Kapitel 3

Analyse der zeitlichen Entwicklung von Luftverunreinigungen mit dem Schwerpunkt Ozon

Dieses Kapitel beschreibt die Entwicklung der Luftgüteverhältnisse in den letzten Jahren (Abschnitt 3.1) und die Verhältnisse während des Auftretens von Ozonlagen[1]. Hierbei wird nicht auf den detaillierten Verlauf von Ozonlagen eingegangen, sondern eine generalisierte Beschreibung der mittleren Verhältnisse vorgenommen. So werden mittlere Tagesgänge an Stadt- und Bergstationen verglichen (Unterabschnitt 3.3.1) und es wird auf die geänderten Ozonverhältnisse in den letzten zehn Jahren (Unterabschnitt 3.3.4) eingegangen.

3.1 Entwicklung der Luftverunreinigungen in den letzten Jahrzehnten

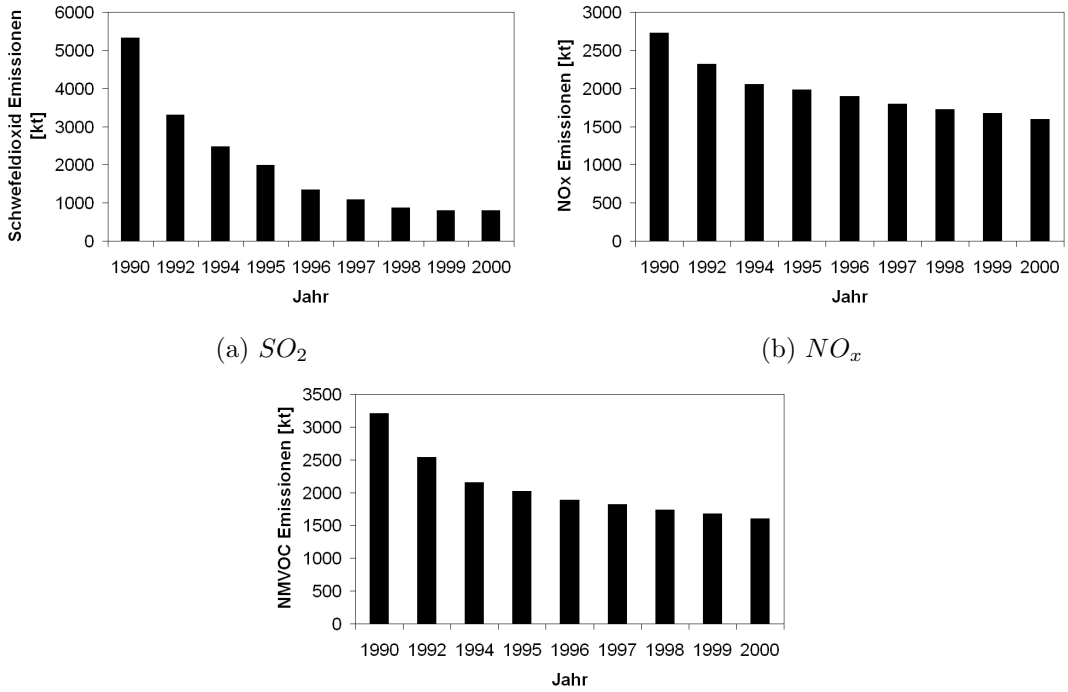
In den letzten Jahrzehnten war die Aufmerksamkeit der Öffentlichkeit gegenüber Luftverunreinigungen sehr hoch. Dieses wurde durch mehrere spektakuläre Ereignisse hervorgerufen. Stellvertretend sollen hier nur drei Ereignisse genannt sein:

- das Londoner Smog Ereignis vom 4. - 8. Dezember 1952,
- das stratosphärische Ozonloch über der Antarktis und
- die Sommersmogsituationen Anfang der 90er-Jahre in Deutschland.

[1] Als Ozonlagen oder auch Ozonepisoden werden Tage bezeichnet, bei denen besonders hohe Ozonkonzentrationen in den bodennahen Schichten der Atmosphäre auftreten.

Auf jede dieser Problemlagen wurde durch nationale Gesetze bzw. internationale Abkommen zumindest teilweise reagiert. Für London war es der Clean Air Act von 1956, beim Ozonloch das Montreal Protocol von 1987 und bei den Sommersmogsituationen in Deutschland das Sommersmoggesetz von 1995.

Jede dieser Reaktionen auf die Extremereignisse enthielt nicht nur Sofortmaßnahmen, wie zum Beispiel das Fahrverbot bei Sommersmoglagen für Autos ohne Katalysator, sondern auch Anregungen und Auflagen für die Bekämpfung ihrer Ursachen. Als Folge davon kann festgestellt werden, dass sich die Luftqualität in den letzten Jahren deutlich gebessert hat. Beispielhaft kann das mit drei Diagrammen (Abbildung 3.1) belegt werden, die der Broschüre Umweltdaten Deutschland 2002 [Umweltbundesamt und Statistisches Bundesamt 2002] entnommen wurden.



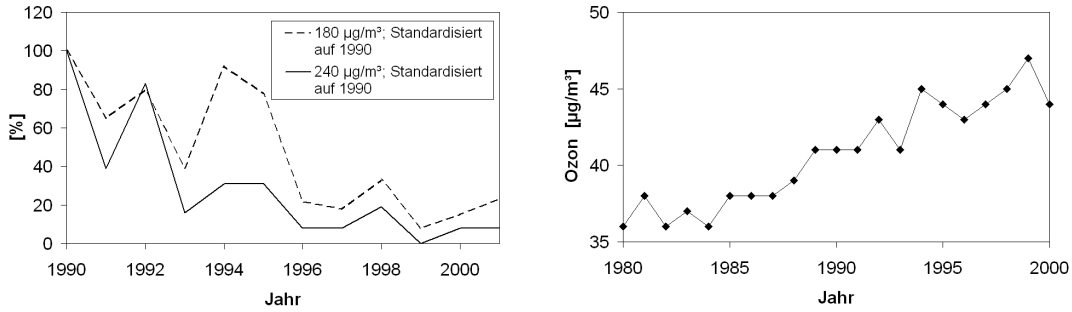
(a) SO_2

(b) NO_x

(c) $NMVOC$

Abbildung 3.1. Darstellung der zeitlichen Entwicklung der Emissionen von SO_2, NO_x und $NMVOC$ in Deutschland, Quelle [Umweltbundesamt und Statistisches Bundesamt 2002].

Demgegenüber zeigt die Abbildung 3.2 zwei gegenläufige Trends beim Bodenozon. Teilbild (a) zeigt einen deutlichen Rückgang der Überschreitungen der Schwellenwerte 180 $\mu g/m^3$ und 240 $\mu g/m^3$, im Kontrast dazu steigen die mittleren Konzentrationen (Teilbild (b)) jedoch an. Der Trend der Abnahme der Tage mit Überschreitungen von Schwellenwerten kann mit der Reduktion der NMVOC (dargestellt in Abbildung 3.1c) in Verbindung gebracht werden. Da die Ozonbil-



(a) Schwellenwertüberschreitungen O_3

(b) jährliche Mittelwerte O_3

Abbildung 3.2. Darstellung der Häufigkeit der Schwellenwertüberschreitungen und die zeitliche Entwicklung der jährlichen Mittelwerte von Bodenozon, beides für das Gebiet Deutschlands, Quelle [Umweltbundesamt und Statistisches Bundesamt 2002].

dung neben der Abhängigkeit von den Vorläuferstoffen auch sehr stark von den meteorologischen Bedingungen abhängig ist, ist die Frage erlaubt, inwiefern der Anstieg der Mittelwerte mit den weltweit beobachteten Anstieg der Temperatur und den Änderungen der meteorologischen Bedingungen zusammenhängt [IPCC 2001]. Dieser Frage wurde in mehreren Arbeiten nachgegangen [Enke 2001a, Kuebler u. a. 2001, Winkler und Enke 2000, Brönnimann u. a. 2002]. Die Bearbeiter kommen zu dem Schluss, dass für den Anstieg nicht mehr nur lokale Emissionen verantwortlich sind, sondern hier globale Entwicklungen eine Rolle spielen. Global betrachtet steigen die Emissionen der Vorläuferstoffe von Ozon und es findet ein großräumiger Transport von Ozon statt. Dieses hat auch Folgen auf zukünftige Bemühungen zur Reduzierung der mittleren Ozonkonzentrationen. So wird die Einhaltung der AOT40[2] Grenzwerte nach Ozonrichtlinie [EU 2002] wesentlich von der Zunahme der mittleren Ozonkonzentrationen beeinflusst.

Es ist also festzustellen, dass nach einer Wetterbereinigung die mittleren Ozonwerte steigen [Enke 2001a, Kuebler u. a. 2001, Winkler und Enke 2000, Brönnimann u. a. 2002]. Grund dafür sind die gestiegenen globalen Transporte von Ozon und Vorläuferstoffen.

3.2 Biogene Quellen von Ozonvorläuferstoffen

Während im vorigen Kapitel nur auf die Reduzierung anthropogen verursachter Luftverunreinigungen eingegangen wurde, soll im Folgenden der Blick auf die

[2]AOT40 (ausgedrückt in $(\mu g/m^3)\times$ Stunden) bedeutet die Summe der Differenz zwischen Konzentrationen über 80 $\mu g/m^3$ (= 40 ppb) als 1-Stunden-Mittelwert und 80 $\mu g/m^3$ während einer gegebenen Zeitspanne unter ausschließlicher Verwendung der 1-Stunden-Mittelwerte zwischen 8 Uhr morgens und 20 Uhr abends MEZ an jeden Tag [EU 2002].

biogenen Quellen[3] gelenkt werden. Mit der Reduktion der anthropogenen Einflüsse gewinnen die biogenen Einflüsse immer mehr an Bedeutung. Im Artikel von [Meixner u. a. 2000] wird auf die Problematik der biogenen Quellen detailliert eingegangen und festgestellt, dass die Emissionen stark von der Temperatur abhängen, aber das Verständnis von vielen Zusammenhängen oft noch sehr unvollständig ist. Zwei Feststellungen sind wichtig:

- die biogenen Emissionen steigen mit der Temperatur und
- in den 90iger Jahren lag der biogene Anteil an den Maximalwerten der Ozonkonzentrationen bei Ozonepisoden bei bis zu 20 %.

Sinken die Konzentrationen der anthropogenen Luftverunreinigungen, so kommt es zu einem relativen Anstieg des biogenen Anteils. Dies setzt unter Vorgabe einer VOC-Limitierung den Bemühungen zur Reduktion der Ozonkonzentration ein unteres Limit.

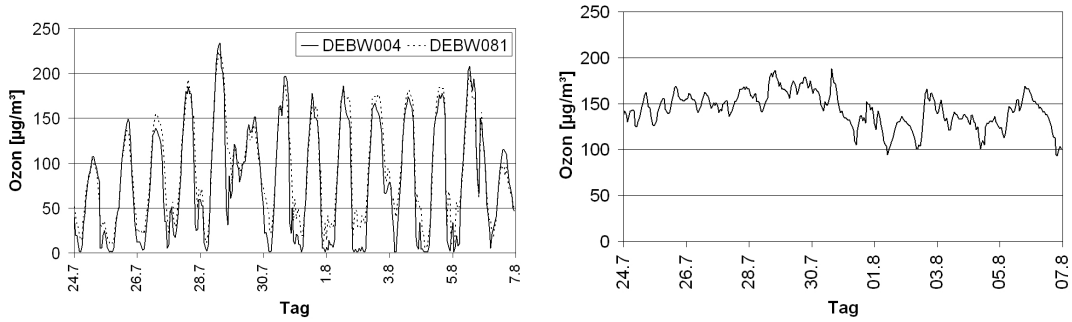
3.3 Typischer zeitlicher Verlauf von Photosmog-Episoden

Während in den Anfängen der Untersuchungen zur Ozonentwicklung noch empirische Untersuchungen die einzige Möglichkeit waren, hat sich mit der weiteren Verbesserung der numerischen Modelle die Gewichtung deutlich verlagert. Somit ist es möglich, viel komplexere Zusammenhänge zu analysieren und zu verstehen. Ein Ergebnis solcher Untersuchungen stellt der Artikel von [Vogel u. a. 2000] dar. Dort wird detailliert die Entwicklung von Photsmog-Episoden beschrieben. Eine kurze Zusammenfassung wird nachfolgend gegeben. Die Aussagen werden am Beispiel des Zeitraumes 24.7. - 6.8.1990 dargestellt.

3.3.1 Typische Tagesgänge während Photosmog-Episoden

Bei der Analyse der Messwerte innerhalb des Zeitraumes sind zwei Phänomene erkennbar. Einerseits sinken an den quellnahen Stationen in der Nacht die Werte auf nahezu Null (Teilbild 3.3 (a)). Dies ist auf die Reaktion von NO mit O_3 zurückzuführen (Gleichung 2.3). Andererseits treten die Maxima in den Nachmittagsstunden auf. Die Messwerte der Bergstationen zeigen ein anderes Verhalten (Teilbild 3.3 (b)). Die Tagesgänge sind deutlich flacher und die Messwerte der Nacht sind deutlich von Null verschieden. Die Maxima treten in den frühen Abendstunden bzw. Nachtstunden auf. Dieses ist ein Hinweis darauf, dass die Messorte auf Bergen nicht unmittelbar in einem Quellgebiet von Ozon Vorläuferstoffen liegen, sondern dass das Ozon herantransportiert wird.

[3] Biogene Quellen sind die Vegetation oder Böden. So geben zum Beispiel Bäume während der Transpiration Terpene und Isopren ab und aus dem Boden wird NO emittiert. Diese Emissionen



(a) *Stadt* (b) *Berg*

Abbildung 3.3. Zeitliche Entwicklung der Ozonkonzentrationen an den Stationen Eggenstein (DEBW004), Karlsruhe Nordwest (DEBW081) (beide Teilbild(a)) und Garmisch-Partenkirchen-Wankgipfel (DEBY082) (Teilbild (b)) in der Zeit vom 24.7.1990 - 06.08.1990

3.3.2 Vertikale Austauschvorgänge

Der zeitliche Verlauf der Ozonkonzentrationen als Vertikalschnitt ist stark von der Kombination aus meteorologischer Situation und den chemischen Auf- und Abbauprozessen abhängig. Während der Ozonaufbau in der gesamten bodennahen Luftschicht stattfindet, tritt der Ozonabbau verstärkt an der Erdoberfläche auf (Abschnitt 2.4).

Zum besseren Verständnis soll hier sehr vereinfacht die vertikale Ozonverteilung als Zeitreihe von einem hypothetischen Nachmittag an einem Strahlungstag bis zum nächsten Tag beschrieben werden. Hervorgerufen durch einen konvektiven / turbulenten Austausch, ist am Nachmittag eine in etwa gleichmäßige Ozonkonzentration, vom Boden bis zur Obergrenze der Mischungsschicht vorhanden. Nachdem der Antrieb für die Ozonproduktion und den konvektiven / turbulenten Austausch sich am Ende des Nachmittags stark verringert, werden die Abbauprozesse besonders in Bodennähe effektiver als die Aufbauprozesse. Daher sinkt die Ozonkonzentration. Wie in Abschnitt 2.4 beschrieben sind hauptsächlich zwei Prozesse dafür verantwortlich: der Ozonabbau innerhalb des Luftpaketes nach Gleichung 2.3 und die trockene Deposition an der Erdoberfläche. Am nächsten Morgen sind die Konzentrationen in Bodennähe deutlich niedriger als in der darüber liegenden Reservoirschicht. Mit dem Einsetzen der konvektiven / turbulenten Durchmischung am Morgen werden die in der Reservoirschicht vorhandenen Luftpakte auch zum Boden transportiert. Somit treten in den Vormittagsstunden teilweise sehr hohe Ozonwerte auf. Diese sind Überreste des Vortages. Ein neuer Tag mit Ozonbildung hat begonnen.

sind die Ursache dafür, dass auch nach der Entfernung aller anthropogenen Luftverunreinigung weiterhin Ozonbildung in Bodennähe auftritt.

Die Bestimmung des genauen zeitlichen Verlaufs von vertikalen Ozonprofilen ist nur über vertikale Sondierungen messbar. Um ein besseres Verständnis der genauen Vorgänge zu erlangen, ist die Nutzung von numerischen Modellen unumgänglich.

3.3.3 Andauer von Ozonepisoden

Im Artikel von [Vogel u. a. 2000] wird auch auf die Dauer von Ozonepisoden eingegangen. Die folgende Tabelle 3.1 vergleicht die Häufigkeit der Andauer von Ozonlagen an drei Stationen in Baden-Württemberg.

Es ist ersichtlich, dass Ozonepisoden nur selten länger als 3 bis 5 Tage dauern. Danach erfolgt häufig eine Umstellung der großräumigen Wetterlage, die zum Ende der Ozonepisode führt. Somit wird die Andauer von Ozonepisoden in Zukunft unter anderen auch davon abhängen, wie sich die Stabilität der Wetterlagen mit der prognostizierten Klimaerwärmung verändert.

Tabelle 3.1. Andauer der Episoden hoher Ozonkonzentrationen ($> 180\mu g/m^3$) in den Jahren 1986 - 1992 aus [Vogel u. a. 2000]

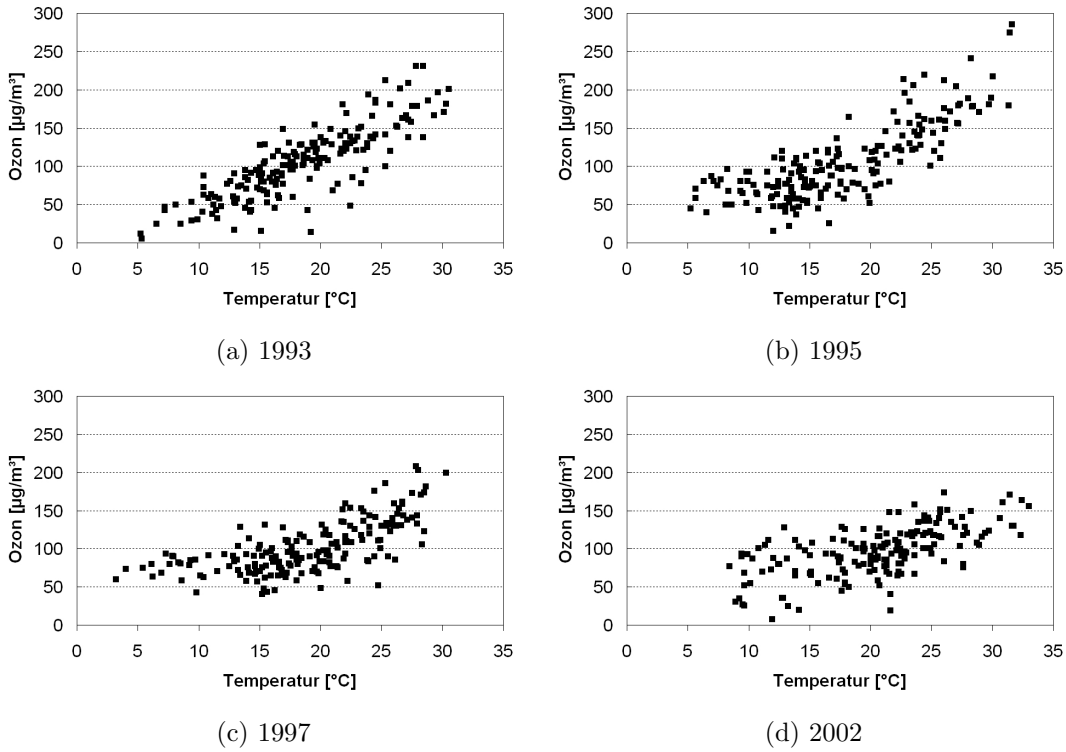
	Anzahl der Tage mit $O_3 > 180\mu g/m^3$		
Dauer in Tagen	Freiburg - Mitte	Schwarzwald - Süd	Weil am Rhein
1	45	37	55
2	19	28	29
3	11	15	10
4	6	9	4
5	7	8	5
6	3	4	3
7	0	4	1

3.3.4 Änderung der Ozonverhältnisse am Beispiel der Station Wiesloch (Baden-Württemberg)

Durch die Änderung der Emissionen infolge strengerer gesetzlicher Auflagen treten auch Änderungen in den Korrelationen zwischen gemessenen Ozonkonzentrationen und anderen Parametern auf. Beispielhaft kann das mit der Abbildung 3.4 gezeigt werden. Im Vergleich der Jahre 1993, 1995, 1997 und 2002 zeigt sich eine deutlich geänderte Korrelation zwischen Temperaturmaximum und Tagesmaximum der Ozonkonzentration (am Beispiel der Station Wiesloch (DEBW010)). Dargestellt werden die Tage von April bis September.

Dieses hat natürlich auch Folgen. So sind die Korrelationen des Jahres 1993 nicht mehr für eine Vorhersage im Jahr 2002 nutzbar. Sollten diese Änderungen in den nächsten Jahren fortschreiten, so muss mit Schwierigkeiten bei statistischen Prognosemethoden gerechnet werden. Eine dynamische Anpassung der Regres-

sionsgleichungen ist hierbei ein Ausweg. Problematisch ist aber nicht nur die geänderte Korrelation sondern auch die Abnahme der Korrelation von $r = 0,84$ (1993) auf $r = 0,64$ (2002).



(a) 1993

(b) 1995

(c) 1997

(d) 2002

Abbildung 3.4. Vergleich der Korrelation zwischen Tagesmaxima Ozonkonzentration und Tagesmaxima Temperatur an der Station Wiesloch (DEBW010), genutzt wurde jeweils der Zeitraum April bis September