

# 1 Einführung

## 1.1 Motivation

Der Mensch atmet im Durchschnitt  $20 \text{ m}^3$  Luft an einem Tag. Keine andere Substanz hat einen vergleichbar großen Umsatz im menschlichen Körper. Die Frage nach den Inhaltsstoffen der Luft – nach der Immission – ist demzufolge von enormer Bedeutung. In dieser Arbeit stehen die Felder der Immission, d. h. der bodennahen Spurenstoffkonzentration, im Mittelpunkt. Der Bezug zum Raum in Form des Feldes ist ein vorrangiges Merkmal<sup>1</sup> der Geowissenschaften, das prägend für den Ansatz dieser Arbeit ist. Beobachtung<sup>2</sup> und Modellierung sind zwei Wege, um die in Raum und Zeit variablen atmosphärischen Eigenschaften zu erfassen. Die Beobachtung quantifiziert die betrachtete Größe als Folge aller Einflussfaktoren; im Gegensatz dazu kann die modellierte Größe nur das Ergebnis der schon bekannten Prozesse sein.

Die operationelle Beobachtung und die numerische Simulation atmosphärischer Spurenstoffkonzentrationen ergeben immer ein unvollkommenes Abbild der Wirklichkeit. Die Modellrechnungen sind aufgrund der Unzulänglichkeit der Modelle, deren Auflösung und der von ihnen benötigten Eingabedaten, d. h. Emissionskataster, meteorologische Felder sowie Rand- und Startwerte, fehlerhaft. Modelle können jedoch für verschiedenste Zeiten und Orte Immissionsfelder berechnen. Messungen der Immission sind nur für ausgewählte Orte vorhanden, ihre räumliche Repräsentativität ist variabel und nicht bekannt. Darüber hinaus können Unzulänglichkeiten der Messgeräte die Beobachtung verfälschen.

Wesentliche Teile der Arbeit wurden initiiert durch Forschungsprojekte des Umweltbundesamtes, welche die Luftgütebeurteilung im nationalen Maßstab nach der gegenwärtigen EU-Rahmenrichtlinie (EU, 1996) zum Inhalt haben. Nach dieser Richtlinie können neben der Beobachtung auch Modellrechnungen umweltpolitisch aussagekräftige Beiträge zur Beurteilung der Luftgüte liefern.

Die in der Richtlinie verankerten Spurengase Ozon, Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ ), Stickstoffmonoxid ( $\text{NO}$ ), Schwefeldioxid ( $\text{SO}_2$ ) und Feinstaub ( $\text{PM}_{10}^3$ ) im nationalen Maßstab bilden den Gegenstand dieser Arbeit.

Die verwendeten stündlichen Konzentrationsmessungen werden aus Beobachtungen der operationellen Luftgüternetzwerke der deutschen Länder, des Umweltbundesamtes und umliegender Staaten gewonnen. Dem gegenüber stehen die simulierten Konzentrationsfelder des regionalen Chemie-Transport-Modells REM/Calgrid. Mit ihm wurde die bodennahe Immission für Mitteleuropa im Zeitraum der Jahre 1995-2001 berechnet.

---

<sup>1</sup> Man spricht eher von „zeitlich variablen Feldern“ als von „räumlich variablen Zeitreihen“

<sup>2</sup> Man spricht von der „Beobachtung“ der meteorologischen Variablen, um diese von der Messung im Labor, bei der die Einflussfaktoren kontrollierbar sind, abzugrenzen.

<sup>3</sup> Particulate matter mit einem effektiven Durchmesser von weniger als  $10 \mu\text{m}$

Beide Informationsquellen, werden in der Arbeit gegenübergestellt, verglichen und zur Gewinnung von Immissionsfeldern kombiniert.

Der Vergleich erfolgt durch eine klimatische Zusammenschau, die den typischen und maximalen Immissionswerten, den zeitlichen Zyklen sowie den räumlich statistischen Momenten gilt. In ihr werden die beobachteten und modellierten Daten in methodisch gleicher Weise behandelt.

Die angestrebte Kombination von Modellfeld und Beobachtung ist eine **Analyse**. Mit dem Begriff Analyse werden in der Meteorologie Methoden der räumlichen Interpolation zusammengefasst. Das Ergebnis der Analyse ist eine Felddarstellung, die auf einem bereits vorgegebenen Feld und Beobachtungen beruht. Ist das vorgegebene Feld ein Modellfeld, so handelt es sich um eine Form der **passiven Datenassimilation**. Bei der aktiven Datenassimilation wird das gewonnene Feld während des Modellaufes weiterverwendet. Die so assimilierten Beobachtungen verändern die Modellrechnung.

Analyse und Datenassimilation beruhen auf Methoden der räumlichen Statistik. Ihre sachgerechte Anwendung bedarf einer Quantifizierung der ersten und zweiten statistischen Momente<sup>4</sup> von Beobachtungs- und Modellfehlern. Der Vergleich der statistischen Eigenschaften ist damit eine Form der Modellevaluierung, bei der neben den absoluten Immissionswerten auch die Wiedergabe von zeitlichen und räumlichen Strukturen untersucht wird. Dies erfüllt Forderungen von Sampson und Guttorp (1998) für eine umfassende Modellevaluierung.

Für die Analyse müssen auch Maße für die Fehler und die Repräsentativität der Beobachtung abgeleitet werden. In diesem Sinne ist nicht nur die Evaluierung des Modells, sondern auch die der Beobachtung ein Ergebnis der Analysebemühungen.

Die Techniken der Analyse und Datenassimilation sind vorrangig für die Variablen der numerischen Wettervorhersage entwickelt worden. Sie beruhen auf statistischen Modellvorstellungen zur räumlichen Verallgemeinerung. Für diese sind häufig Voraussetzungen notwendig, die von den nichtnormalverteilten und heterogenen Immissionsdaten nur unzureichend erfüllt werden. Eine wesentliche Motivation für die Arbeit ist es, Methoden zu finden, die die statistischen Besonderheiten der Immissionsdaten berücksichtigen. Ein wichtiger Ansatz dafür ist die Unterscheidung von Immissionsregimes.

## 1.2 Inhaltsübersicht

Die Erwartungswerte von Immissionsdaten weisen große Unterschiede auf, die mit dem Begriff des „Immissionsregimes“ qualitativ beschreibbar sind. Typische Immissionsregimes sind „Land“, „Stadt“ oder „Straße“. In Kapitel 2 wird ein stoffspezifisches Regime für jede beobachtete und modellierte Jahreszeitreihe bestimmt. Die Klasseneinteilung erfolgt anhand einer Clusteranalyse der deutschen Beobachtungen aus dem Zeitraum 1995-2001. Die abgeleiteten Immissionsregimes werden dann im weiteren Verlauf zur Klassifizierung der modellierten Zeitreihen verwendet.

Das Kapitel 3 ist einer Klimatologie der Immissionsregimes für Beobachtung und Modellrechnung gewidmet. Dabei werden die Eigenschaften der gewonnenen Regimes diskutiert, die Übereinstimmung mit bisherigen Klassifikationen überprüft und der

---

<sup>4</sup> Erwartungswert, Varianz und Kovarianz

Zusammenhang der Klassifikation für verschiedene Stoffe ermittelt. Weiterhin erfolgt eine Darstellung der zeitlichen Variabilität. Die Untersuchung, inwieweit die modellierten Tages-, Wochen- und Jahregänge mit der Beobachtung übereinstimmen, ist ermöglicht eine prozessorientierte Modellevaluierung.

Die Kapitel 4 bis 6 der Arbeit sind der Analyse und Datenassimilation und damit dem vorrangig dem räumlichen Aspekt gewidmet. Kapitel 4 beschäftigt sich mit verschiedenen Ansätzen der Analyse und Datenassimilation von Spurenstoffkonzentrationen und ihrem theoretischen Hintergrund. Ein Literaturüberblick fasst wichtige Arbeiten auf diesem Gebiet zusammen. Das auf der Theorie der stochastischen räumlichen Prozesse beruhende Instrumentarium wird vorgestellt und auf die statistischen Besonderheiten der Immissionsdaten übertragen.

Das Grundproblem der Analyse ist die Spezifikation der Fehlerstatistik von Modell und Beobachtung in Form von Bias, Varianz und Kovarianzfunktion. Die Schätzung dieser Momente aus Stichproben und deren räumliche Verallgemeinerung wird unter dem Stichwort „Kovarianzmodellierung“ zusammengefasst. Sie ist der Inhalt des 5. Kapitels. In ihm werden verschiedene klimatische und terminbezogene Kovarianzmodelle vorgestellt und verglichen, die unterschiedlich gut die räumliche Variabilität und deren zeitliche Veränderung wiedergeben können. Mit ihnen wird die räumliche Variabilität von Beobachtung und Modellrechnung verglichen. Ein wichtiges Resultat der Kovarianzmodellierung ist weiterhin die Spezifikation der Beobachtungsfehlervarianz. Damit liegt neben der Charakteristik der Regimes ein quantitatives Maß für die Repräsentativität der Messungen vor.

Das Kapitel 6 befasst sich mit Felderzeugung, d. h. der Analyse auf Basis der im vorherigen Kapitel bestimmten Kovarianzmodelle und Fehlermaße. Dabei wird ein Gütemaß für die gewonnenen Felder verwendet, um die Wirkung der verschiedenen Kovarianzmodelle zu beurteilen. Darüber hinaus werden die passiven Verfahren der Datenassimilation mit dem Ergebnis von aktiven verglichen, bei denen die Beobachtungen während des Modellaufes in die Rechnung einbezogen wurden.

Das abschließende Kapitel 7 gibt eine Zusammenfassung der Ergebnisse und einen Ausblick auf weiterführende Aufgaben.

### 1.3 Vorstellung der betrachteten Spurenstoffe

Ozon ( $O_3$ ), Stickstoffdioxid ( $NO_2$ ), Stickstoffmonoxid ( $NO$ ) und Schwefeldioxid ( $SO_2$ ) sind Gase mit einer troposphärischen Lebensdauer im Bereich von Stunden ( $NO$ ) bis zu mehreren Tagen ( $NO_2$ ,  $SO_2$  und  $O_3$ <sup>5</sup>). Die Lebensdauer von Feinstaub ( $PM_{10}$ ) hängt stark von der Partikelgröße ab; sie hat jedoch eine ähnliche Länge. Dieser zeitlichen Skala kann ein räumlicher Maßstab von einigen tausend Kilometern zugeordnet werden. Die räumliche Begrenzung der Modellierung auf Mitteleuropa ist dadurch gerechtfertigt. Nur bei dem längerlebigen Ozon ist der hemisphärische und stratosphärische Eintrag von Relevanz für die bodennahe Immission<sup>6</sup>. Dies gilt um so mehr, da seine natürlichen und anthropogen verursachten Konzentrationen im selben Größenbereich liegen.

---

<sup>5</sup> Die Lebensdauer von Ozon ist variabel und im Winter sowie in  $NO_x$ -armen Regimes deutlich erhöht.

<sup>6</sup> Durch klimatologisch abgeleitete Randbedingungen für die Modellierung wird versucht, diesem Umstand gerecht zu werden (Logan, 1999)

Alle betrachteten Stoffe weisen anthropogen erhöhte Konzentrationen in der planetarischen Grenzschicht auf, die für NO ca. 5000, für NO<sub>2</sub> ca. 500, für SO<sub>2</sub> ca. 50 und für Ozon und PM10 ca. 5 mal über den Reinluftkonzentrationen<sup>7</sup> liegen können (Seinfeld, 1986).

Ozon (O<sub>3</sub>) ist der prominenteste Spurenstoff der Atmosphäre. Die Ozonschicht in der Stratosphäre ist durch ihre Filterfunktion für UV-Strahlung die Voraussetzung für das Leben jenseits des Meeres. Weiterhin ist Ozon ein bedeutsames Treibhausgas und die Grundlage wichtiger luftchemischer Prozesse. Ausgangspunkt der Ozonbildung ist das schnell mit molekularem Sauerstoff O<sub>2</sub> reagierende<sup>8</sup> Sauerstoffradikal O (3P). Es entsteht z. B. durch die Photolyse von O<sub>2</sub>, die erst bei Wellenlängen von  $\lambda < 240$  nm auftritt. Da diese hochenergetische UV-Strahlung nicht in die Troposphäre eindringt, nahm man lange Zeit die Einmischung von stratosphärischem Ozon als einzige Quelle für den troposphärischen Ozongehalt an<sup>9</sup>. Die auch in der Troposphäre mögliche Photolyse ( $\lambda < 420$ nm) von Stickstoffdioxid NO<sub>2</sub> zu Stickstoffmonoxid NO ist jedoch die Ursache für die troposphärische Ozonbildung. Die beiden Stickstoffoxide und Ozon bilden ein fotochemisches Gleichgewicht, das durch Photolyse, Ozonbildung und Ozonabbau durch NO mit NO<sub>2</sub>-Bildung in Abhängigkeit vom Strahlungsangebot balanciert wird.

Der sprunghafte und als Sommersmog bezeichnete Anstieg des bodennahen Ozons kann nicht durch dieses Gleichgewicht erklärt werden. Dazu bedarf es Reaktionen, die NO in NO<sub>2</sub> umwandeln, ohne Ozon zu verbrauchen. Dies geschieht aufgrund des Kreislaufs der Radikale OH und HO<sub>2</sub>, der durch Reaktionen von flüchtigen Kohlenwasserstoffen, Methan oder Kohlenmonoxid (CO) angetrieben wird.

Hohe Einstrahlung sowie ein Angebot von Stickoxiden und Kohlenwasserstoffen sind die Voraussetzungen für den Sommersmog. Er ist ein Cocktail gesundheitsgefährdender Substanzen, für den Ozon als Leitkomponente dient.

Anders als sein Name vermuten läßt, kann der Stickstoff der Luft bei hohen Temperaturen oxidiert werden. Dies geschieht z. B. in Prozessen moderner Verbrennungstechnik und Motoren aber auch bei Blitzentladungen. Dabei entsteht vornehmlich Stickstoffmonoxid NO, das jedoch schnell mit Ozon zu dem längerlebigen Stickstoffdioxid NO<sub>2</sub> umgewandelt wird. Höhere Oxidationsstufen von Stickoxiden wie NO<sub>3</sub> und N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> sind wasserlöslich und können demzufolge in Regentröpfchen zur Säurebildung und sekundären Aerosolbildung beitragen. Neben dieser nassen ist die trockene Deposition eine effektive Senke der Stickoxide.

Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>) ist der „Klassiker“ unter den Luftschadstoffen. Hohe SO<sub>2</sub>-Konzentrationen, die mit sichtverringenden Sulfatkonzentrationen einhergehen, werden als Wintersmog bezeichnet. Sein Auftreten wird meist durch austauscharme Wetterlagen hervorgerufen. SO<sub>2</sub> ist ein direkt emittierter Stoff, der hauptsächlich bei der Verbrennung von schwefelhaltigen fossilen Brennstoffen in Industrie und Hausbrand erzeugt wird. Über die Bildung von Sulfat und Schwefelsäure wird SO<sub>2</sub> in Tropfen gebunden und als saurer Niederschlag deponiert.

PM10 ist der Anteil des Gesamtstaubes (TSP) mit einem effektiven Durchmesser kleiner als 10  $\mu$ m. Der Anteil von PM10 am Gesamtstaub beträgt für mitteleuropäische

---

<sup>7</sup> In Anbetracht der globalen Wirkung der Luftverschmutzung ist die „Reinluft“ ein problematischer Begriff. Darüber hinaus existiert keine Norm für „Reinluft“, da auch die „natürliche“ Spurenstoffkonzentration sehr variabel ist.

<sup>8</sup>  $O(3P)+O_2+M \rightarrow O_3 + M$  (M = Stoßpartner)

<sup>9</sup> Das Frühjahrsmaximum der Ozonkonzentration in Reinluftgebieten, z. B. auf der Südhalbkugel, könnte sich durch die erhöhte Durchlässigkeit der Tropopause in dieser Jahreszeit erklären lassen.

Verhältnisse ca. 80%<sup>10</sup> (Lenschow et al., 2001). PM10 hat vielfältige Quellen und keine homogene chemische Zusammensetzung. PM10 sind Aerosole, die zum Teil direkt durch Verkehr- und Industrieaktivität emittiert werden. Auch Windaufwirblung oder die Verdunstung von Seewassertropfen (seaspray) bringen sie in die Atmosphäre. Diese primären Aerosole sind vorrangig Mineralstoffe und Ruß.

Darüber hinaus gibt es sekundäre Aerosole, die sich in heterogenen chemischen Reaktionen aus gasförmigen Stoffen bilden und für deren effektive Deposition sorgen. Wichtige Komponenten sind dabei Sulfat, Nitrat und Ammonium. Organische Substanzen und biogenes Material wie die Fragmente von Pollen bilden einen weiteren Bestandteil von PM10.

Für das Verständnis der Aerosolbildung ist die Größenverteilung der Aerosole von Interesse (Schaap, 2000). Dies gilt auch für ihre Gesundheitsgefährdung, da kleine Teilchen tiefer in den Atmungsapparat eindringen können. Aus diesem Grund sind Aerosole mit einem Durchmesser kleiner als 10 oder 2,5 µm (PM10, PM2.5) von besonderem umweltpolitischen Interesse.

## 1.4 Datenquellen

Im Rahmen der Arbeit werden beobachtete und modellierte Zeitreihen methodisch gleichwertig behandelt. Anders als die Beobachtungen haben Modellergebnisse keinen „endgültigen“ Charakter. Sie sind immer das Resultat einer fortschreitenden Entwicklung und damit veränderlich. Die hier bearbeiteten Modellergebnisse repräsentieren daher einen Arbeitszustand. Die gewonnenen Erkenntnisse über mögliche Defizite können erst in einer neuen Stufe der Modellentwicklung verwendet werden.

Die modellierten Zeitreihen werden durch bilineare Interpolation für den Messort gewonnen. Dieses Vorgehen erscheint für die Modellevaluierung problematisch, da Beobachtung und Messung unterschiedliche Skalen repräsentieren. Es kann jedoch gerechtfertigt werden, da nicht der Vergleich von Stundenwerten, sondern jener von Parametern der gesamten Häufigkeitsverteilung im Vordergrund steht. Mit den ermittelten Regimes und den geschätzten Beobachtungsfehlern stehen jedoch Informationen über die Repräsentativität für eine angemessene Modellevaluierung zur Verfügung.

### 1.4.1 Die Beobachtungen

Die Beobachtungsdaten sind stündliche Zeitreihen der bodennahen Messung für Ozon (O<sub>3</sub>), Stickstoffdioxid (NO<sub>2</sub>), Stickstoffmonoxid (NO), Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>), Staub (TSP<sup>11</sup>) und Feinstaub (PM10). Die Daten stammen zum größten Teil aus den Messnetzen der deutschen Bundesländer und des Umweltbundesamtes. Darüber hinaus sind Zeitreihen benachbarter Länder über den Datenaustausch der Europäischen Umweltbehörde bezogen worden (<http://etc-acc.eionet.eu.int/databases/airbase.html>).

---

<sup>10</sup> Für eine tropische Großstadt (Jakarta) wird z. B. von einem Umrechnungsfaktor von 50% ausgegangen (Ostro (1994)).

<sup>11</sup> Total suspended matter

Nach der EU-Rahmenrichtlinie ist nur die Fraktion des Staubes mit einem Durchmesser kleiner  $10\ \mu\text{m}$  (PM10) von Interesse. PM10-Messungen liegen jedoch erst seit 2000 in größerem Umfang vor. Aus diesem Grund wird die PM10-Konzentration auch aus der TSP-Immission abgeleitet. Dabei wird ein Anteil von 80%<sup>12</sup> angenommen (Lenschow et al., 2001).

Bei den verwendeten Beobachtungsdaten handelt es sich um offizielle und geprüfte Daten. Auf eine sinnvolle, umfangreiche Datenqualitätsprüfung und eine Fehlerwertersetzung wurde im Rahmen der Arbeit verzichtet. Dies kann mit dem hier verwendeten klimatologischen Ansatz vertreten werden, der nicht vordergründig die Betrachtung einzelner Stationsmessreihen beabsichtigt. Mögliche Fehler der Messreihen werden jedoch durch die Schätzung des Beobachtungsfehlers bzw. durch den Vergleich mit anderen Beobachtungen aufgedeckt.

Eine weitere Quelle der Datenunsicherheit liegt in dem Umstand, dass die Strategie der Immissionsmessung in den einzelnen Bundesländern unterschiedlich aber nicht dokumentiert ist. Dazu gehören die Festlegung der unteren Messbereichsschranke<sup>13</sup> und das Verhältnis<sup>14</sup> der Beobachtungsanzahl in ländlichen und belasteten Regimes.

Die Bestimmung der Häufigkeit von Fehlwerten ist notwendig, da die Daten statistisch bearbeitet werden. In den Tochterrichtlinien (EU, 2002, 2000 und 1999) zur EU-Rahmenrichtlinie (EU, 1996) wurde 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, ist im Rahmen dieser Arbeit ein Vollständigkeitskriterium von 85% angewendet worden. Es hat insbesondere für die Nachtwerte Bedeutung, da hier die Ausfallquote überproportional hoch ist. Für Ozon, NO<sub>2</sub>, TSP und SO<sub>2</sub> erfüllen mehr als 80% und für PM10 und NO weniger als die Hälfte der Zeitreihen das 85% Kriterium.

Tabelle 1 zeigt die Anzahl der für die Arbeit vorliegenden Jahreszeitreihen aus Deutschland und weiteren Ländern in Europa für die Jahre 1995 bis 2001. Die räumliche Verteilung der Stationen wird in Abbildung 1.1 für Ozon gezeigt.

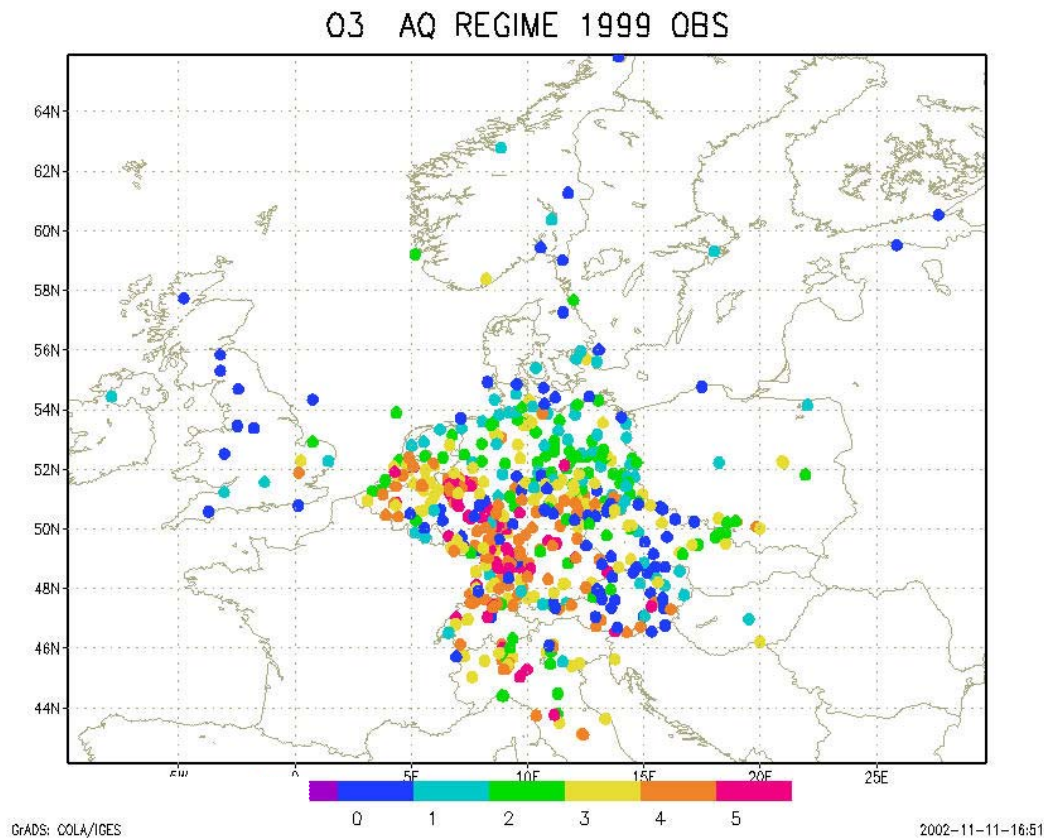
Anzahl	1995		1996		1997		1998		1999		2000		2001	
	D	EU	D	EU	D	EU	D	EU	D	EU	D	EU	D	EU
O <sub>3</sub>	336	110	337	116	361	195	332	208	342	268	348	190	342	-
NO <sub>2</sub>	409	47	379	60	4234	110	410	120	418	181	423	-	420	-
NO	322	39	374	36	376	77	313	106	420	112	425	39	420	-
SO <sub>2</sub>	443	30	357	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 1 Anzahl der vorliegenden Jahreszeitreihen, deren Vollständigkeit größer als 85% ist, für Deutschland (D) und für andere Länder in Europa (EU).**

<sup>12</sup> Trotz regionaler Unterschiede wird dieser Wert für Deutschland häufig verwendet.

<sup>13</sup> Für SO<sub>2</sub> ist in Brandenburg der kleinste mögliche Wert  $3\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ , während in den benachbarten Bundesländern der häufig gemessene Minimalwert  $1\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  beträgt.

<sup>14</sup> In Bayern finden PM10-Messungen nur in belasteten Regimes statt.



**Abbildung 1.1** Messorte mit vollständigen (85%) Ozon-Jahreszeitreihen in Europa für das Jahr 1999. Regime: 0=Berg/Küste, 1=Land, 2=Vorstadt, 3=Stadt, 4=belastete Stadt, 5=Verkehr.

## 1.4.2 Modellierung

Die modellierten stündlichen Immissionswerte wurden mit dem Modell REM<sup>15</sup>/Calgrid<sup>16</sup> (RCG) berechnet. Für eine umfangreiche Beschreibung dieses Eulerischen Chemie-Transport-Modells (CTM) sei auf Stern (1994, 2003a) verwiesen. Hier werden nur wichtige Grundzüge erläutert.

CTM in Eulerscher Darstellung verwenden ein in Gitterboxen unterteiltes Modellgebiet. Für jede Gitterbox wird die zeitliche Änderung der mittleren Konzentration  $c_i$  des Stoffes  $i$  auf Basis der Massenbilanzgleichung {1.1} berechnet. Die Massenbilanz beschreibt die zeitliche Konzentrationsänderung als Folge der Divergenz von mittleren und turbulenten Flüssen ( $\mathbf{v}$  = Windvektor) sowie der Emission ( $E$ ), der chemischen Umwandlung ( $R$ ) und der Deposition ( $D$ ).

$$\frac{\partial \bar{c}_i}{\partial t} + \bar{\nabla} \cdot (\bar{c}_i \mathbf{v}) + \bar{\nabla} \cdot (\bar{c}_i' \mathbf{v}') = R_i + E_i + D_i \quad \{1.1\}$$

Die Zusammenstellung der Volumenmittelwerte ergibt ein Konzentrationsfeld in Gitterpunktdarstellung. Das Ergebnis einer CTM-Rechnung ist stark von der gewählten

<sup>15</sup> Regional Eulerian Model with 3 chemical mechanisms

<sup>16</sup> Californian Grid Modell

räumlichen Auflösung, d. h. der Gitterboxgröße abhängig und entspricht damit nicht unbedingt der Konzentration an einem bestimmten Punkt. Das Modell simuliert die Immissionen hauptsächlich als Folge von Prozessen der räumlich aufgelösten Skala. Aufgrund der nichtlinearen Wechselwirkungen beeinflussen die subskaligen Phänomene die aufgelösten Prozesse (Lange, 2002). Für die turbulenten vertikalen Austauschprozesse existieren vielfältige Lösungsansätze<sup>17</sup>. Weitere „turbulente“ Phänomene in der Chemie-Transport-Modellierung, wie die Wirkung der Konzentrationsfluktuationen auf die Reaktionsgeschwindigkeit oder die Übergabe der kleinskaligen Emissionsquellen ins Modellgitter, harren der Parametrisierung. Erste Ansätze sind in Stockwell (1995) zu finden.

Das Modell REM/Calgrid (RCG) ist ein Ausbreitungsmodell für die planetare Grenzschicht. Das Modellgebiet umfasst Mitteleuropa mit einer horizontalen Auflösung von  $0.25^{\circ} \times 0.5^{\circ}$  (ca.  $25 \times 25 \text{ km}^2$ ). Die gewählte horizontale Auflösung entspricht der Auflösung der zur Verfügung stehenden Emissionsdatenbasen (Stern, 2003b). Ein besonderes Kennzeichen des RCG-Modells ist die Möglichkeit einer dynamischen vertikalen Auflösung, die in Abhängigkeit von der extern berechneten Mischungsschicht bestimmt wird (Abbildung 1.2). Somit erfasst die sich ändernde Modellgeometrie den Tagesgang in der Grenzschicht. Diese Modelloption wurde bei den hier durchgeführten Berechnungen verwendet. Die unterste Modellschicht hat eine Höhe von 20 m. Die Berechnungen für diese Schicht werden als Äquivalent der bodengestützten Messung angesehen. Darüber befindet sich die variable Mischungsschicht, die zur genaueren Darstellung in zwei gleichgroße Schichten aufgeteilt wird. Über der Mischungsschicht und mit dieser nur durch Entrainment und vertikalen Wind, aber nicht durch turbulenten Austausch gekoppelt, befindet sich die oberste Modellschicht. Sie hat die Funktion eines Speichers und wird demzufolge als Reservoirschicht bezeichnet.

Der Chemismus des Modells ist eine fortgeschriebene Version des CBM4<sup>18</sup> (Gery et al., 1989), die 36 Stoffe mit ca. 90 verschiedenen chemischen Reaktionen umfasst. Er ist um ein Modul zur Aerosolberechnung erweitert (Stern, 2003a). Das berechnete PM10 setzt sich aus den inerten PM2.5 und einer groben Fraktion (PM10-2.5) zusammen. Darüber hinaus werden die sekundären anorganischen Aerosolbestandteile Sulfat, Nitrat, Ammonium, Chlorid und Natrium über die thermodynamische Gleichgewichtannahme modelliert.

Die Massenbilanzgleichung ist vom mathematischen Standpunkt ein inhomogenes Rand- und Anfangswertproblem. Anders als bei der numerischen Wettervorhersage, die auf einer Impulsbilanz aufbaut, sind die Anfangswerte nur von geringer Bedeutung (Flemming, 1996). Das Ergebnis wird von den Randwerten und in noch stärkerem Maße von den Quellen und Senken, d. h. den mathematischen Inhomogenitäten bestimmt. Die wichtigste Quelle ist die Emission, deren Quantifizierung als Emissionskataster große Unsicherheiten aufweist und das Modellergebnis beeinflusst.

Neben der Emission benötigt REM/Calgrid die meteorologischen Felder des Windvektors, der Temperatur und Feuchte für alle Modellschichten, sowie die Felder der 10m-Windstärke, der 2m-Temperatur, der Bedeckung, der Niederschlagsrate, der Monin-Obuchow-Länge, der Schubspannungsgeschwindigkeit und der Mischungsschicht. Die Daten werden mit einem diagnostischen Analyseschema (Reimer und Scherer, 1992) berechnet, ausgehend von den operationellen WMO<sup>19</sup>-Bodenbeobachtungen und Ra-

---

<sup>17</sup> Im Modell wird der bewährten „K-Ansatz“ verwendet.

<sup>18</sup> Carbon Bound Mechanism

<sup>19</sup> World Meteorological Organisation



diosondenaufstiegen. Die atmosphärischen Felder werden dabei auf isentropen Flächen repräsentiert. Die Berechnung der Mischungsschicht und anderer PBL-Parameter erfolgt mit einem 1D bulk Modell nach van Ulden und Holtslag (1985).

## Vertical resolution REM/Calgrid

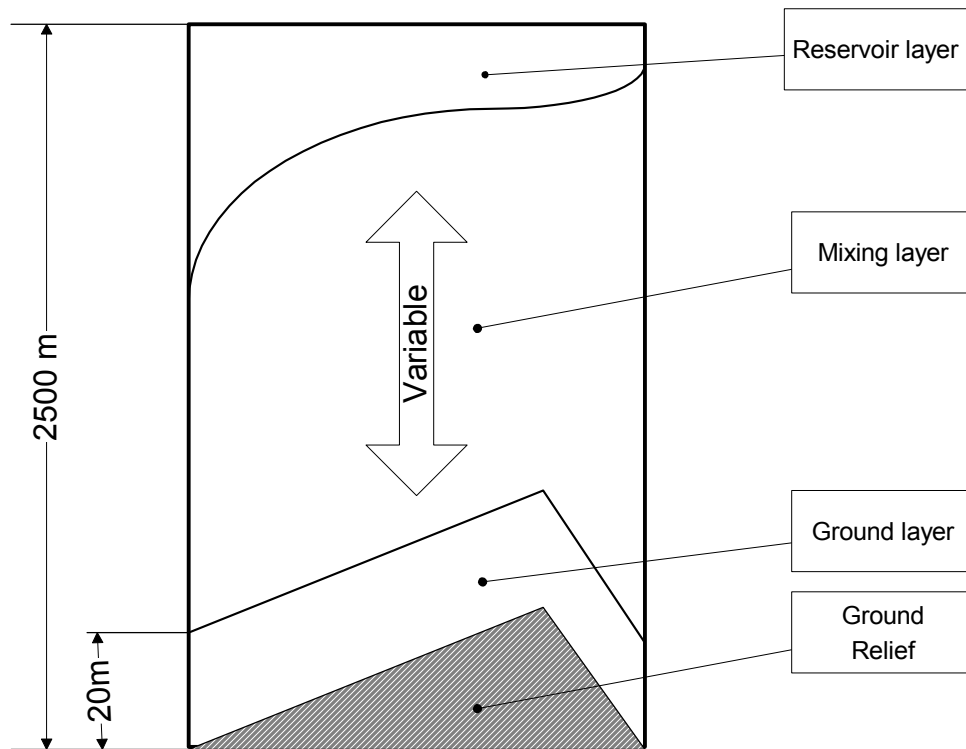


Abbildung 1.2 Schema der vertikalen Auflösung von REM3/Calgrid

### 1.4.3 Statistische Parameter von Immissionszeitreihen

Die Aufgabe statistischen Parameter ist es, die Häufigkeitsverteilung (Abbildung 1.3) des Ensembles der stündlichen Immissionswerte einer Zeitreihe zu beschreiben. Dabei wird häufig von einer theoretischen Verteilungsfunktion, meist der Gaußschen Normalverteilung, ausgegangen, deren Parameter ermittelt werden. Dem gegenüber stehen verteilungsunabhängige Parameter, die die Häufigkeitsverteilung ohne Annahmen über eine theoretische Verteilungsfunktion beschreiben.

Ist die Verteilungsfunktion bekannt, so lassen sich sehr leicht statistische Kenngrößen wie Erwartungswert und Streuung berechnen. Der Nachweis, dass die Daten einer gewissen theoretischen Verteilung genügen, ist nicht einfach zu erbringen und wird häufig vernachlässigt. Für die Immissionsdaten ist es offensichtlich, dass sie nur unzureichend einer Gauß-Verteilung entsprechen.

Deshalb wird in dieser Arbeit vorrangig mit den verteilungsunabhängigen Perzentilen<sup>20</sup> gearbeitet. So ist der Median (50%-Perzentil, P50) bei nicht normalverteilten Daten

<sup>20</sup> Das X%-Perzentil ist der Wert, den X% der gesamten Daten nicht überschreiten.

eine robustere Schätzung des Erwartungswertes als der Mittelwert (Taubenheim, 1969). Der Quartilabstand<sup>21</sup> ist eine verteilungsunabhängige Entsprechung der empirischen Standardabweichung. Das 5%-Perzentil<sup>22</sup> (P05) beschreibt die minimalen und das 98%-Perzentil (P98) die maximalen Werte. 50% der Daten liegen zwischen dem 25% und 75%-Perzentil.

Trotz der genannten statistischen Gründe werden langfristige<sup>23</sup> Luftgütekriterien häufig als Mittelwerte formuliert. Dahinter verbirgt sich das für die Schadenswirkung wichtige Konzept der Dosis, d. h. dem Produkt aus Konzentration und Zeiteinheit.

Der Tagesgang ist im Vergleich zum Jahres- oder Wochengang für die Immissionswerte meist die bedeutsamste Variation<sup>24</sup>. Aus diesem Grund ist es günstig, neben der gesamten stündlichen Zeitreihe tagesbezogene Kenngrößen zu betrachten. Hierfür eignen sich Tagesmaximum, Tagesminimum und der Tagesmittelwert. Die Ausprägung des Tagesgangs kann mit der Tagesschwankung<sup>25</sup>, d. h. der Differenz zwischen Tagesmaximum und -minimum, erfasst werden. Es ist dabei vorteilhaft, die Tagesschwankung im Verhältnis zum Tagesmittelwert zu betrachten, um Unterschiede bei unterschiedlichen Niveaus der Belastung vergleichbarer zu machen. Die entsprechende Größe ist die relative bzw. normierte Tagesschwankung.

Abgeleitet aus den obigen Darlegungen wurden folgende Parameter aus den beobachteten und modellierten Jahreszeitreihen bestimmt:

- Median und Perzentile (P05 ... P98) der gesamten Zeitreihe
- Median und Perzentile (P05 ... P98) der Zeitreihen des täglichen Maximums, Minimums, Mittelwertes (MA, MI, ME)
- Median und Perzentile (P05 ... P98) der relativen Tagesschwankung (TA)
- Median für alle Tagesstunden, Wochentage und Monate

Diese Größen wurden für jede Jahreszeitreihe berechnet und für die klimatologische Charakterisierung sowie für die Bestimmung von Immissionsregimes verwendet. Die Vollständigkeit der stündlichen Jahreszeitreihe muss dabei größer als 85% sein, bzw. mindestens 20 Messwerte pro Tag müssen vorliegen. Die Parameter werden im Folgenden häufig mit einer Kurzform bezeichnet. So steht P98MA für das 98%-Perzentil des Tagesmaximums.

---

<sup>21</sup> Differenz zwischen 75%- und 25%-Perzentil

<sup>22</sup> Das 2%-Perzentil – als symmetrische Entsprechung des 98%-Perzentils – wurde nicht verwendet, da es zu häufig die untere Messbereichsgrenze war.

<sup>23</sup> d. h. nicht auf einzelne Spitzenbelastung abzielend

<sup>24</sup> Tilmes (1999) weist dies z. B. für Ozon mit Hilfe der PCA (principal component analysis) nach.

<sup>25</sup> Dadurch wird der Tagesgang etwas überschätzt, da die kurzfristige, dem Tagesgang überlagerte Variabilität mit einbezogen wird.

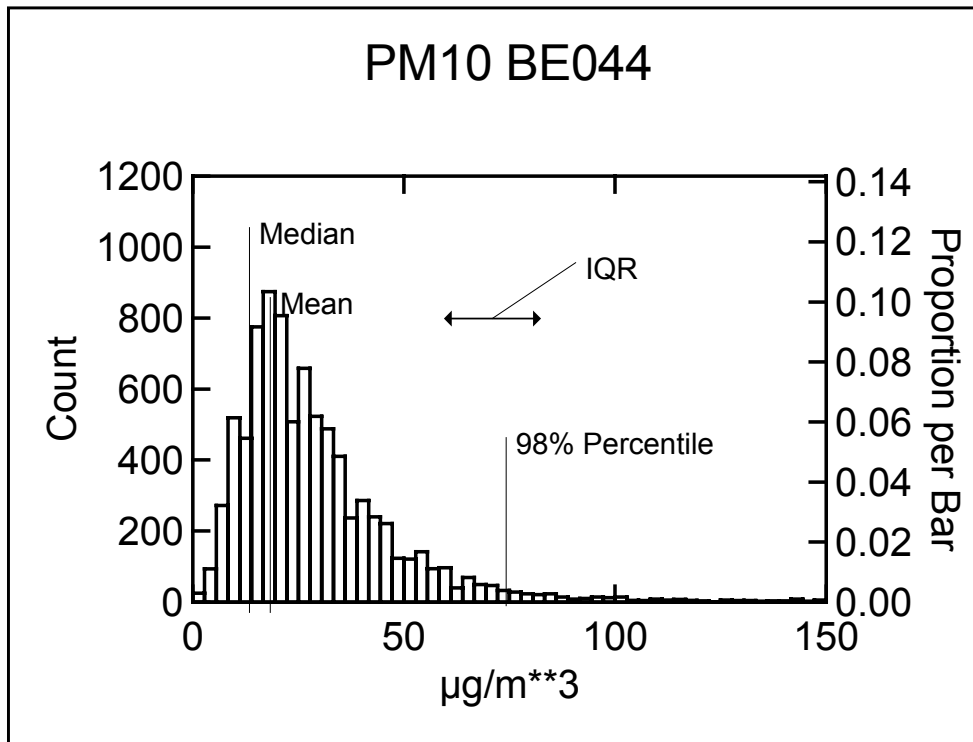


Abbildung 1.3 Histogramm der stündlichen Messwerte von PM10 an der Station BE044. Mittelwert =  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , Median =  $24 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , 98%-Perzentil =  $88 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Der Quartilsabstand (IQR) =  $20,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

## 1.5 Exkurs: Repräsentativität der Immissionsbeobachtung

Die Frage der **räumlichen Repräsentativität** von Immissionsbeobachtungen muss in qualitativer oder quantitativer Form für die umweltpolitische Bewertung der Luftgüte, für die Datenassimilation und Modellevaluierung beantwortet werden. Für die bodennahen Immissionsmessungen stellt sich diese Frage besonders, da die Positionierung der Stationen stärker durch die Erfassung hoher Belastungen und weniger durch eine möglichst große räumliche Repräsentativität motiviert ist.

Die räumliche Repräsentativität von Immissionsmessungen wird qualitativ häufig aus dem Immissionsregime bzw. Emissionsregime abgeleitet. Es wird dabei von einer Verkleinerung des repräsentativen Gebietes mit zunehmender Intensität der naheliegenden Emission ausgegangen. Dieses Vorgehen stützt sich auf das Wissen, dass die emissionsärmeren Gebiete meist eine größere Ausdehnung und schwache Gradienten besitzen. Transportvorgänge und chemische Umwandlungen beschneiden jedoch die Tragweite dieser einfachen Emissions-Immissions-Beziehung nicht nur für den konkreten Termin, sondern auch in klimatischer Hinsicht.

Für die Datenassimilation sind quantitative Angaben über die Repräsentativität der Beobachtungen notwendig. Die durch die Datenassimilation erzeugte Felddarstellung (Analyse) hat einen spezifischen räumlichen Mittelungscharakter (kleinste dargestellte Skala) bzw. eine bestimmte Auflösung<sup>26</sup>. Die Frage nach der Repräsentativität einer

<sup>26</sup> Die Auflösung hat einen technischen und die Skala einen inhaltlichen Charakter. Die Auflösung (Stützstellenabstand) legt die untere „technische“ Grenze für die kleinste darstellbare Skala fest. Umge-

Messung für die Analyse hängt damit von der angestrebten räumlichen Auflösung ab. Die räumliche Repräsentativität wird im Rahmen der Theorie der statistischen Analyse mit Hilfe zweier Größen quantifiziert:

- Varianz des Beobachtungsfehlers
- Räumliche Kovarianzstruktur des Immissionsfeldes zwischen dem Beobachtungsort und den anderen Punkten des Feldes

Der Beobachtungsfehler charakterisiert, neben dem reinen Messgerätefehler, statistisch die Streubreite der Abweichung der Beobachtungen vom „wahren“ Analysewert aufgrund der Tatsache, dass die Beobachtung nicht vollkommen der „Glattheit“ des Feldes entspricht. Dies bedeutet, dass die Beobachtung nur in geringem Umfang repräsentativ für das unmittelbar umliegende Gebiet bzw. die Gitterbox bei Modellrechnungen ist.

Die Kovarianzen beschreiben darüber hinaus die Struktur des zugrundeliegenden Feldes, d. h. die Beziehung des Feldes am Messort zu den übrigen Punkten des Feldes. Sie bestimmen die Größe des im klimatischen Sinne repräsentativen Gebietes im Bereich der umliegenden Gitterboxen. Je langsamer die Kovarianz mit zunehmender Entfernung vom Beobachtungsort abnimmt, desto größer ist das repräsentative Gebiet der Messung bei gleichwertigem Beobachtungsfehler. Die Repräsentativität im Rahmen der statistischen Analyse hängt demzufolge nicht nur von der Beobachtung, sondern auch von den typischen Gradienten des zu erfassenden Feldes am Messort ab. Die Repräsentativität der Beobachtung ist somit nicht nur eine Frage der Messung, sondern auch der Eigenschaften des betrachteten Feldes.

Das für diese Quantifizierung der Varianz des Beobachtungsfehlers und der Kovarianzfunktion in den letzten 40 Jahren in der Meteorologie entwickelte theoretische Instrumentarium beruht auf empirisch bestimmten Kovarianzen<sup>27</sup> von Beobachtungswerten. Die meteorologischen Felder (Geopotential, Temperatur etc.) sind in der Regel so homogen, dass ihre räumliche Variabilität gut mit einem Ansatz aus einem klimatischen Erwartungswertfeld und einer homogenen Kovarianzfunktion der Abweichungen beschrieben werden kann<sup>28</sup>. Das meteorologische Messnetz besteht aus Beobachtungsstationen, die möglichst für ein großes Gebiet repräsentativ sind.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Bewertung der Repräsentativität der Beobachtungen für die statistische Analyse der meteorologischen Felder vorrangig auf der räumlichen homogenen Variabilität hinsichtlich eines Erwartungswertes beruht; bei der Klassifikation der Immissionsregimes orientiert sie sich an den absoluten Werten.

Im Gegensatz zu den meteorologischen Feldern sind die Immissionsfelder sehr inhomogen. Die Messung findet vorrangig in den belasteten Gebieten statt. Die Entwicklung eines an die Besonderheiten der Immissionsmessung angepassten Analyseverfahrens ist ein Schwerpunkt dieser Arbeit. Die Zusammenführung der Erkenntnisse über die Repräsentativität aus dem Immissionsregime mit den innerhalb der statistischen Analyse verwendeten Repräsentativitätsmaßen ist dafür die Grundlage und stellt eine Weiterentwicklung der Technik der Datenassimilation dar.

---

kehrt ist eine feinere Auflösung als die kleinste Skala nicht sinnvoll, da dadurch u.U. eine kleinste Skala vorgetäuscht wird, die inhaltlich im Feld nicht enthalten ist.

<sup>27</sup> Der Kalman-Filter verwendet jedoch das dynamische Modell, um die Kovarianzen des Backgrounds zu prognostizieren (siehe Kapitel 4.5.7).

<sup>28</sup> Die Abweichungen sind mit einer Gauß-Verteilung beschreibbar.