahr angepasst werden. Diese Methodik ist naturgemäß mit großen Unsicherheiten behaftet. Ein Vergleich der gemessenen mit der berechneten interannuellen Variabilität kann daher eine Einschätzung liefern, wie weit das Modell imstande ist, die gemessene Variabilität zu simulieren.

Die mittleren gemessenen Ozonimmissionen zeigten von 1996 bis 1998 einen Anstieg, der sich in den darauf folgenden Jahren nicht fortsetzte (Abbildung 121). Bei den Berg- und Küstenstationen findet der Anstieg ein Jahr früher statt. Die modellierten Regimes besitzen eine geringere Variabilität als die gemessenen. Hier ist nur das Jahr 1996 mit etwas niedrigeren mittleren Werten in den urbanen Regimes auffällig. Im Gegensatz dazu sind die modellierten mittleren Verhältnisse für die ländlichen und Berg-Stationen im Jahr 1996 und 1999 etwas höher als in den anderen Jahren.

Für NO und NO₂ weisen die Beobachtungen in allen Regimes eine leichte Abnahme der mittleren Belastung ab dem Jahr 1998 auf. Die modellierten Zeitreihen zeigen eine vergleichbare Ten-

denz (Abbildung 122 und Abbildung 123). Die mittlere beobachtete PM10-⁶ und SO₂-Belastung reduziert sich von 1995 bis 2001 in allen Regimes deutlich (Abbildung 124 und Abbildung 125). Auch die modellierten Zeitreihen geben diesen Trend wieder. Er ist jedoch für PM10 deutlich schwächer ausgeprägt; hier zeigt das Jahr 1996 die höchste Belastung. Hier muss angemerkt werden, dass sowohl die PM10-Emissionsdatenbasis 1995 als auch die PM10-Fortschreibungs faktoren mit größeren Unsicherheiten versehen sind als die der anderen Schadstoffe. Die generelle Unterschätzung des gemessenen PM10 wird ebenfalls deutlich. Die beobachtete Abnahme der PM10-Immissionen im Verlauf der Jahre 1995-2001 wird vom Modell zwar unterschätzt, deutet sich aber trotzdem an. Der Trend der SO₂-Immission wird dagegen gut beschrieben. Zu weiteren Details sei auf Flemming (2003a) verwiesen.

In den weiteren geplanten Anwendungen des Modells sollen die gemessenen und berechneten Trends zur Überprüfung der zeitlichen Emissionsskalierungsfaktoren herangezogen werden.

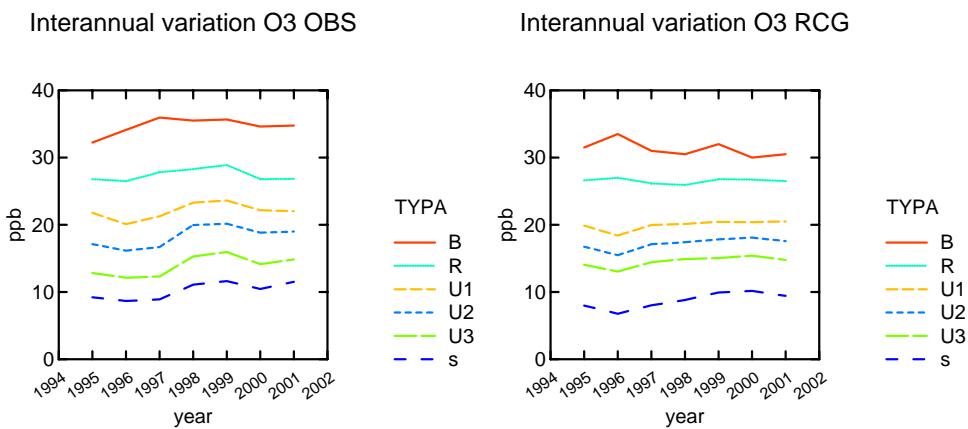


Abbildung 121: Interannuale Variation von Ozon (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes B, R, U1, U2, U3 und S.

⁶ Die Frage inwiefern der Trend von PM10 durch Artefakte der TSP-PM10 Umrechnung modifiziert ist, kann hier nicht beantwortet werden.

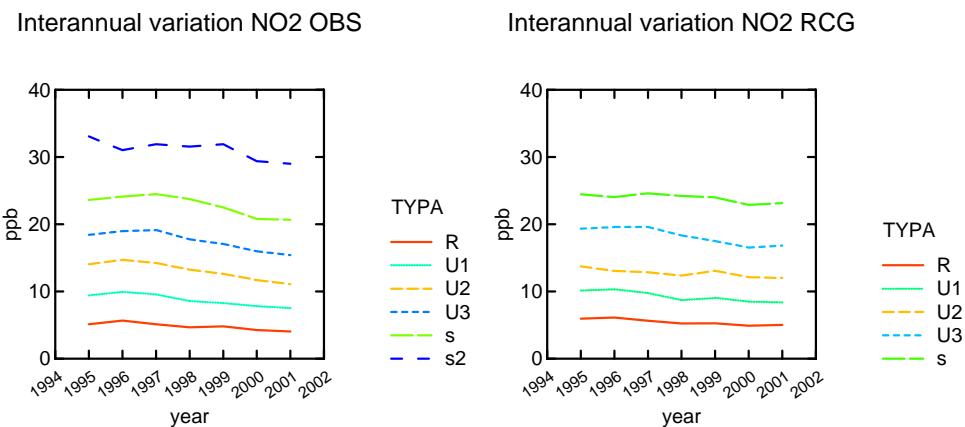


Abbildung 122: Interannuale Variation von NO₂ (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.

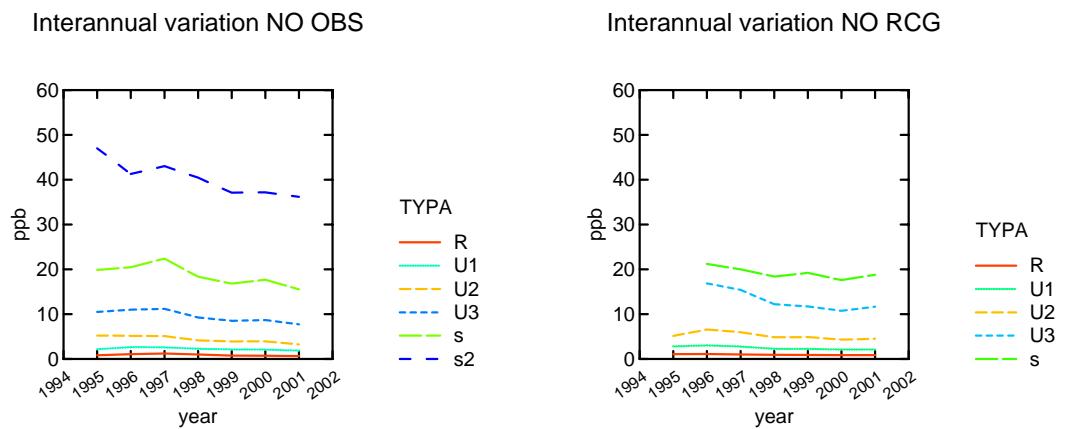


Abbildung 123 Interannuale Variation von NO (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.

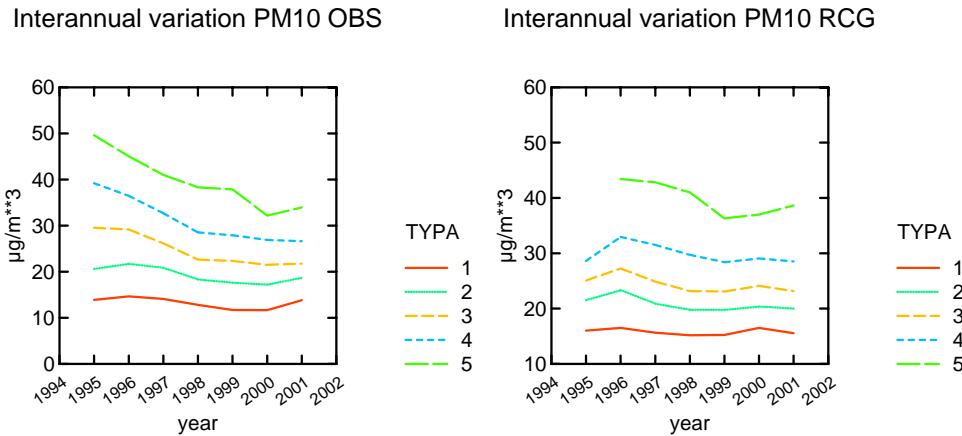


Abbildung 124 Interannuale Variation von PM10 (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.

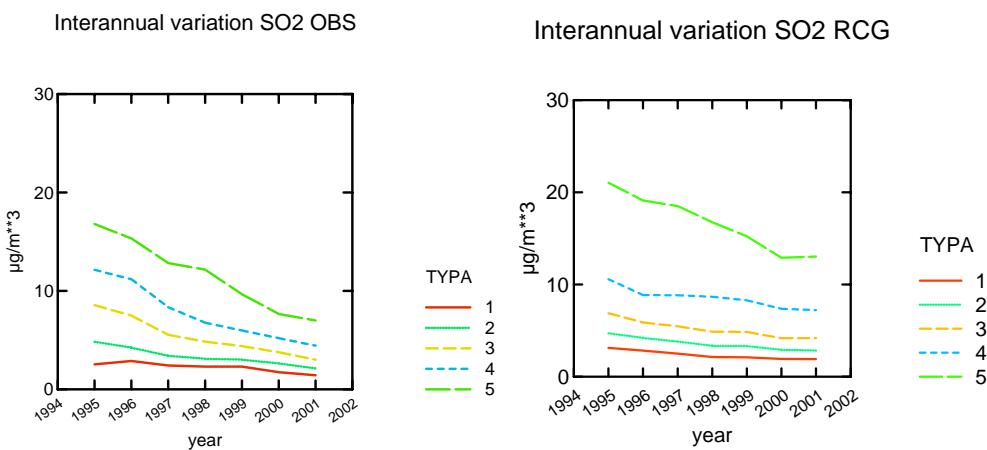


Abbildung 125 Interannuale Variation von SO₂ (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes.

7. Zusammenfassung

7.1. Überblick

Hauptziel des Vorhabens war die Entwicklung eines chemischen Transportmodells, das zur Be-rechnung der langfristigen Schadstoffbelastungen in der europaweiten, der nationalen sowie der regionalen Skala (Ballungsgebiet) geeignet ist. Dieses Modell, genannt REM/CALGRID, soll gleichzeitig den in der EU-Rahmenrichtlinie über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität (EU, Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften, 1996) sowie deren Tochterrichtlinien (EU, 1999, 2000, 2002) definierten Anforderungen an die Ausbreitungs-rechnung genügen.

Das neue Modell entstand aus der Verschmelzung des ursprünglich für die großräumige Skala entwickelten REM3 und des für die urbane Skala entwickelten CALGRID-Modells. Beide Modelle wurden bereits im Rahmen des Aktionsprogramms und Maßnahmenplans Ozon (AMPO) für episodenbezogene Szenariorechnungen eingesetzt (Motz et al., 1997). Alle wissenschaftli-chen Module wurden überarbeitet und auf den Stand des Wissens gebracht. Die Parametrisierun-gen der physikalisch/chemischen Prozesse erfolgte mit Modellierungsansätzen mittlerer Kom-plexität, um die auf Langfristberechnungen abzielende Anwendung des Modells gewährleisten zu können.

Die wesentlichsten Bestandteile des REM/CALGRID-Modellsystems sind:

- Dynamisches oder festes vertikales Koordinatensystem mit einer beliebigen Anzahl von Modellschichten. In der Horizontalen Wahl zwischen einem geographischen oder einem rechtwinkligen Koordinatensystem,
- Ein neues, absolut massenerhaltendes „operator-splitting“-Verfahrens,
- Ein sehr genauer und trotzdem nicht-rechenintensiver neuer Algorithmus für die Horizontaladvektion,
- Überarbeitete Module für die trockene und nasse Deposition,
- Die neuesten Versionen der chemischen Module CBM4 und SAPRC93,
- Behandlung der PM10- und PM2.5-Problematik ,
- Ein Aerosol-Modul zur Bestimmung der sekundären anorganischen Aerosole,
- Module zur Bestimmung der biogenen Emissionen auf der Basis von Biomassen,
- Emissionsmanagementsystem zum einfachen Umsetzen von Emissionsszenarien in die Emissionsdatenbasis,
- Auswerte-Module zur Berechnung der in den EU-Richtlinien zur Luftqualität festgeschriebenen Beurteilungsgrößen.

Weiterhin wurden in dem Vorhaben europaweite Datenbasen in einer Auflösung von 0.25° Breite und 0.5° Länge erstellt. Es handelt sich dabei um:

- Jahresemissionen von NO_x , NMVOC, CO, CH_4 , SO_x , NH_3 , PM10 und PM 2.5 unterteilt nach Verursachergruppen sowie Punkt- und Flächenquellen basierend auf CORINAIR- und EMEP-Informationen mit dem Stand 1995,
- Faktoren zur jährlichen Fortschreibung der Basisemissionen 1995,
- Verursachergruppenspezifische Kohlenwasserstoffprofile,
- Verursachergruppenspezifische Monats-, Tages- und Stundenfaktoren zur Berechnung zeitspezifischer stündlicher Emissionen,

- Emissionsszenarien für die Jahre 2005 und 2010 basierend auf IIASA-Informationen,
- Landnutzungsdatenbasis abgeleitet aus Satelliteninformationen.

Die erste Evaluierung des Modells REM/CALGRID erfolgte für die großräumige Skala durch:

- Anwendung des neuen REM/CALGRID-Systems auf die Jahre 1995, 1997 und 1999 und Vergleich mit Messungen,
- Teilnahme an den internationalen Modellvergleichen im Rahmen von GLOREAM (Schwerpunkt sekundäre anorganische Aerosole) und TOR (Schwerpunkt Ozon),
- Klimatische Auswertung von modellierten und beobachteten Zeitreihen für Ozon, NO₂, NO, SO₂ und PM10 in Deutschland für die Jahre 1995-2001.

Neben der Modellentwicklung und Modellanwendung wurden in dem Vorhaben auch Methoden untersucht, die eine Datenassimilation zur Integration von Messdaten in berechnete Konzentrationsfelder mit unterschiedlicher Komplexität ermöglichen sollen (Flemming 2003b). Ziel dieser Datenassimilation ist die Entwicklung, Anwendung und der Vergleich von Verfahren zur statistischen Analyse von bodennahen berechneten und gemessenen Immissionsfeldern. Zur Einarbeitung gemessener hoher Konzentrationen in berechnete Felder wurden Methoden entwickelt, die auf der Theorie der Optimalen Interpolation (OI) beruhen. Damit sollen Felder von stündlichen Werten von Ozon, NO₂, NO, SO₂ und PM10 für Deutschland bzw. Mitteleuropa erzeugt werden, die zur Beurteilung der Luftqualität nach der EU-Richtlinie 96/62/EG und deren Tochterrichtlinien verwendet werden können. Eine erste Anwendung zur Einschätzung der Luftqualität 1999 auf der Basis von Messungen und Modellrechnungen ist in Stern und Flemming (2001) zu finden.

Weiterhin wurden die gemessenen und berechneten Immissionszeitreihen für die Jahre 1995-2001 untersucht und nach Regimen klassifiziert. Die Klassifikation erfolgte separat für jede Spezies mit einem hierarchischen Clusterverfahren auf Basis der klimatologischen Parameter der Jahreszeitreihen. Die Klassifikation beruht für alle Spezies auf einem Maß für die mittlere Belastung und einem für die Ausprägung des Tagesganges.

Die Anwendung des großräumigen Modellsystems im Rahmen planerischer Fragestellungen erfolgte für zwei Emissionsszenarien:

- Emissionssituation 2005,
- Emissionssituation 2010.

7.2. Modellevaluierung: Vergleich mit Messungen der Jahre 1995, 1997 und 1999

Die Modellevaluierung erfolgte durch Vergleich der Berechnungen mit Messungen an Stationen, die in die drei Kategorien „Land“, „Stadt“ und „verkehrsnah“ eingeteilt sind. Es wurde gezeigt, dass entsprechend der großräumigen Skala der Modellanwendung nur die Stationen vom Typ „Land“ zur Evaluierung verwendet werden können, da der Repräsentativitätsbereich der Stationen „Stadt“ nur bedingt und der der verkehrsnahen Stationen auf keinen Fall der Skala des Modells entspricht. Der in den Jahren 1995, 1997 und 1999 beobachtete Verlauf der täglichen Maximalwerte, Mittelwerte und höchste gleitende 8-Stundenmittelwerte für Ozon wird vom Modell an den zur Evaluierung geeigneten Stationen im Allgemeinen gut nachvollzogen mit einer Tendenz zur Unterschätzung der beobachteten Ozonkonzentrationen im Winter und einer leichten Überschätzung im Sommer.

Auch bei den NO₂-Tagesmittelwerten wird der gemessene Jahresverlauf an den Landstationen mit hohen Werten im Winter und niedrigeren Werten im Sommer vom Modell gut wiedergegeben.

Das gemessene PM10-Grundniveau wird vom Modell an den ländlichen Stationen reproduziert. PM10-Konzentrationsmessungen sind oft gekennzeichnet durch zeitlich und räumlich begrenzte Konzentrationsanstiege ausgehend von einem niedrigen Niveau auf hohe Spitzenwerte gefolgt von einem steilen Konzentrationsabfall zurück auf ein niedrigeres Niveau. Solch ein Konzentrationsverlauf ist ein Hinweis auf einen geringen Repräsentativitätsbereich der Messung, der in der hier verwendeten Modellskala nicht aufgelöst werden kann. Verursacht werden solche Spitzen wahrscheinlich durch Prozesse und Emissionen, die zudem gegenwärtig noch nicht erfasst sind. Einer dieser Prozesse könnte die Aufwirbelung von Staub durch den Wind sein. In städtischen Gebieten wird Staubaufwirbelung hauptsächlich durch den Straßenverkehr und Bautätigkeit verursacht. Auch diese zum Teil zeitabhängigen Quellen werden in den Modellrechnungen wegen der fehlenden Datengrundlage zurzeit noch nicht berücksichtigt.

PM10 wird im Winter zum Teil überschätzt, im Sommer generell unterschätzt. Die Überschätzung im Winter, die zum Teil auch beim NO₂ festzustellen ist, und auch die Unterschätzung des Ozons in dieser Jahreszeit sind möglicherweise auf zu geringen winterlichen Vertikalaustausch zurückzuführen. Auch die leichte Überschätzung der Ozonwerte und die Unterschätzung der PM10-Werte im Sommer können mit dem vertikalen Austausch zusammenhängen, der in diesem Fall zu hoch wäre. Dieses mögliche Problem der meteorologischen Datenbasis muss in zukünftigen Anwendungen näher untersucht werden. Bei der sommerlichen PM10-Unterschätzung muss auch berücksichtigt werden, dass in der gegenwärtigen Modellversion keine organischen Aerosole betrachtet werden, die vor allem im Sommer einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zur Aerosolbelastung liefern können. Außerdem kann man davon ausgehen, dass die von den meteorologischen Bedingungen und vom Bodentyp und Bodenzustand abhängige Staubaufwirbelung im Sommer infolge der turbulenten und trockeneren Bedingungen eine größere Rolle spielt als im Winter. Es sei angemerkt, dass auch in den PM10-Ausbreitungsrechnungen mit dem EU-RAD-Modell für Nordrhein-Westfalen (Friese et al., 2002) die gemessenen Sommerkonzentrationen unterschätzt werden.

In den EU-Tochterrichtlinien werden für die Modellrechnung Datenqualitätsziele festgelegt, die über folgende Unsicherheitsbereiche definiert sind:

- Stundenmittelwerte: 50 bis 60%
- Tagesmittelwerte: 50% (für PM10 noch nicht festgelegt)
- Jahresmittelwerte: 30% (für PM10 50%)

Die Unsicherheit von Modellrechnungen ist definiert als die größte Abweichung zwischen den gemessenen und den berechneten Konzentrationswerten während der für die Berechnung des jeweiligen Schwellenwerts festgelegten Zeitspanne, ohne dass die zeitliche Abfolge der Ereignisse berücksichtigt wird. Nähere Ausführungen werden nicht gemacht, insbesondere gibt es keine Kriterien zur Auswahl der Stationen, die zur Bestimmung der Qualitätssicherung herangezogen werden sollen. Es bleibt auch offen, ob alle Messwerte, also auch die sehr niedrigen, in die Berechnung der relativen Abweichungen einbezogen werden müssen.

Da aus den Tochterrichtlinien nicht eindeutig abgeleitet werden kann, wie die Nichtberücksichtigung der zeitlichen Abfolge der Ereignisse in der Praxis umgesetzt werden soll, wurden in diesem Bericht vorerst nur Unsicherheitsbereiche für die Modellergebnisse unter Berücksichtigung der zeitlichen Abfolge erstellt. Die Tabelle 25 zeigt dazu die Zusammenfassung dieser Auswertung für die Tagesmittelwerte an den Stationen des Typs „Land“ für die drei betrachteten Jahre. Bei keinem Stoff liegen alle berechneten Tageswerte innerhalb des vorgegebenen Unsicherheitsbereichs von 50%. Allerdings kann davon ausgegangen werden, dass die

Übereinstimmung zwischen Messung und Rechnung ansteigt, falls die zeitliche Abfolge von Messung und Rechnung nicht mehr berücksichtigt wird oder wenn man die sehr niedrigen gemessenen Tageswerte, bei denen auch eine geringe absolute Abweichung zwischen Messwert und Rechenwert zu einem großen relativen Fehler führt, nicht in der Auswertung mitführt. Es wird auch deutlich, dass die Bewertung der Modellgüte von der Auswahl der Stationen abhängt, die für den Vergleich herangezogen werden: Die Modellgüte steigt für Ozon, wenn man die Stationsauswahl mit Hilfe des in diesem Vorhaben entwickelten objektiven Klassifizierungsschemas vornimmt. Dieses Schema versucht, die unterschiedliche räumliche Repräsentativität der Immissionsstandorte zu erfassen und ermöglicht damit, eine der Modellskala angemessene Stationsauswahl zu treffen (Flemming, 2003a). Weitergehende Aussagen zur Qualitätssicherung der Modellrechnung können erst gemacht werden, wenn Richtlinien vorliegen, in denen die Vorgehensweise zur Umsetzung der Qualitätssicherung der Modellrechnung festgelegt ist.

Ländliche Stationen					
Tageswerte	O3-Max	O3-M8M	O3-Mean	NO2-Mean	PM10-Mean
1995	86	83	77	53	56
1997	87	84	75	53	51
1999 alt	83	88	80	55	59
1999 neu	93	91	85	-	-

Tabelle 25: Anteil (in %) der berechneten Tageswerte, die innerhalb eines Bereiches von +/- 50% um die gemessenen Tageswerte der Stationen vom Typ „Land“ liegen. Ozon: Maximum (O3-Max), Tagesmittelwert (O3-Mean), höchster täglicher gleitender 8-Stundenmittelwert (O3-M8M); NO₂ und PM10 Tagesmittelwerte. 1999 alt: Auswahl der ländlichen Stationen nach der alten UBA-Klassifizierung. 1999 neu: Auswahl der ländlichen Stationen nach der neuen Cluster-Klassifizierung (siehe Kap.6). Alle Messwerte sind berücksichtigt. Auswertung in zeitlicher Abfolge von Messung und Rechnung.

7.3. Modellevaluierung: Internationale Modellvergleiche im Rahmen von GLOREAM und TOR

Die Evaluierung des Aerosolmoduls erfolgte im Rahmen des GLOREAM-Aerosol-Vergleichs für das Sommerhalbjahr 1995. An diesem speziell auf die sekundären anorganischen Aerosole ausgerichteten Modellvergleich nahmen neben REM/CALGRID noch 6 weitere Eulersche Modelle unterschiedlichster Komplexität teil. Der Vergleich der berechneten Aerosolkomponenten mit den entsprechenden Messungen des EMEP-Messnetzes zeigte, dass die Prognosequalität des REM/CALGRID vergleichbar mit der der anderen, zum Teil deutlich komplexeren Modelle ist. Die Modellgüte wird damit nicht allein durch die Komplexität der einzelnen Modellierungsansätze bestimmt. Entscheidend sind das Zusammenspiel aller Modellkomponenten und die Qualität der Eingangsdaten.

Das REM/CALGRID-Modell wurde im Rahmen des Vorhabens auch für die TOR-Untersuchung zu beobachteten und berechneten Ozontrends eingesetzt, in dem 10 großräumige chemische Transportmodelle auf das Jahr 1997 angewandt wurden. Wie schon im GLOREAM-Aerosol-Vergleich benutzten alle Modelle ihre eigenen Datenbasen, d.h. es erfolgte keine Harmonisierung der meteorologischen Daten oder der Emissionsdaten.

Die berechneten täglichen Ozonmaxima der Sommermonate (Mai bis August) und die Ozon-Tagesmittelwerte der Wintermonate (November bis Februar) wurden mit den entsprechenden beobachteten Größen an 40 Stationen des EMEP-Messnetzes verglichen. Die Prognosefähigkeiten des REM/CALGRID-Modells entsprechen auch beim Ozon und den Stickoxiden der derzeitig erreichbaren Modellqualität. Insgesamt zeigte auch der TOR-Vergleich, dass ein Modell mittlerer Komplexität wie das REM/CALGRID in der Prognosegüte gleichwertig mit anderen, zum Teil deutlich komplexeren Modellen, eingestuft werden kann.

7.4. Prognose der Luftqualität 2005 und 2010 auf der Basis von Emissionsszenarien

Im Rahmen dieses Vorhabens wurden die Auswirkungen von zwei Emissionsszenarien auf die Luftqualität berechnet:

- Emissionsprognose 2005
- Emissionsprognose 2010, CLE-Szenario von IIASA

Das CLE-Szenario basiert auf der sog. „Current Legislation“ und den NEC-Werten („National Emission Ceilings“) der EU. Für das Jahr 2005 liegen keine konkreten Emissionsabschätzungen von IIASA vor. Nach Aussage von IIASA kann aber zwischen 1995 und 2010 von einer annähernd linearen Emissionsentwicklung ausgegangen werden.

Als Basisjahr wurde das Jahr 1999 gewählt, da dieses Jahr auch das Ausgangsjahr für alle Modellrechnungen im Rahmen des City-Delta-Projekts ist⁷. Die Szenariorechnungen beruhen auf den in Stern (2003) zusammengestellten europaweiten Emissionsänderungen. Für Deutschland ergeben sich basierend auf der IIASA-Information bezogen auf die Emissionen von 1995 für die beiden berechneten Szenarien die in der folgenden Tabelle zusammengestellten Minderungsraten. Die europaweiten Änderungen pro Verursachergruppe und Land sind in Stern (2003) zusammengestellt.

Deutschland Änderung bezogen auf 1995	2005	2010, CLE
Stickoxide	-23%	-45%
Kohlenwasserstoffe	-27%	-59%
Schwefeldioxid	-36%	-72%
Ammoniak	-8%	-17%
PM2.5	-22%	-44%
PM10 - PM2.5	-23%	-47%

Zielwerte Ozon

In der EU-Ozontochterrichtlinie ist als Zielwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit ein Konzentrationswert von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für den höchsten täglichen 8-Stundenmittelwert festgeschrieben, der an nicht mehr als 25 Tagen überschritten werden darf. Im Basislauf 1999 werden die 25 erlaubten Tage mit Überschreitungen in weiten Teilen des westlichen Europas überschritten. In Deutschland werden insbesondere in der Südhälfte viele Überschreitungstage berechnet.

⁷ siehe <http://rea.ei.jrc.it/netshare/thunis/citydelta/>

Die Anzahl der Tage mit Überschreitungen des Zielwerts von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für den höchsten täglichen 8-Stunden-Ozonomittelwert nehmen im Szenario 2005 in Deutschland im Vergleich zum Basisjahr 1999 zwar stark ab, vor allem im süddeutschen Raum muss aber weiterhin noch mit Überschreitungen des Zielwerts an mehr als 25 Tagen im Jahr gerechnet werden. Auch im Jahre 2010 muss nach den Berechnungen davon ausgegangen werden, dass es in Deutschland immer noch zu Überschreitungen der 25-Tagemarke kommen wird, auch wenn diese Überschreitungen nur noch vereinzelt auftreten werden.

Als Zielwert für den Schutz der Vegetation ist in der EU-Ozontochterrichtlinie festgeschrieben, dass der AOT40-Wert, berechnet von Mai bis Juli aus den 1-Stunden-Mittelwerten zwischen 8 und 20 Uhr MEZ, nicht höher als $18000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$ sein darf. Dieser Grenzwert wird im Basislauf 1999 vor allem im süddeutschen Raum überschritten.

Auch bei den AOT40-Werten für den Schutz der Vegetation gehen die Überschreitungen des Grenzwerts bis 2005 stark zurück. Für die Emissionsbedingungen 2010 werden auf der Basis der meteorologischen Bedingungen des Jahres 1999 kaum noch Überschreitungen berechnet. Es muss aber davon ausgegangen werden, dass es in bergigen Regionen weiterhin zu Überschreitungen kommen wird.

Die Ozon-Langfristzielwerte⁸ für den Schutz der menschlichen Gesundheit und den Schutz der Vegetation werden nach den Modellrechnungen bis zum Jahre 2010 auf keinen Fall erreicht werden.

Informationswerte Ozon

Der AOT40-Informationswert für Wälder, $20000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$, wird nach den Berechnungen für 1999 nahezu überall in Deutschland überschritten. Dieser Wert wird auch im Jahre 2005 noch in großen Teilen Deutschlands überschritten werden. Erst für 2010 kann man von einer deutlichen Abnahme der Fläche mit Überschreitungen ausgehen, wobei aber vor allem in Süddeutschland weiterhin mit Überschreitungen des Werts von $20000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zu rechnen ist.

Die Ozonjahresmittelwerte werden nach den Berechnungen eher zu- als abnehmen, wobei die Zunahmen hauptsächlich auf Ozonzunahmen im Winterhalbjahr zurück zu führen sind. Damit wird der zum Schutz von Werkstoffen definierte Informationswert von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$, der schon im Basisjahr 1999 großflächig überschritten wird, auch weiterhin nicht einhaltbar sein.

Die Ozonspitzenwerte werden dagegen auch in Zukunft weiter abnehmen. Nach den Berechnungen sind bis 2005 in Deutschland Abnahmen im Bereich von 5 bis $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ oder bis zu 10%, bezogen auf das Basisjahr 1999, zu erwarten. Bis zum Jahr 2010 kann man von Abnahmen zwischen 20 und $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ oder 10 bis 20% ausgehen.

Immissionsgrenzwerte NO₂

Der 1-Stunden-Grenzwert zum Schutz der menschlichen Gesundheit vor NO₂-Einwirkungen beträgt $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei 18 zugelassenen Überschreitungen im Kalenderjahr. Der Immissionsgrenzwert für das Jahresmittel beträgt $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

⁸ Höchster 8-Stundenmittelwert während eines Kalenderjahres, berechnet aus den stündlich gleitenden 8-Std.-Mittelwerten, darf $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht überschreiten. AOT40, berechnet aus den 1-Stundenwerten von Mai bis Juli, 8-20 Uhr, darf $6000 \mu\text{g}/\text{m}^3 \text{ h}$ nicht überschreiten.

Nach den Berechnungen wird der Grenzwert im Jahre 1999 in Teilen des Ruhrgebiets überschritten. In der Realität wurden im Jahre 1999 Grenzwertüberschreitungen aber an einer Vielzahl von Stadtstationen gemessen, deren Repräsentativitätsbereich von der Modellskala nicht dargestellt werden kann. Da die berechneten absoluten NO₂-Konzentrationsabnahmen als Folge von Emissionsminderungen mit zunehmender Ausgangskonzentration ebenfalls annähernd linear zunehmen, können die vom Modell berechneten relativen Konzentrationsänderungen in erster Näherung auch auf Konzentrationsbereiche übertragen werden, die von der Modellskala nicht erfasst werden. Nach den Berechnungen ist für Deutschland bis zum Jahre 2005 mit einer Abnahme der NO₂-Jahresmittelwerte um 2 bis 7 µg/m³, oder bezogen auf 1999 um 10% bis 25% zu rechnen. Bis zum Jahre 2010 werden in Deutschland Abnahmen zwischen 7 und 15 µg/m³, oder 30% bis 50%, berechnet. Die höchsten gemessenen NO₂-Jahresmittel 1999 überschritten an einigen verkehrsnahen Stationen 60 µg/m³ (Stern und Flemming, 2001). Setzt man die mit dem Modell berechneten relativen Abnahmen an, so ist auch im Jahre 2005 noch mit Überschreitungen des Jahresschwergrenzwerts zu rechnen. Für 2010 kann aber davon ausgegangen werden, dass der Grenzwert von 40 µg/m³ an der überwiegenden Zahl der Stationen eingehalten wird.

Nach den Berechnungen für 1999 wird der 1-Stundengrenzwert in Deutschland nicht überschritten. Aber auch hier gilt, dass die sogenannten „hot spots“, d.h. die Gebiete mit lokal hohen Konzentrationen, in der hier verwendeten Modellskala nicht dargestellt werden können. Die Auswertung der Messungen in Deutschland für 1999 zeigte aber, dass der 1-Stundengrenzwert von 200 µg/m³ nur an einer verkehrsnahen Station mehr als 18mal überschritten wird (Stern und Flemming, 2001). Die berechneten Abnahmen des 99.79-Perzentils der NO₂-Stundenwerte, das die Konzentration angibt, die in der Summenhäufigkeitsverteilung mehr als 18 mal überschritten wird, reichen für die Emissionssituation 2005 in Deutschland bis zu 25%. Im Jahre 2010 sind nach den Rechnungen Abnahmen bis in den Bereich von 50% erreichbar. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass der 1-Stundengrenzwert unter normalen meteorologischen Bedingungen im Jahre 2010 eingehalten wird. Bei extremen Witterungsbedingungen, wie sie z.B. im Januar 1997 in Teilen Deutschlands vorlagen, kann aber nicht völlig ausgeschlossen werden, dass es in Ballungsgebieten weiterhin zu Überschreitungen des 1-Stundengrenzwerts kommen wird.

Immissionsgrenzwerte PM10

Für den Schutz der menschlichen Gesundheit beträgt der ab 1. Januar 2005 einzuhaltende über 24 Stunden gemittelte PM10-Grenzwert 50 µg/m³. Dieser Wert darf an 35 Tagen im Jahr überschritten werden. Der Grenzwert für das Jahressmittel beträgt 40 µg/m³.

In Deutschland kommt es nach den Berechnungen in Teilbereichen des Ruhrgebiets zu Überschreitungen des Jahresschwergrenzwerts. Im Jahre 1999 wurden in der Realität PM10-Jahresmittelwerte größer 40 µg/m³ in mehreren Städten Deutschlands gemessen (Stern und Flemming, 2001). Diese lokal hohen Konzentrationen werden wie schon die hohen gemessenen NO₂-Konzentrationen in der großräumigen Modellskala nicht erfasst.

Nach den Berechnungen ist für Deutschland bis zum Jahre 2005 mit einer Abnahme der PM10-Jahresmittelwerte in den ländlichen Regionen zwischen 2 und 3 µg/m³, in den Ballungsgebieten bis zu 5 µg/m³, oder bezogen auf 1999 um 10% bis 15% zu rechnen. Für das Emissionsszenario 2010 ergeben sich in Deutschland Abnahmen zwischen 4 µg/m³ in den ländlichen Gebieten und 12 µg/m³ in den Stadtgebieten, was relativen Abnahmen zwischen 20% und 30% entspricht. Bezogen auf die Emissionsänderungen des anthropogenem emittierten Feinstaubes sind die PM10-Konzentrationsabnahmen unterproportional, da PM10 außerhalb der Ballungsgebiete circa zur Hälfte aus in der Atmosphäre gebildeten Sekundäraerosolen besteht. In den Ballungsgebieten überwiegt der Anteil des primär emittierten PM10 und demzufolge sind die dort erreichbaren Abnahmen des gesamten PM10 infolge der Minderung der Primäremissionen auch größer als in den ländlichen Gebieten. Die Übertragung der relativen Abnahmen auf die Messung ist im Falle des

PM10 nicht direkt möglich, da ein Teil der PM10-Quellen in der Modellrechnung nicht erfasst wird. Da Quellen wie Staubaufwirbelung auch kaum kontrollierbar sind, dürften die berechneten relativen PM10-Abnahmen am oberen Rand des erreichbaren liegen. Überträgt man die absoluten Abnahmen auf die Messungen, so muss zumindestens bis zum Jahre 2005 an verkehrsnahen Stationen mit Überschreitungen des Jahresgrenzwerts gerechnet werden. Im Großteil Deutschlands wird der Grenzwert jedoch eingehalten werden.

Der PM10-Tagesmittelgrenzwert wird in vielen Ballungsgebieten Deutschlands an mehr als 35 Tagen überschritten. Das 90.41-Perzentils der PM10-Tagesmittelwerte, das die Konzentrationsgrenze angibt, die in der Summenhäufigkeitsverteilung mehr als 35 mal überschritten wird, nimmt nach den Berechnungen bis zum Jahre 2005 in Deutschland zwischen circa $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den Landgebieten und $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den Gebieten mit höherer Emissionsdichte ab. Dies entspricht bezogen auf das Jahr 1999 relativen Abnahmen von 8% bis 16%. Im Jahre 2010 sind nach den Rechnungen in Deutschland Abnahmen im Bereich von 5 bis $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ oder 20% bis 30% erreichbar. Damit wird dieses Perzentil nach den Berechnungen bis zum Jahre 2005 nicht überall in Deutschland unter den Grenzwert von $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sinken, d.h. es ist mit mehr als 35 Überschreitungstagen zu rechnen. Da das Modell die gemessene Anzahl von Überschreitungen an den Stadtstationen, wo die höchste Anzahl von Überschreitungen auftritt, unterschätzt, kann mit hoher Sicherheit festgestellt werden, dass die erlaubte Anzahl der Überschreitungen des PM10-Grenzwerts für die Tagesmittelwerte bis zum Jahre 2005 zumindestens in den Gebieten mit hoher Emissionsdichte nicht eingehalten werden kann.

7.5. Ausblick

Das in diesem Bericht vorgestellte Modell ermöglicht es, die in den EU-Richtlinien definierten Luftqualitätsparameter zu berechnen. Dies wurde in einer Anwendung in der großräumigen Skala demonstriert. Die Anwendung des Modellsystems auf den Ballungsraum Berlin erfolgt im Rahmen des FE-Vorhabens 299 43 246 „Entwicklung eines Beurteilungssystems für das Zusammenspiel von Messung und Modellrechnung für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien“. In dieses Vorhaben ist auch die Kalman-Filter-Anwendung eingebettet, deren theoretisches Gerüst in Flemming (2000b) beschrieben wird.

Die skalengerechte Kartierung der Luftqualität nach den Vorgaben der EU-Luftqualitätsrichtlinie ist die wichtigste Anwendung der Datenassimilation auf der Basis der Optimalen Interpolation. Die theoretischen Grundlagen dieses Verfahrens sind ebenfalls in Flemming (2003b) beschrieben. Eine erste Anwendung der OI zur Bewertung der Luftqualität 1999 kann in Stern und Flemming (2001) gefunden werden. Die Darstellung des operationellen Einsatzes dieses Verfahrens anhand der Anwendung für das Jahr 2001 ist Inhalt eines gesonderten Berichtes, der im Rahmen des FE-Vorhabens 201 43 250 „Anwendung modellgestützter Beurteilungssysteme für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien“ erstellt werden wird.

Entwicklungsarbeit besteht bei dem Transportmodell REM/CALGRID noch in Bezug auf die emissions- und immissionsseitige Modellierung der Aerosolkomponenten. REM/CALGRID enthält gegenwärtig ein Aerosolmodul zur Bestimmung der anorganischen Aerosole Sulfat, Nitrat und Ammonium. Die Anwendung im Rahmen dieses Vorhabens hat gezeigt, dass noch weiterer Entwicklungsbedarf besteht. Dies betrifft folgende Punkte:

- Bildung sekundärer organischer Aerosole aus biogenen und anthropogenen Quellen
- Berücksichtigung der Na- und Cl-Aerosole aus Seesalz und anderen Quellen
- Berücksichtigung von aufgewirbelten Staub (Straßenstaub, Staub von natürlichen Böden)

Die oben angeführten Aerosolquellen können einen beträchtlichen Anteil an der gesamt-PM10-Masse stellen und sollten daher in der Ausbreitungsrechnung berücksichtigt werden.

Es ist geplant, zur Erfassung der oben angeführten Emissions-Beiträge Module zu entwickeln und zu implementieren. Dabei ist darauf zu achten, dass das Modell seinen operativen Charakter behält. In der praktischen Anwendung bedeutet dies, dass die physikalisch-chemischen Parameterisierungen so gewählt werden müssen, dass einerseits eine dem Problem angemessene Darstellung der relevanten Prozesse gewährleistet ist und andererseits der Rechenzeitbedarf des Modells weiterhin eine Anwendung auf Zeiträume von einem oder mehreren Jahren erlaubt.

Das an der FUB entwickelte meteorologische Datensystem, das für die Modellrechnungen mit REM/CALGRID eingesetzt wird, muss insbesondere hinsichtlich der Grenzschichtparametrisierung überarbeitet werden, da die bisherigen Modellanwendungen gezeigt haben, dass die winterlichen bzw. sommerlichen vertikalen Stabilitätsbedingungen eine Ursache der jahreszeitlichen Unterschätzung bzw. Überschätzung von Ozon, Stickoxiden und Partikeln sein können.

Die gegenwärtig zur Verfügung stehende Emissionsdatenbasis für die großräumige Anwendung umfasst ganz Europa und beruht auf CORINAIR-Daten mit Basisjahr 1995. Diese Datenbasis sollte auf das Jahr 2000 fortgeschrieben werden. Die PM10-Datenbasis sollte zusätzlich um den Anteil von EC an PM10 erweitert werden, da EC wegen seiner gesundheitsgefährdenden Eigenschaften in der Modellrechnung zukünftig getrennt ausgewiesen werden soll.

Ein wesentlicher Anwendungsbereich des REM/CALGRID-Modells ist die Bereitstellung deutschlandweiter Hintergrundinformationen. Dazu sollte die Möglichkeit geschaffen werden, die Auflösung für Deutschland im Vergleich zu den europaweiten Anwendungen flächenmäßig auf das 4fache zu erhöhen, d. h. auf 0.25° Länge und 0.125° Breite. Dies entspricht einer Gittergröße von circa 16-18 km (Nord-Süd-Richtung) x 14 km (Ost-West-Richtung). Der Einsatz des Modells in dieser Auflösung verlangt dann auch eine dementsprechend aufgelöste Datenbasis.

8. Literaturverzeichnis

- Ackermann, I., Hass, H., Memmesheimer, M., Ebel, A., Binkowski, F., Shankar, U. ,1998.** Modal Aerosol Dynamics Model for Europe: Development and first Application. *Atmos. Environm.* 32, 17, pp. 2981-2999.
- Ackermann, I.J., et al. (1995).** The parametrization of the Sulphate-Nitrate-Ammonia Aérosol System in the Long-Range Transport Model EURAD, *Meteorol. Atmos. Phys.*, 57, 101-114.
- Ackermann, I.J. (1997).** MADE: Entwicklung und Anwendung eines Aérosol-Dynamikmodells für dreidimensionale Chemie-Transport-Simulationen in der Troposphäre, *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Heft 115, Köln.
- Baldocchi, D. (1988).** A multi-layer model for estimating sulphur dioxide deposition to a deciduous oak forest canopy. *Atmos. Environ.*, 22, 869-884.
- Binkowski, F.S. and Shankar, U. (1995).** The Regional Particulate Matter Model, 1. Model description and preliminary results, *J. Geophys. Res.*, 100, D12, 26191-26209.
- Berdowski, J. et al. (1997).** Particulate matter emissions (PM10 and PM2.5) in Europe in 1993. *TKO-report TNO-MEP-R 96/472*.
- Brook, J.R., Zhang, L., Di-Giovanni, F., Padro, J. (1999).** Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of air pollutant dry deposition over North America. Part I: model development. *Atmospheric Environment* 33(1999), 5037-5051.
- Buitjes, P., M. van Loon, M. Schaap, S. Teeuwisse, A. Visschedijk, P. Bloos (2002),** The development of an emission data base over Europe and further contributions of TNO-MEP. *TKO-Report R2002/322. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.*
- Carter, W. (1990).** A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds. *Atm. Env.* 24A, 3
- Carter, W. (1996).** Condensed atmospheric photooxidation mechanisms for isoprene, *Atmos. Environ.* 30 (1996) 4275-4290.
- De Boer, M., de Vente, J., Mücher, C., Nijenhuis, W., Thunnissen, H. (2000).** Land cover monitoring. An approach towards pan European land cover classification and change detection. *Netherlands Remote Sensing Board. NRSP-2 report 00-18*
- Enke, W., Seewöster, J., und Heiermeier, H., (1998).** Erfassung und Beschreibung der Immissions-Meßzeitreihen in Deutschland, Teil I Kategorisierung der Ozonstationen Im Auftrag des Umweltbundesamt FE-Vorhaben 20402841.
- Erisman J. and Van Pul, A. (1994).** Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. *Atmos. Environ.*, 28, 2595-2607, 1994.
- EU (1996).** Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27.9.1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität. *Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften* Nr. L 296/55 vom 21.11. 1996
- EU (1999).** Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22.4.1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft. *Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften* Nr. L 163/41 vom 29.6. 1999.
- EU (2000).** Richtlinie 2000/69/EG des Europäischen Parlaments und des Rats vom 16.11.2000 über Grenzwerte für Benzol und Kohlenmonoxid in der Luft. *Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften* Nr. L 313/12 vom 13.12. 2000.
- EU (2002).** Richtlinie 2002/3/EG des Europäischen Parlaments und des Rats vom 12.2.2002 über den Ozongehalt der Luft. *Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften* Nr. L 67/14 vom 9.3. 2002.

EU (2003). Entscheidung der Kommission vom 16. Januar 2003 über einen Leitfaden für eine vorläufige Referenzmethode für die Probenahme und Messung der PM2.5-Konzentration im Rahmen der richtlinie 1999/30/EG des Rates. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften L 12/31.

Fath, J. (2003). Beschreibung und Benutzeranleitung eines auf GRADS basierenden graphischen Moduls zur Darstellung von Immissionsfeldern. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.

Flemming, J., Reimer, E. und Stern, R. (2000) . The impact of special features of numerically predicted and analysed meteorological data on the results of ozone forecast by a PBL chemical transport model, in ITM Air pollution modelling and its applications XXIII, eds. S. Gryning und E. Batchvarova, NATO CMS, Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York.

Flemming J., Reimer, E., Stern, R. (2001). Data Assimilation for CT-Modelling based on Optimum Interpolation. 25th ITM on Air Pollution Modeling and its Application, September 2001, Brussels, Belgium.

Flemming J. (2003a). Klimatische Auswertung von modellierten und beobachteten Zeitreihen für Ozon, NO₂, NO, SO₂ und PM10 in Deutschland für die Jahre 1995-2001 und deren Charakterisierung nach Immissionsregimes mit einem Clusterverfahren. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.

Flemming, J. (2003b). Anwendung von OI und Kalman-Filtertechniken für Ausbreitungsrechnungen mit dem chemischen Transportmodell REM/CALGRID - Theoretische Grundlagen –. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.

Flemming, J. (2003c). Immissionsfelder aus Beobachtung, Modellierung und deren Kombination. Dissertation am Fachbereich Geowissenschaften der FU Berlin. <http://www.diss.fu-berlin.de/2003/71>

Friese. E. et al. (2002). ANABEL, Ausbreitungsrechnungen für Nordrhein-Westfalen zur Anwendung im Rahmen der Beurteilung der Luftqualität nach EU-Richtlinien. Förderverein des Rheinischen Instituts für Umweltforschung an der Universität zu Köln. Im Auftrag des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen.

Gery, M., Whitten, G., Killus, J. (1989). A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. J. of Geophys. Res. 94, pp. 12925-12956

Gipson, G. and Young, J. (1999). Gas-phase chemistry. Chapter 8 in SCIENCE ALGORITHMS OF THE EPA MODELS-3 COMMUNITY MULTISCALE AIR QUALITY (CMAQ) MODELING SYSTEM Edited by: D. W. BYUN and J. K. S. CHING. Atmospheric Modeling Division National Exposure Research Laboratory U.S. Environmental Protection Agency Research Triangle Park, NC 27711, EPA/600/R-99/030

Guenther, A. B. (1993). Isoprene and monoterpene emission rate variability- model evaluation and sensitivity analysis. J. of Geoph. Res. 98, D7, 12609-12617, July 1993

Guenther, A. B. et al. (1995). A global model of natural VOC emissions. J. of Geoph. Res. 100, D5, 8873-8892.

Guenther, A. B., Zimmermann, P., Wildermuth, M. (1994). Natural volatile organic compound emission rate estimates for U.S. Woodland Landscapes. Atm. Env. 28,6,1197-1210, 1994.

Hass, H., P. Builtjes, D. Simpson and R. Stern (1997). Comparison of model results obtained with several European regional air quality models, Atmos. Environ. 31 (1997) 3259-3279.

Hass, H., van Loon, M., Kessler, C., Matthijssen, J., Sauter, F., Stern, R., Zlatev, R., Langner, J., Fortescu, V., Schaap, M. (2003). Aerosol Modeling: Results and Intercomparison from European Regional-scale Modeling Systems. A contribution to the EUROTRAC-2 subproject GLOREAM. EUROTRAC report 2003.

Hicks, B. B. (1982). In: Critical assessment document on acid deposition, chapter VII dry deposition. ATDL Contribution file 81/24, Atmospheric Turbulence and Diffusion Laboratory, NOAA, Oak Ridge, TN.

Hüglin, C. (2000). Anteil des Strassenverkehrs an den PM10- und PM2.5-Immissionen, Bericht C4 (2000). Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft, Bern, Schweiz.

Kerschbaumer, A. und Reimer, E. (2003). Erstellung der Meteorologischen Eingangsdaten für das REM/CALGRID-Modell: Modellregion Berlin-Brandenburg. Bericht zum UBA-Forschungsvorhaben FE-Vorhaben 299 43 246. Freie Universität Berlin. Institut für Meteorologie.

Köble, R., Löwe, H., Seufert, G. (2001). A tree species distribution map for EU15 forests. Presentation at the COST E21 workshop in Budapest, 26 – 28. 4. 2001, EU Joint Research Centre, Environment Institute, Ispra (Italy).

Koslowsky, D. (1997). Digitale Verarbeitung der am meteorologischen Institut der FU empfangenen Scanning-Radiometer (SR) - Daten der NOAA-Wettersatelliten. Teil IV: Geographische Entzerrung und Darstellung in stereographischer Landkartenprojektion. Beilage zur Berliner Wetterkarte des Instituts für Meteorologie der FU Berlin.

Lenschow, P., H.-J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J.-D. Preuß, and W. Reichenbächer (2001). Some ideas about the sources of PM10 , Atmos. Environ. 35 (2001) S23-S33.

Logan, J. (1998). An analysis of ozonesonde data for the troposphere, recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, J. Geophys. Res. 104, 16, 1998

Motz, G., Hartmann, A., Plinke, E., Stern, R., Scherer, B., Fath, J., Reimer, E., Memmesheimer, M., Tippke, J. , Ebel, A. (1997). Aktionsprogramm und Maßnahmenplan Ozon: Ermittlung und Bewertung der Effekte von lokalen, regionalen und überregionalen Emissionsminderungs-Strategien auf bodennahe Ozonkonzentrationen in hochsommerlichen Episoden mit Hilfe modellgestützter emissions- und immissionsseitiger Wirkungsanalysen. Kurzfassung. Im Auftrag des Umweltbundesamts. www.umweltbundesamt.de/ozon.

Oestreich, A. (2003) und Reimer, E., Bestimmung von Bedeckungsgrad und Wolkentyp aus METEOSAT-Daten. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.

Padro, J. (1993). Seasonal contrasts in modelled and observed dry deposition velocities of O3, SO2 and NO2 over three surfaces. Atmospheric Environment Vol. 27a, No. 6, 807-814

Pierce, T. and Waldruff, P. (1991). PC-BEIS: A personal computer version of the biogenic emissions inventory system. J. Air Waste Manag. Assoc., 41 (7), 937-941, 1991.

Pierce, T. and Novak, J. (1991). Estimation of natural emissions for EPA's regional oxidant model, paper presented at EPA/AWMA International Speciality Conference on Emissions Inventories Issues, EPA , Sept. 9-12, 1991.

Pleijel, H. And Grennfeld, P. (1996). Estimation of yield loss from ozone-the problem of the height gradient above a field crop. In: Proceedings of EMEP Workshop on the Control of Photochemical Oxidants over Europe. Federal Office of Environment, Forests and Landscape (FOEFL), Berne 1996.

Pleim, J., Venkatram, A., Yamartino, R. (1984). The dry deposition model. Vol.4 ADOM/TADAP Model Development Program. Ontario Ministry of the Environment

Reimer, E. and B. Scherer (1992). An operational meteorological diagnostic system for regional air pollution analysis and long-term modelling, Air Poll. Modelling and its Applications IX (1992). Plenum Press.

Roemer, M., Beekmann, M., Bergström, R., Boersen, G., Feldmann, H., Flatøy, F., Honore, C., Langner, J., Jonson, J., Matthijsen, J., Memmesheimer, J., Simpson, D., Smeets, P., Solberg, S., Stern, R., Stevenson, D., Zandveld, P. ,Zlatev, Z. (2003). Ozone trends according to ten dispersion models. A contribution to the EUROTRAC-2 subproject TOR. EUROTRAC report 2003.

- Schaap, M. (2000).** Aerosols in Lotos, TNO-Report R 2000/405 (2000).
- Sehmel, G. (1980).** Particle and gas deposition, a review. *Atmos. Environ.*, 18, 1815-1827.
- Simpson, D., A. Guenther, C.N. Hewitt, R. Steinbrecher (1995).** Biogenic emissions in Europe 1. estimates and uncertainties, *Journal of Geophysical Research*, vol. 100, No. D11, pp. 22,875-22,890, 1995.
- Simpson et al. (1999).** Inventorying emissions from nature in Europe. *of Geophysical Research*, vol. 104, No. D7, pp. 8113-8152, 1999.
- Stern, R. (1994).** Entwicklung und Anwendung eines dreidimensionalen photochemischen Ausbreitungsmodells mit verschiedenen chemischen Mechanismen, *Meteorologische Abhandlungen Serie A* Band 8, Heft 1 (1994). Verlag von Dietrich Reimer, Berlin.
- Stern, R. und Builtjes, P. (1998).** Anwendung des photochemischen Ausbreitungsmodells REM3 zur Bestimmung von Jahresmittelwerten und AOT40-Werten von Ozon. Freie Universität Berlin, Institut für Meteorologie. Abschlußbericht zum FE-Vorhaben Nr. 20402846 „Bewertung der Effekte von (kurz- und langfristigen) Immissionsminderungsstrategien auf das Ozonkonzentrationsniveau (Modellgestützte emissions- und immissionsseitige Wirkungsanalysen). Im Auftrag des Umweltbundesamts
- Stern, R. and R.J. Yamartino (2001).** Development and first evaluation of Micro-CALGRID: A 3-d urban-canopy-scale photochemical model, *Atmos. Environ.*, 35 (2001), S149-S165.
- Stern, R. and R. J. Yamartino (2001).** Dispersion Modelling within the European Community's Air Quality Framework Directive: Long Term Modelling of PM10, Fifth GLOREAM Workshop, Wengen, Switzerland, Sept. 24-26. (2001)
http://people.web.psi.ch/keller_j/GLOREAM/WS2001/WS01_frameset_proceedings.html
- Stern, Rainer und Flemming, J. (2001)** Vorläufige Einschätzung der Luftqualität 1999 in Deutschland auf der Basis von Messungen und Modellrechnungen, Ergänzung der Ausgangsbeurteilung der Luftqualität 1999 nach Richtlinie 96/62/EG, Artikel, Zwischenbericht zum UBA-Forschungsvorhaben FE-Vorhaben 299 43 246.
- Stern, R. and R.J. Yamartino (2002).** Development and first results of a new photochemical model for simulating ozone and PM-10 over extended periods. 25th Conference on Agricultural and Forest Meteorology, 20-24 May 2002 in Norfolk, VA
- Stern, R. (2003)** Erstellung einer europaweiten Emissionsdatenbasis mit Bezugsjahr 1995 und die Erarbeitung von Emissionsszenarien für die großräumigen Ausbreitungsrechnungen mit REM/CALGRID. Abschlußbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.
- Veldt, C. (1989).** Leaf biomass data for the estimation of biogenic VOC emissions. MT-TNO report 88, Netherlands.
- Veldt, C. (1991).** The use of biogenic VOC measurements in emissions inventories. MT-TNO report 91, Netherlands.
- Visser, H., E. Buringh, and P.B. Breugel (2001).** Composition and Origin of Airborne Particulate Matter in the Netherlands, RIVM report 650010029 (2001). Bilthoven, Netherlands.
- Walcek, C.J. (2000).** Minor flux adjustment near mixing ratio extremes for simplified yet highly accurate monotonic calculation of tracer advection, *J. Geophy. Res.*, 105, D7 (2000), 9335-9348.
- Walcek, C.J. and N.M. Aleksic (1998).** A simple but accurate mass conservative, peak-preserving, mixing ratio bounded advection algorithm with FORTRAN code, *Atmos. Environ.*, 32 (1998), 3863-3880.
- Wesely, M. L. and Hicks, B. B. (1977).** Some factors that effect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *JAPCA* 27, pp.1110-1116
- Wesely, M. (1989).** Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale, numerical models. *Atmos. Environ.*, 23, 1293-1304.

Yamartino, R.J., J. Scire, G.R. Carmichael, and Y.S. Chang (1992). The CALGRID mesoscale photochemical grid model-I. Model formulation, *Atmos. Environ.*, 26A (1992), 1493-1512.

Yamartino, R.J. (1993). Nonnegative, conserved scalar transport using grid-cell-centered, spectrally constrained Blackman cubics for applications on a variable-thickness mesh, *Mon. Wea. Rev.* 121 (1993), 753-763.

Yamartino, R. J. (1998). Improvements to horizontal Transport in Grid Models, Proc. 23th ITM on Air Pollution Modeling and its Applications, Varna, Bulgaria, 28 September-2 October (1998).

Yamartino, R. (2003). Refined 3-d Transport and Horizontal Diffusion for the REM/CALGRID Air Quality Model. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.

Yienger J. and Levy J. (1995). Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.* 100, 11447-11464, 1995.

ANHANG A

Statistische Auswertungen 1995

- Beobachteter (Om) und berechneter (Cm) Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- Standard-Abweichung, beobachtet (Os) und berechnet (Cs) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- Mittlere Abweichung, MB (Bias) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- Mittlere normierte Abweichung, MNB in $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- Mittlerer absoluter Fehler, MAF in $\mu\text{g}/\text{m}^3$
- Mittlerer normierter absoluter Fehler, MNAF
- Normierter mittlerer quadratischer Fehler, NMQF
- Standardabweichung der Residuen, SDR
- Pearson Korrelationskoeffizient (PCR), R
- % der Berechnungen innerhalb eines Faktor 2 bezogen auf die Messung
- % der Berechnungen innerhalb von +/- 50% bezogen auf die Messung
- % der Berechnungen innerhalb von +/- 30% bezogen auf die Messung
- Verfügbarkeit der Messung in %

Die statististische Auswertung wurde für die Tagesmittelwerte, beim Ozon zusätzlich noch für das Tagesmaximum und das maximale gleitende 8-Stundenmittel jeden Tages gemacht. Die Statistik wurde für alle verfügbaren Stastionen gemacht, wobei die Stationen tabellarisch in 3 Gruppen zusammengefasst werden:

- S Verkehrsnahe Stationen
U Stadtische, aber nicht verkehrsnahe Stationen. Dieser Gruppe wurden auch Stationen ohne Kennung zugeordnet.
R Ländliche Stationen

Der Anhang liegt wegen des großen Umfangs nur in elektronischer Form vor.