

## 3 **Klimatologie der Immissionsregimes von Beobachtung und Modellierung**

### 3.1 **Methodik der Darstellung**

In den folgenden Kapiteln werden die gewonnenen Regimes für jeden Stoff vorgestellt. Getreu dem Ansatz der Arbeit werden dabei die modellierten und beobachteten Zeitreihen möglichst gleichwertig behandelt. Die Bildung der Clusterzentren für die Regimes und damit das Klassifikationsprinzip beruht jedoch nur auf den Beobachtungen. Die Klassifikation der modellierten Zeitreihen erfolgt nachträglich anhand der Zentren der aus den beobachteten Zeitreihen gebildeten Cluster. Jeder beobachteten Jahreszeitreihe entspricht eine modellierte Zeitreihe für den Beobachtungsort.

Der Blick richtet sich zunächst auf die beiden Klassifikationsmerkmale, d. h. die typischen Tagesmittelwerte und normierten Tagesschwankungen. Darüber hinaus werden die typischen Maximalwerte in Form der 98%-Perzentile für jedes Regime diskutiert. Der räumliche Aspekt wird mit Karten der Regimezugehörigkeit für das Jahr 2001 diskutiert. Der Vergleich der typischen Belastung orientiert sich an der Häufigkeit des Auftretens der einzelnen Regimes.

Die Einteilung in Regimes gibt die Möglichkeit, Kriterien zum Aufspüren von Besonderheiten bestimmter Messreihen zu finden. Dies kann eine deutliche Abweichung in der Regimezugehörigkeit für verschiedene Jahre oder eine grundsätzlich andersartige Klassifikation hinsichtlich verschiedener Stoffe sein. Im Rahmen der Arbeit steht diese Aufgabe zwar nicht im Vordergrund, gewisse Auffälligkeiten werden jedoch benannt, um sie in weiteren Untersuchungen zu ergründen.

Der univariate Ansatz (siehe Kapitel 2.3.2.1) berücksichtigt nur unzureichend die Gesamtheit bzw. die Kopplung der Immissionsregimes. Der Vergleich der Cluster für verschiedene Stoffe lässt Rückschlüsse auf die Plausibilität der Clusterung der Stationen zu und wird in Kapitel 3.8. für die Beobachtungen durchgeführt. Dabei werden sowohl die Regimezugehörigkeit für verschiedene Stoffe verglichen, als auch typische Zusammenhänge in der mittleren Belastung für verschiedene Stoffe untersucht.

Die bisher betrachteten Mediane und die 98%-Perzentile charakterisieren die Häufigkeitsverteilung der Messung oder Modellierung an einer Station. Sie widerspiegelt jedoch nicht ein wichtiges Charakteristikum der Zeitreihe: den Zusammenhang der Datenwerte in der zeitlichen Abfolge, d. h. deren zeitliche Autokorrelation. Es ist notwendig, auch die typischen Zyklen der Immission regimeabhängig zu erfassen. Dies kann mit einer Frequenzanalyse<sup>49</sup> erfolgen. Es wird in dieser Arbeit aber darauf verzichtet, da hierbei Voraussetzungen<sup>50</sup> gemacht werden müssen, deren gründliche Über-

---

<sup>49</sup> Zerlegung in eine Fourierreihe aus Sinus- und Cosinusfunktionen

<sup>50</sup> z. B. Stationarität oder die Länge einer Zeitreihe für langwellige Schwankungen wie dem Jahresgang

prüfung sehr aufwendig ist. Das gilt auch für die Untersuchung und Signifikanzprüfung von linearen Trends. Weiterhin werden Zyklen, die nur bedingt durch eine harmonische Schwingung beschrieben sind (z. B. der Wochengang), nur unzureichend durch eine Frequenzanalyse aufgespürt.

Es wurde in der vorliegenden Untersuchung überprüft, inwieweit zu erwartende Zyklen der Immission in Beobachtungen und Modellrechnung zu erkennen sind. Die Zyklen innerhalb des Tages, der Woche, des Jahres und des gesamten Zeitraums werden möglichst voraussetzungsfrei mit den Mitteln der explorativen Statistik erfasst. Dazu werden die typischen Immissionswerte pro Stunde, Wochentag, Monat und Jahr zusammengefasst und dargestellt.

## 3.2 Regimes der Ozonimmission

2373 Jahreszeitreihen von 445 Stationen wurden klassifiziert. Die stabilsten Cluster ergeben sich bei einer logarithmischen Transformation des Tagesmittelwertes (P50ME) und einer gleichwertigen Bewertung der normierten Tagesschwankung (P50TA). Die stabile Trennung der Regimes tritt demzufolge in Abhängigkeit von beiden Merkmalen ein. Die Variabilität der Jahre (siehe 2.3.2.5) hat keinen ausgeprägten Einfluss auf die Klassifikation. Abbildung 3.1 zeigt die Abweichung der Regimezugehörigkeit für einzelne Jahre von der Gesamtklassifikation (siehe 2.3.2.5). Das Jahr 2000 zeigt die repräsentativste Klassifikation hinsichtlich des gesamten Zeitraums. Für 17 Stationen ergaben sich größere jährliche Variationen in den Regimes, d. h. größer als eine Clusterstufe. Das Regime dieser Stationen änderte sich im Verlauf der Jahre meist zu einem mehr ländlichen Charakter.

Die Lage der Cluster im Raum der Variablen ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Es wird deutlich, dass die normierte Tagesschwankung und die mittlere Belastung gut negativ korreliert sind. Das Streudiagramm der entsprechenden modellierten Zeitreihen zeigt einen ähnlichen Zusammenhang von mittlerer Belastung und Variabilität. In der Modellrechnung ist die Tagesschwankung bei gleicher mittlerer Belastung stärker ausgeprägt. Die Anzahl der Jahreszeitreihen pro Regime zeigt jedoch zwischen Beobachtung und Modell deutliche Unterschiede (Abbildung 3.4). Die Modellrechnung ergibt für die Mehrheit der Stationen ein urbanes Regime. Dies entspricht nicht der Erwartung, da aus der Modellskala zu erwarten wäre, dass das Modell eher die ländlichen Regimes wiedergeben würde.

Ein Median des Tagesmittelwerts über ca. 30 ppb ( $60\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) zeichnet die Regime der Berg-Stationen<sup>51</sup> (B) aus. Ländliche und Vorstadt-Stationen weisen Werte zwischen 20 und 30 ppb ( $20\text{-}40\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) auf. Die typischen Tagesmittelwerte der verkehrsnahen Stationen (S) liegen unter ca. 10 ppb ( $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ ), der Rest der urbanen Stationen (U2, U3) liegt im Bereich dazwischen.

Die beobachteten und modellierten Maximalwerte (98%-Perzentil des Tagesmaximums P98MA) erreichen Werte im Bereich zwischen 50-100 ppb ( $100\text{-}220\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) (Abbildung 3.2). Sie sind damit ca. 3mal so hoch wie die typischen Tagesmittelwerte. Es muss jedoch betont werden, dass die Höhe der Maximalwerte – im Gegensatz zu den typischen Werten – nicht vom beobachteten Regime abhängt<sup>52</sup>. Bei den modellier-

<sup>51</sup> hierzu gehören auch einige Küsten-Stationen (siehe Kapitel 3.3)

<sup>52</sup> Dies ist bei der Ozonprognose von Interesse, da Verkehr-Stationen auch Überschreitungen von 90ppb ( $180\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) aufweisen können.

ten Maximalwerten ist Regime-Abhängigkeit ähnlich schwach ausgeprägt. Hier sind die höchsten Maximalwerte bei den Stationen des Clusters U3 simuliert worden.

Deutlich unterscheiden sich die Regimes bei der Betrachtung der Tagesminima, die stark von der NO-Immission und der Deposition abhängen. Sie nehmen mit zunehmendem Verkehrseinfluss beständig ab.

Die Karte der Ozon-Regimes zeigt den Skalenunterschied zwischen Beobachtung und Modellrechnung (Abbildung 3.5). Die Modellrechnung ordnet großflächig dem Ruhrgebiet das Verkehrsregime S zu, während die Beobachtung das Regime U3 (belastete Stadt) ergibt. Einzelne Stationen im belasteten urbanen Regime (U3) werden vom Modell nicht erfasst. Statt dessen ist großflächig eine zu urbane Charakteristik der Modellrechnung in großen Teilen Nord- und Ostdeutschlands zu erkennen. Die ländlichen Regimes in Küstennähe, z. B. in Mecklenburg Vorpommern werden vom Modell und der Beobachtung wiedergegeben.

## AQ-Regimes Variation 1995-2001 O3 OBS

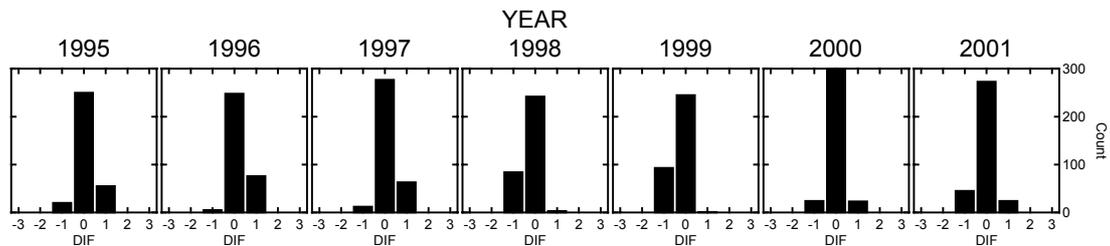


Abbildung 3.1 Unterschiede in der Klassifizierung (DIF) von Ozon-Regimes der beobachteten Jahreszeitreihen zu der Klassifikation des gesamten Zeitraumes. DIF = 0 bedeutet Übereinstimmung, positive Werte bedeuten mehr Regimes mit geringerer Immission.

## O3 Maxima

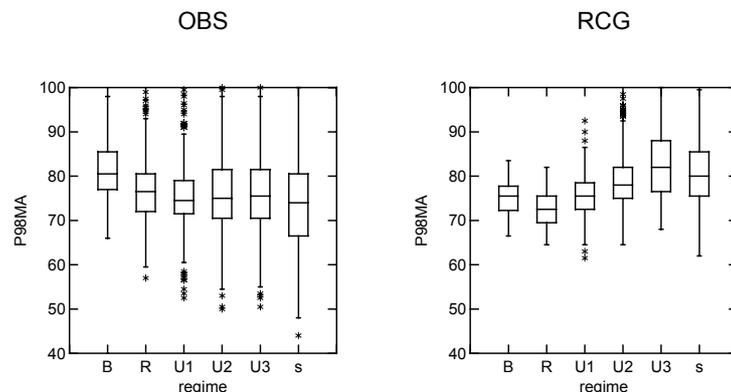


Abbildung 3.2 Box-Whiskers-Plot der 98%-Perzentile des Tagesmaximums (P98MA) in ppb in Abhängigkeit vom Regime für Beobachtung (links, OBS) und Modellrechnung (rechts, RCG)

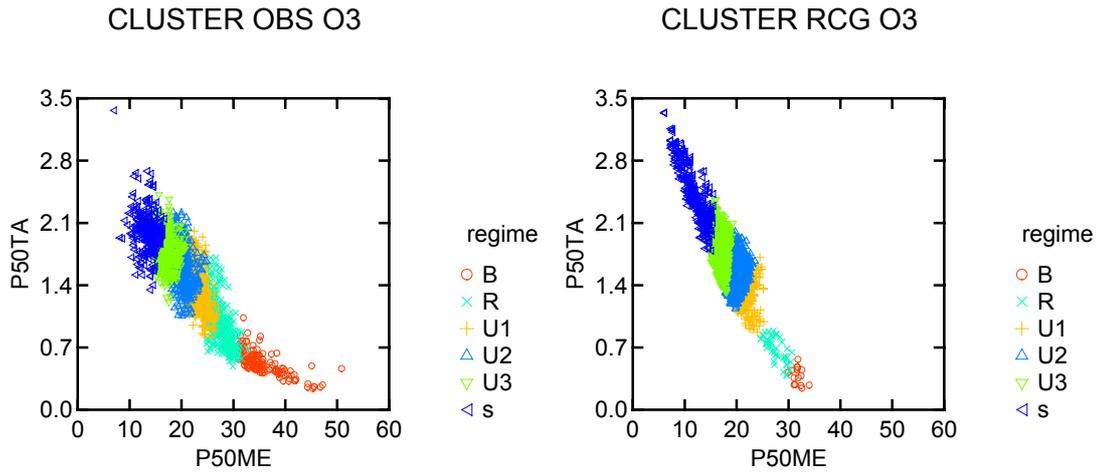


Abbildung 3.3 Streudiagramm der Parameter Median des Tagesmittelwertes (P50ME in ppb) und Median der normierten Tagesschwankung (P50TA) der Ozonjahreszeitreihen und die Lage der Cluster aus der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts)

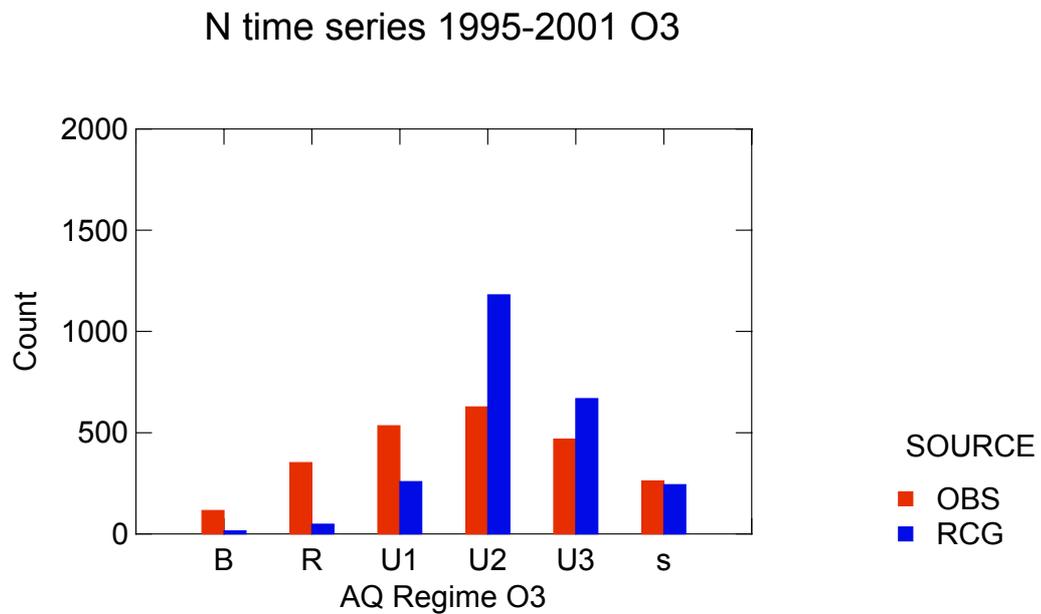


Abbildung 3.4 Anzahl der Jahreszeitreihen pro Regime (AQ Regime O3) aus der Beobachtung (OBS) und der Modellierung (RCG)

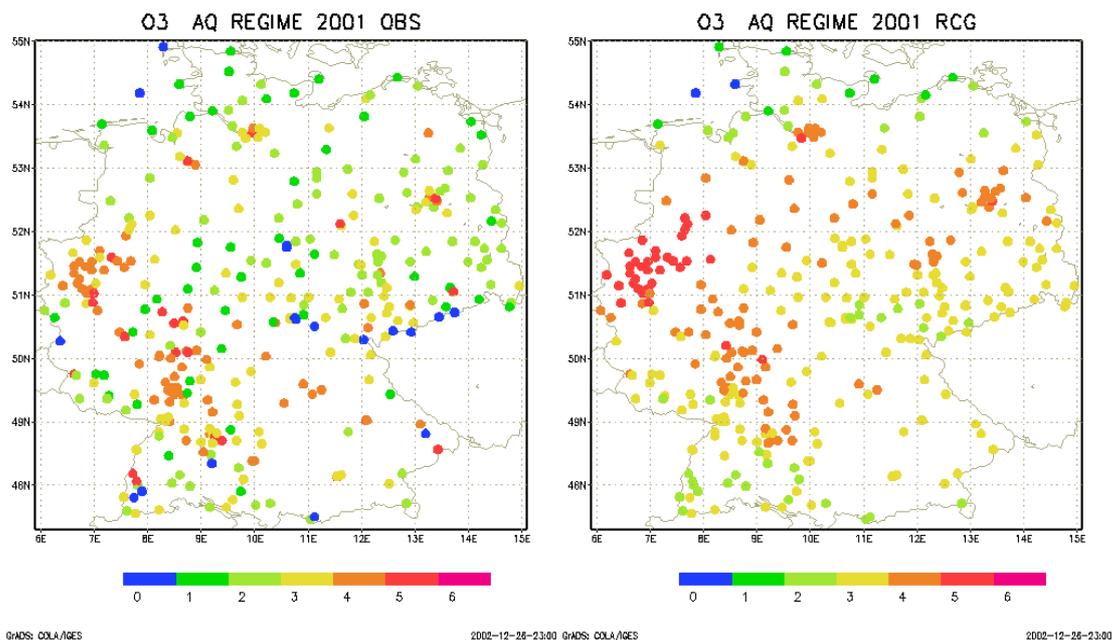


Abbildung 3.5 Karten der Ozon-Regimes für 2001 aus der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts) (O=B, 1=R, 2=U1, 3=U2, 4=U3, 5=S)

### 3.3 Vergleich mit der UBA-Klassifikation für die Ozon-Regimes

Für die Bewertung und Interpretation der ermittelten Gesamtklassifikation für Ozon ist eine Gegenüberstellung mit der UBA-Klassifikation (siehe 2.2) notwendig. Die Kontingenztafel für die Übereinstimmung der beiden Klassifikationen enthält Tabelle 6. Der Vergleich ergibt eine sehr gute und plausible Übereinstimmung in den Zugehörigkeiten.

Die Anzahl Berg-Stationen wird durch die neue Klassifikation vergrößert. Cluster 0 beinhaltet alle 8 Berg-Stationen (UBA) und weitere 7 ländliche Stationen. Die Zuordnung ist stabil. In allen Jahren mit verfügbaren Jahreszeitreihen wurden diese Stationen immer diesem Cluster zugeordnet. Es handelt sich hauptsächlich um Stationen, denen aufgrund der Höhenlage eine Bergcharakteristik zugesprochen werden kann (z. B. TH027 Neuhaus 840 m NN und SN052 Zinnwald 877 m NN). Die Turmmessung in Berlin-Frohnau (BE037, ohne UBA-Klassifikation) gehört gleichfalls diesem Cluster an. Eine Besonderheit sind die Küsten-Stationen Westerland (UB001) und Helgoland (UB034). Der Grund für diese Zuordnung liegt in der herabgesetzten Deposition von Ozon auf Wasserflächen<sup>53</sup>. Die Küsten-Stationen haben bei Seewind ein den Berg-Stationen vergleichbares Regime, da auch hier der nächtliche Ozonabbau durch Deposition gering ist<sup>54</sup>.

<sup>53</sup> Die Form des Tagesganges in Westerland hängt stark von der Windrichtung ab (Beilke und Uhse, 1999)

<sup>54</sup> Aus den Rechnungen mit dem Modell REM3 ist bekannt, dass die Gitterpunkte über dem Meer ein ähnliches Verhalten wie die der zweiten Modellschicht (Mischungsschicht) über Land haben.

Etwas größere Unterschiede ergeben sich bei der Einteilung der ländlichen Stationen. Das Cluster 1 (R, Land-Station) wird mehrheitlich aus 49 ländlichen Stationen und weiteren 8 Stadt-Stationen gebildet. Von diesen urbanen Stationen, die nun als ländlich eingestuft werden, stammen allein 6 aus Brandenburg.

Die große Gruppe der Stadt-Stationen (UBA-Typ) ist sinnvoll in die drei Regimes „Vorstadt“, „Stadt“ und „belastete Stadt“ (U1, U2, U3) unterteilt. So setzt sich Cluster 2 („Vorstadt“) aus 11 ländlichen und 60 Stadt-Stationen des UBA-Typs zusammen. Von den Stadt-Stationen des Clusters (U2) sind 115 städtisch nach der UBA-Klassifikation und 5 verkehrsnah<sup>55</sup> (BW002, BW033, BW042, BW065, HE014). Das neu gebildete Regime U3 (belastete Stadt) besteht aus 37 städtischen und 23 verkehrsbelasteten Stationen nach der UBA-Klassifikation. Das Regime S der verkehrsbelasteten Stationen beinhaltet 40 Verkehr-Stationen nach der UBA-Klassifikation und drei städtische Stationen (BW072, HB002, RP023).

		Cluster der Ozonimmission						
UBA-Klassifikation	Regime	B	R	U1	U2	U3	S	Total
	B	8	0	0	0	0	0	8
	R	7	49	11	0	0	0	67
	U	0	8	60	115	37	3	223
	S	0	0	0	5	23	40	68
	keine	4	15	18	29	8	5	79
	Total	19	72	89	149	68	48	445

**Tabelle 6 Vergleich der Zugehörigkeit der Stationen nach der hier vorgelegten Klassifikation (Clusterung der Ozonimmission) und der Ozonklasse nach UBA-Typ.**

### 3.4 Regimes der NO<sub>2</sub>-Immission

Es wurden 2882 Zeitreihen von 583 deutschen Messstationen in sechs Regimes klassifiziert. Es handelt sich dabei um fünf Regimes analog zur Klassifikation von Ozon (R, U1, U2, U3, S) sowie ein zusätzliches Regime der extremen Verkehrsbelastung (S2) (siehe Tabelle 4). Die stabilsten Cluster bilden sich bei einer sehr hohen Bewertung des Tagesmittelwerts (P50ME). Die mittlere Belastung ist damit das entscheidende Kriterium für die Klassifikation.

Die Variabilität der Jahre (siehe Kapitel 2.3.2.5) bewirkt keine deutlichen Unterschiede in der Klassifikation. Abbildung 3.6 zeigt die Differenzen der Regimezugehörigkeit für die einzelnen Jahre mit der für den gesamten Zeitraum abgeleiteten. Daraus wird ersichtlich, dass die Jahre 1998 und 99 hinsichtlich der Regimeeinteilung der Beobachtungen die größte Gültigkeit für den Gesamtzeitraum besitzen.

Die Lage der Cluster im Raum der Variablen der Beobachtung und der Modellrechnung ist in

Abbildung 3.8 dargestellt. Die Cluster zeichnen sich durch eine kontinuierliche Zunahme der mittleren Belastung (P50ME) aus. Modellrechnung und Beobachtung befinden sich annähernd im gleichen Bereich der typischen Belastung. Anders als bei Ozon ist die normierte Tagesschwankung im Modell bei hoher Belastung deutlich geringer als in der Beobachtung. Die Modellrechnung ergibt für die deutliche Mehrheit der

<sup>55</sup> Diese Station zeigte eine Abnahme des Verkehrseinflusses im Verlauf der Jahre 1996-99.

Jahreszeitreihen ein ländliches und urbanes Regime (Abbildung 3.9). Dies steht im Widerspruch zu der modellierten Ozonimmission, die einen zu urbanen Charakter besitzt.

Bei den Stationen des Clusters 6 (S2, extremer Verkehr) liegen die Mediane der Tagesmittelwerte über ca.  $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (30 ppb). Die ländlichen Stationen (R) haben Werte, die kleiner als  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (10 ppb) sind. Stationen des suburbanen Regimes haben eine leicht erhöhte normierte Tagesschwankung im Vergleich zu den übrigen Regimes.

Die Maximalwerte (98%-Perzentile) der  $\text{NO}_2$ -Beobachtungen zeigen eine deutliche Regimeabhängigkeit: Höhere mittlere Belastung führt zu höheren Maximalwerten (Abbildung 3.7). Der mögliche Bereich reicht von 20-110 ppb (40 bis  $220 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Die belasteten Regimes der Modellrechnung erreichen nicht die Höhe der Beobachtung. Die höchsten Werte für das 98%-Perzentil des Tagesmaximums liegen bei 60 ppb ( $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

Das Ruhrgebiet wird vom Modell wie bei Ozon großflächig mit überschätzter Immission wiedergegeben (Abbildung 3.10). Die großflächig hohe  $\text{NO}_2$ -Immission im Oberrheingraben und Bayern ist nur schwach angedeutet. Da Bayern aber fast keine Messungen im ländlichen Regime durchführt, entsteht bei einer ausschließlich auf Messungen basierenden Kartierung der Eindruck einer großräumigen Belastung, obwohl die Messungen nur für Gebiete mit erhöhter Emission repräsentativ sind. Modellinformationen können hier helfen, um strukturierte, d. h. die ländlichen wie die städtischen Regimes wiedergebende Immissionskarten zu erstellen.

Bei der Charakterisierung des Immissionsregimes in Norddeutschland stimmen Modell und Beobachtung gut überein.

## AQ-Regimes Variation 1995-2001 $\text{NO}_2$ OBS

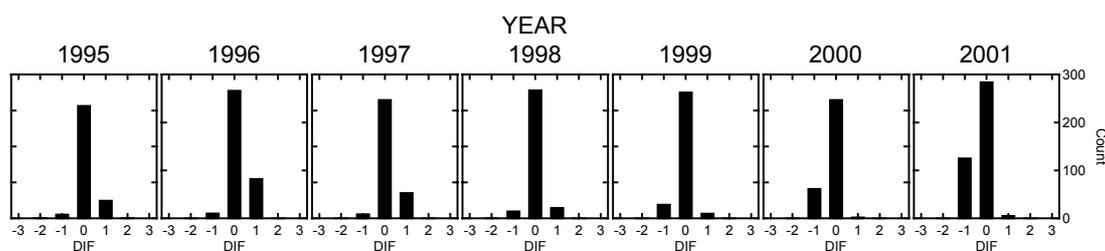


Abbildung 3.6 Unterschiede in der Klassifizierung (DIF) von  $\text{NO}_2$ -Regimes der beobachteten Jahreszeitreihen zu der Klassifikation des gesamten Zeitraumes. DIF = 0 bedeutet Übereinstimmung, positive Werte bedeuten mehr Regimes mit höherer Immission.

## NO<sub>2</sub> Maxima

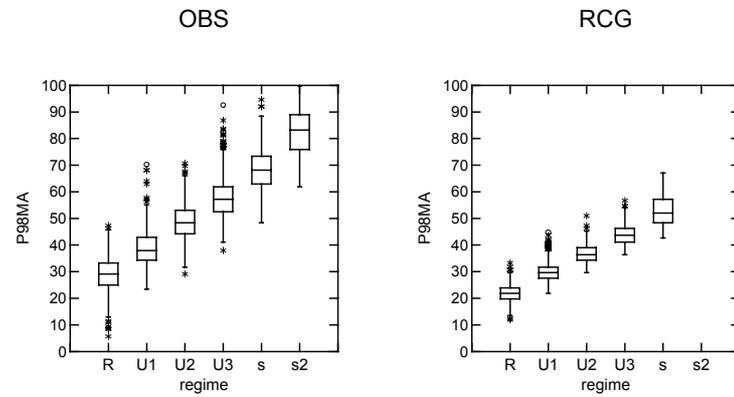


Abbildung 3.7 Box-Whiskers-Plot der 98%-Perzentile des Tagesmaximums (P98MA in ppb) in Abhängigkeit von Regime für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts).

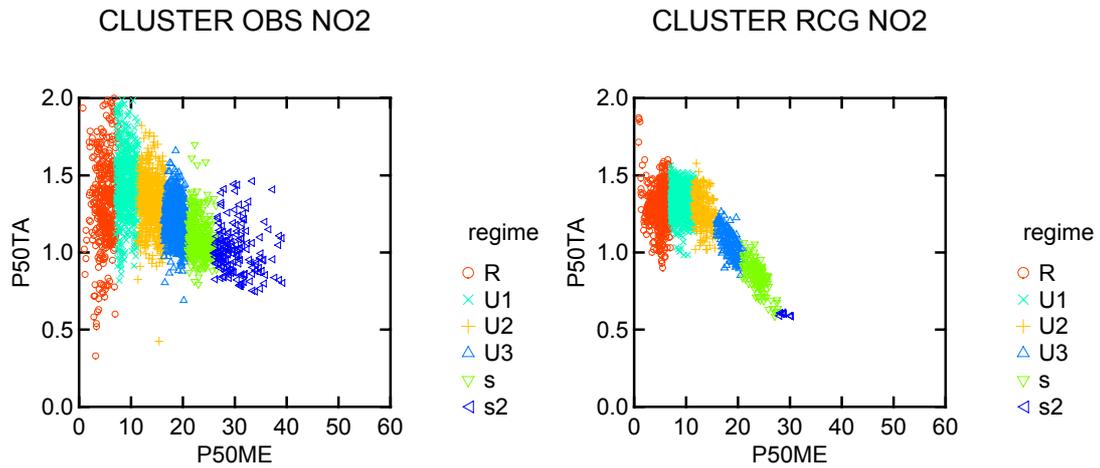


Abbildung 3.8 Streudiagramm der Parameter Median des Tagesmittelwertes (P50ME in ppb) und Median der normierten Tageschwankung (P50TA) der NO<sub>2</sub>-Jahreszeitreihen und die Lage der Cluster aus der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts).

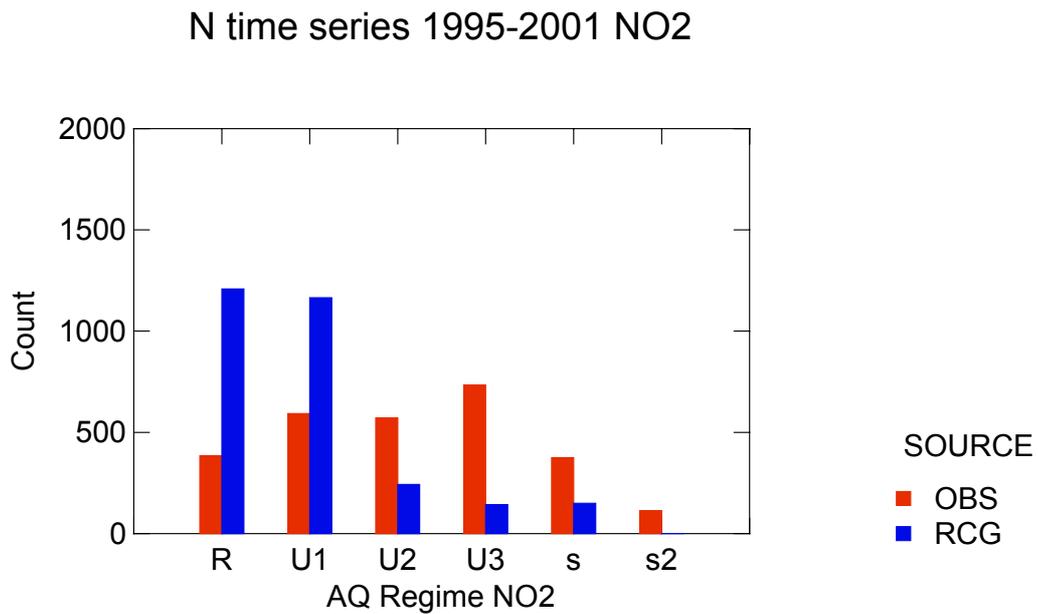


Abbildung 3.9 Anzahl der Jahreszeitreihen pro Regime (AQ-Regime NO<sub>2</sub>) aus der Beobachtung (OBS) und der Modellierung (RCG)

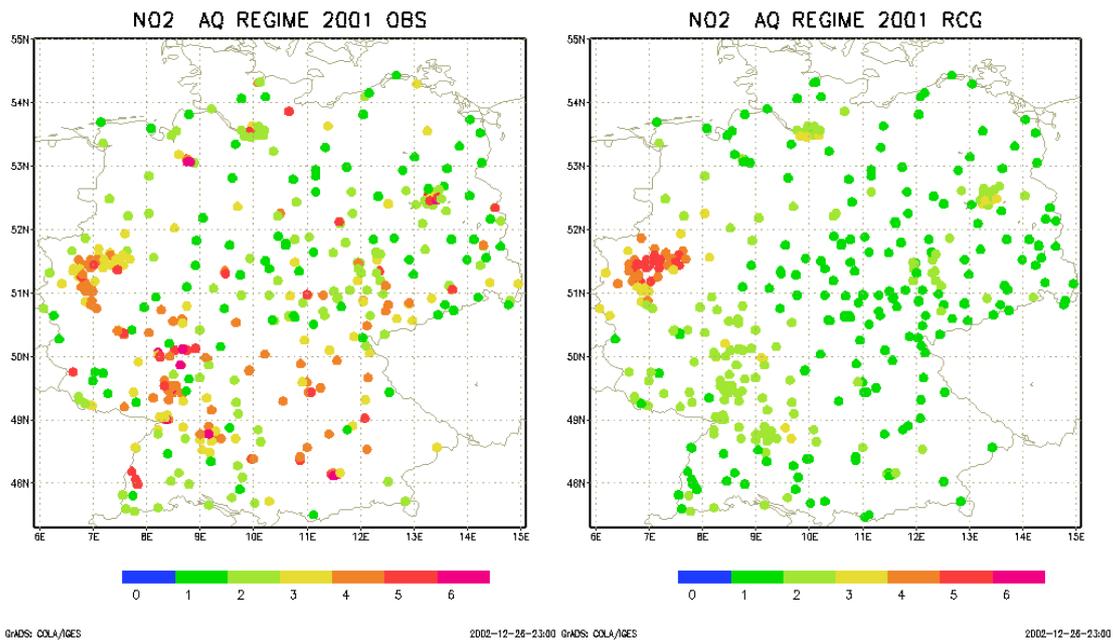


Abbildung 3.10 Karten der NO<sub>2</sub>-Regimes für 2001 der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts) (1=R, 2=U1, 3=U2, 4=U3, 5=S, 6=S2)

### 3.5 Regimes der NO-Immission

580 Stationen mit insgesamt 2650 NO-Jahreszeitreihen wurden klassifiziert. Die stabilsten Clusterergebnisse ergeben sich bei der logarithmischen Transformation der

Tagesmittelwerte, wodurch die Unterschiede in den weniger belasteten Regimes deutlicher zu Geltung kommen. Die normierte Tagesschwankung hat für das stabilste Clusterungsergebnis keine ausgeprägte Bedeutung.

Für die unterschiedlichen Jahre ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung der Klassifikation (Abbildung 3.11); wie bei NO<sub>2</sub> sind die Jahre 1998 und 99 am repräsentativsten für den Gesamtzeitraum.

Die Lage der Cluster im Raum der Variablen ist in Abbildung 3.13 zu finden. Die Objekte der Beobachtung sind in einem trompetenförmigen Strang angeordnet. Bei geringen Tagesmittelwerten kann die Tagesschwankung sehr verschieden<sup>56</sup> sein. Die Unterschiede zwischen Cluster R (ländlich) und U1 (suburban) sind nur in einer logarithmischen Darstellung wahrnehmbar. Die Trennung zwischen diesen Objekten ist problematisch, da es sich um Werte in der Nähe der unteren Messbereichsgrenze handelt.

Bei den modellierten Zeitreihen haben die ländlichen Objekte alle eine stark ausgeprägte Tagesschwankung, bei den Zeitreihen mit höherer Belastung ist die Variabilität etwas geringer als bei den Beobachtungen.

Den urbanen Regimes (U2, U3) werden typische Tagesmittelwerten im Bereich von 8-20 ppb (10-24 µg/m<sup>3</sup>) zugeordnet. Höhere Belastung weisen die verkehrsbeeinflussten Regimes S und S2 auf. Letzteres ist durch Mediane des Tagesmittelwertes von über 35 ppb (40 µg/m<sup>3</sup>) gekennzeichnet.

Die Mehrheit der Jahreszeitreihen der Modellrechnung besitzt ländlichen oder Vorstadt-Charakter, während das bei der Beobachtung nur für einen sehr geringen Anteil der Fall ist (Abbildung 3.14). Dies ist verständlich in Anbetracht der kurzen Lebensdauer von NO und der Auflösung des Modells von 25\*25 km<sup>2</sup>. In Anbetracht dieser Tatsache deutete es auf eine lokale Überschätzung der NO-Konzentration durch die Modellierung hin, wenn für einige Zeitreihen die Regimes „Straße“ und „Straße extrem“ bestimmt werden.

Die hohen Tagesmaxima für NO (98%-Perzentil) können bis zu 600 ppb (700 µg/m<sup>3</sup>) erreichen (Abbildung 3.12). Die maximalen Werte sind damit ca. 20mal größer als die Mediane der stündlichen Zeitreihen. Die Maximalwerte der Modellierung sind ungefähr halb so groß wie die der Beobachtung.

Die zu erwartenden Maximalwerte steigen mit zunehmender mittlerer Belastung an. Nur die Stationen des Clusters 2 (U1) haben geringere Maximalwerte als die des ländlichen Regimes R, obwohl die typischen Werte (P50ME) etwas höher sind. Dieser Umstand ist mit dem schwachen, aber vorhandenen Einfluss der normierten Tagesschwankung bei der Clusterung zu begründen. In den Ergebnissen für Modellrechnungen, bei denen normierte Tagesschwankung und mittlere Belastung stark negativ korreliert sind, ist dieser Zusammenhang nicht zu finden.

Aufgrund der kurzen Lebensdauer von NO ist nicht zu erwarten, dass die unregelmäßig verteilten Stationsorte des Regimes „Straße extrem“ vom Modell wiedergegeben werden (Abbildung 3.15). Das Niveau der großflächigen NO-Belastung im Ruhrgebiet (U3) sowie Nord- und Ostdeutschland (R, U1) stimmt in Beobachtung und Modellrechnung überein.

---

<sup>56</sup> Es muss die Wirkung der Normierung, die bei kleinen Mittelwerten zu großen Unterschieden führen kann, beachtet werden.

## AQ-Regimes Variation 1995-2001 NO OBS

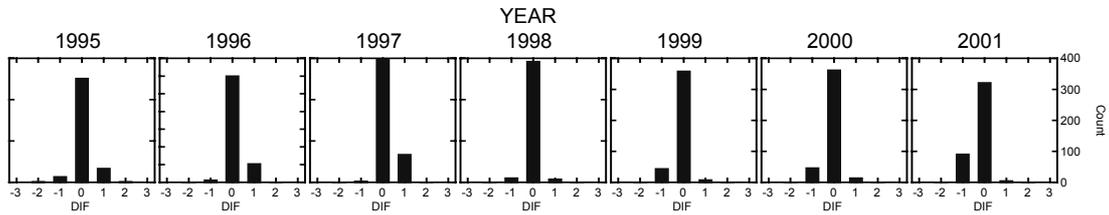


Abbildung 3.11 Unterschiede in der Klassifizierung (DIF) von NO-Regimes der beobachteten Jahreszeitreihen zu der Klassifikation des gesamten Zeitraumes. DIF = 0 bedeutet Übereinstimmung, positive Werte bedeuten mehr Regimes mit höherer Immission.

## NO Maxima

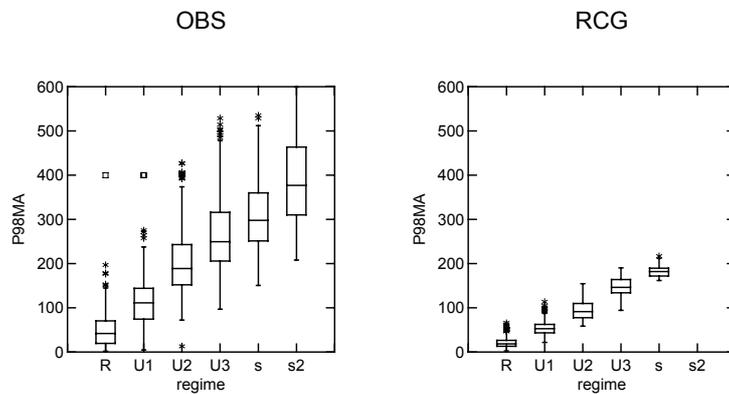


Abbildung 3.12 Box-Whiskers-Plot der 98%-Perzentile des Tagesmaximums (P98MA in ppb) in Abhängigkeit vom Regime für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts).

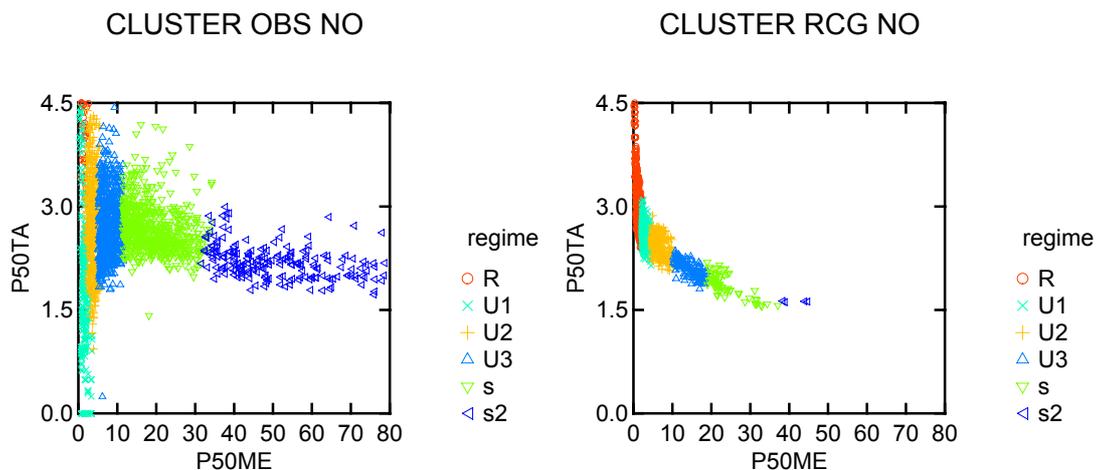


Abbildung 3.13 Streudiagramm der Parameter Median des Tagesmittelwertes (P50ME in ppb) und Median der normierten Tagesschwankung (P50TA) der NO-Jahreszeitreihen sowie die Lage der Cluster aus der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts).

N time series 1995-2001 NO

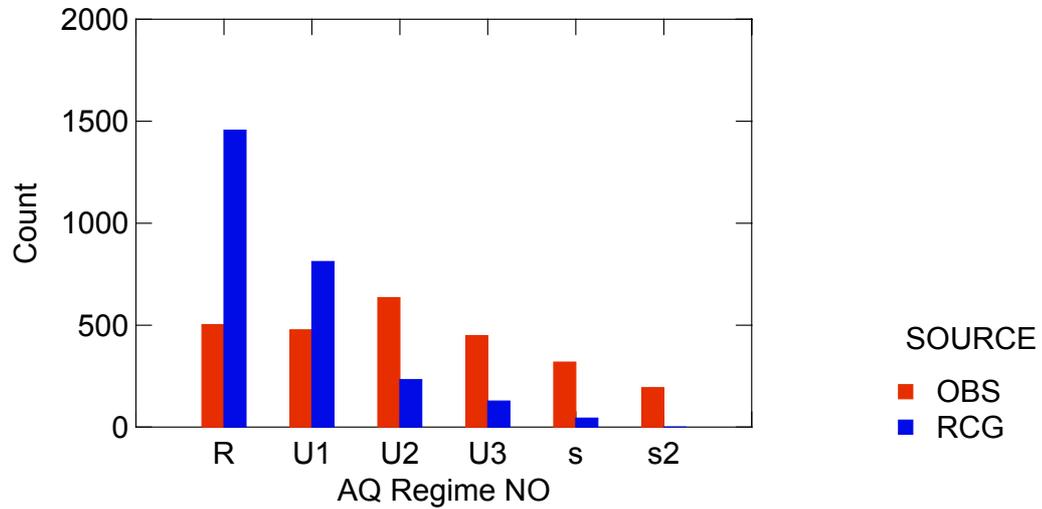


Abbildung 3.14 Anzahl der Jahreszeitreihen pro Regime aus der Beobachtung (OBS) und der Modellierung (RCG)

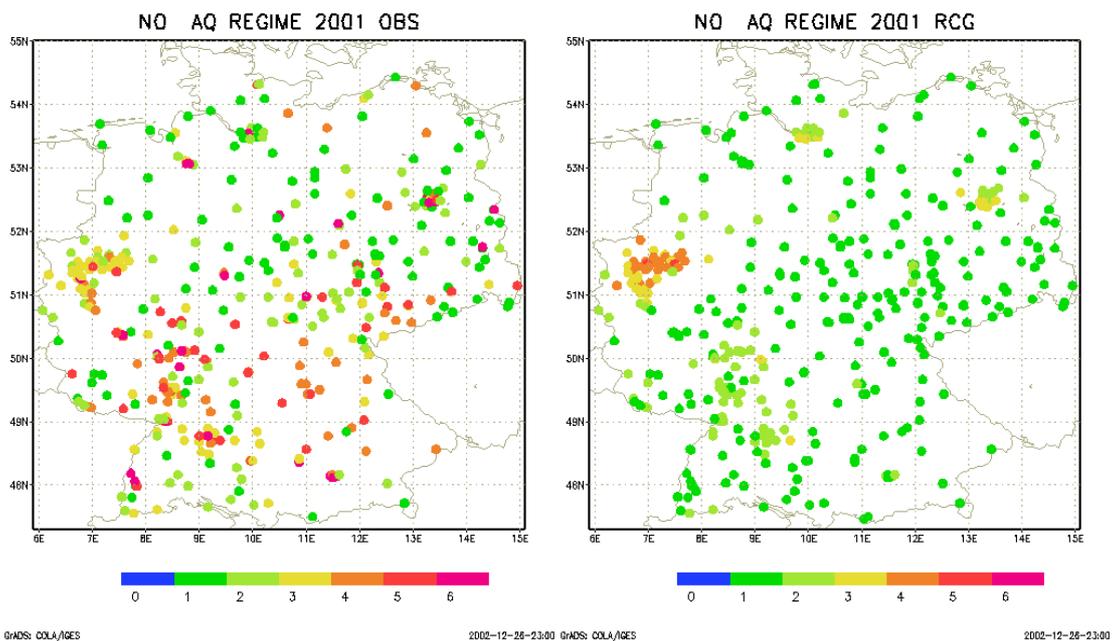


Abbildung 3.15 Karten der NO-Regimes für 2001 der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts) (1=R, 2=U1, 3=U2, 4=U3, 5=S, 6=S2) für 2001

### 3.6 Regimes der SO<sub>2</sub>-Immission

Da die SO<sub>2</sub>-Immission nicht unbedingt mit Verkehrsemission verbunden ist, können die gebildeten Cluster nicht die Bezeichnungen der Ozon- und NO<sub>x</sub>-Regimes erhalten. Es wird hier und bei PM<sub>10</sub> von Belastungsstufen 1 bis 5 gesprochen.

582 Stationen wurden auf Basis von 2770 Jahreszeitreihen klassifiziert. Bei den Stabilitätstests (siehe 2.3.2.4) ergab sich, dass eine Berücksichtigung der normierten Tageschwankung keine sinnvolle Zusatzinformation für eine Trennung der Regimes liefert. Die Unterscheidung erfolgte aufgrund der Tagesmittelwerte, die logarithmisch transformiert wurden.

Für die Jahre 1995-01 ergaben sich deutliche Unterschiede in den Klassifikationen, die auf die deutschlandweite sowie die mittel- und osteuropäische Reduzierung der SO<sub>2</sub>-Emissionen zurückgehen. Um dies zu verdeutlichen, werden nicht die Abweichungen von der Gesamtklassifikation, sondern die Anzahl der Jahreszeitreihen pro Regime für jedes Jahr aus Beobachtung und Modellrechnung gezeigt (Abbildung 3.16 und Abbildung 3.17). Am Anfang des Zeitraumes sind die beiden höchsten Belastungsstufen 4 und 5 das Regime der Mehrheit der Messreihen. Im Jahr 2001 werden nur sehr wenige Zeitreihen diesen Regimes zugeordnet. Statt dessen sind für die Überzahl die Regimes 1 und 2 gültig.

In der Modellrechnung wird die sinkende SO<sub>2</sub>-Emission durch die jahresabhängige Modifizierung der Basisemission 1995 berücksichtigt. Hier zeigt sich die Verschiebung von Belastungen der Stufe 3 zu den gering belasteten Regimes. Die Abnahme der Anzahl der Jahreszeitreihen in den hochbelasteten Regimes ist bei der Modellrechnung weniger stark ausgeprägt.

Die Lage der Cluster im Raum der Variablen ist in Abbildung 3.19 für Beobachtung und Modellrechnung dargestellt. Hinsichtlich der mittleren beobachteten und modellierten Belastung werden ähnliche Bereiche wiedergegeben. Die Tagesschwankung ist jedoch bei den Beobachtungen deutlich stärker ausgeprägt.

Das Cluster 5 der höchsten Belastung beinhaltet Stationen, deren Median größer als ca. 10 µg/m<sup>3</sup> ist und überdeckt einen großen Bereich bis zu 35 µg/m<sup>3</sup>. Für das Jahr 2001 gehört nur die Station NW021 (Bottrop) diesem Cluster an. Auch die Modellrechnung ordnet für 2001 dieser Station und weiteren 22 in Nordrhein/Westfalen das Cluster 5 zu.

Die niedrigste Belastungsstufe 1 hat typische Tagesmittelwerte kleiner als 3 µg/m<sup>3</sup>. Der Bereich bis zu 10 µg/m<sup>3</sup> wird durch die Regimes 2 bis 4 abgedeckt.

Die Maximalwerte der SO<sub>2</sub>-Immission steigen wie bei NO<sub>2</sub> mit zunehmender mittlerer Belastung an. Diese beobachteten Maxima sind ca. 10mal höher und die der Modellierung ca. 5mal höher als die mittleren Werte (Abbildung 3.18).

Die Karte der räumlichen Lage der Messstationen und ihrer Regimes gilt für das Jahr 2001 und weist demzufolge nicht mehr die hohen Belastungen der Jahre 1995-96 auf. Ähnlich wie bei NO<sub>2</sub> ist das Ruhrgebiet großräumig belastet und das Modell liefert höhere Werte als die Messung. Die Beobachtung ergibt für gewisse Stationen in Thüringen und Sachsen-Anhalt erhöhte SO<sub>2</sub>-Immission, während das Modell diese an der Grenze zu Tschechien und Polen lokalisiert.

## AQ-Regimes 1995-2001 SO2 OBS

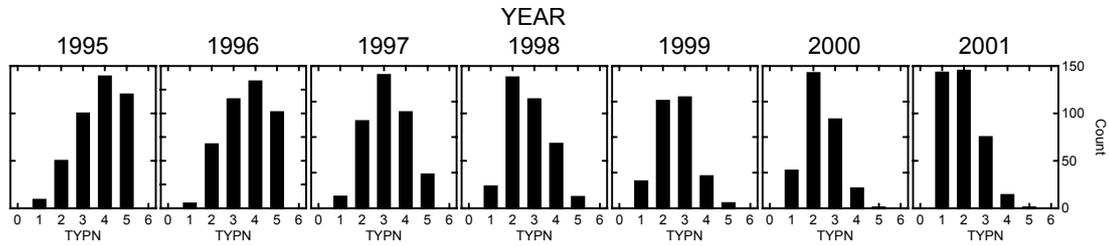


Abbildung 3.16 Anzahl der Stationen pro SO<sub>2</sub>-Immissionregime für die Jahre 1995-2001 aus der Beobachtung

## AQ-Regimes 1995-2001 SO2 RCG

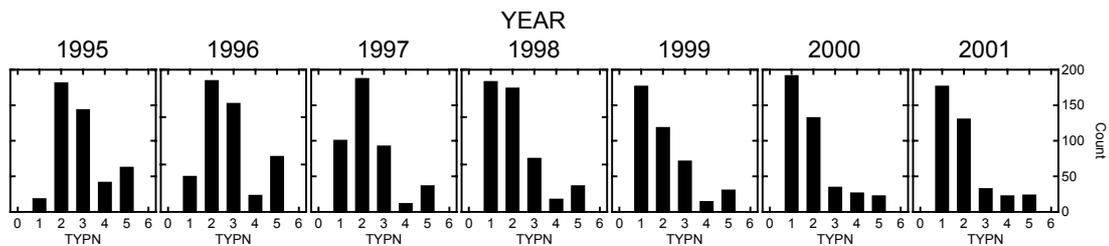


Abbildung 3.17 Anzahl der Stationen pro SO<sub>2</sub>-Immissionregime (TYPNN=1-5) für die Jahre 1995-2001 aus der Rechnung

## SO2 Maxima

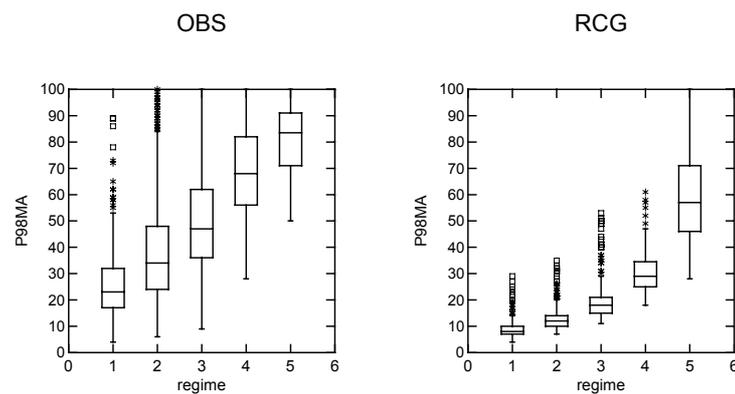


Abbildung 3.18 Box-Whiskers-Plot der 98%-Perzentile des Tagesmaximums (P98MA in µg/m<sup>3</sup>) in Abhängigkeit vom Regime für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts)

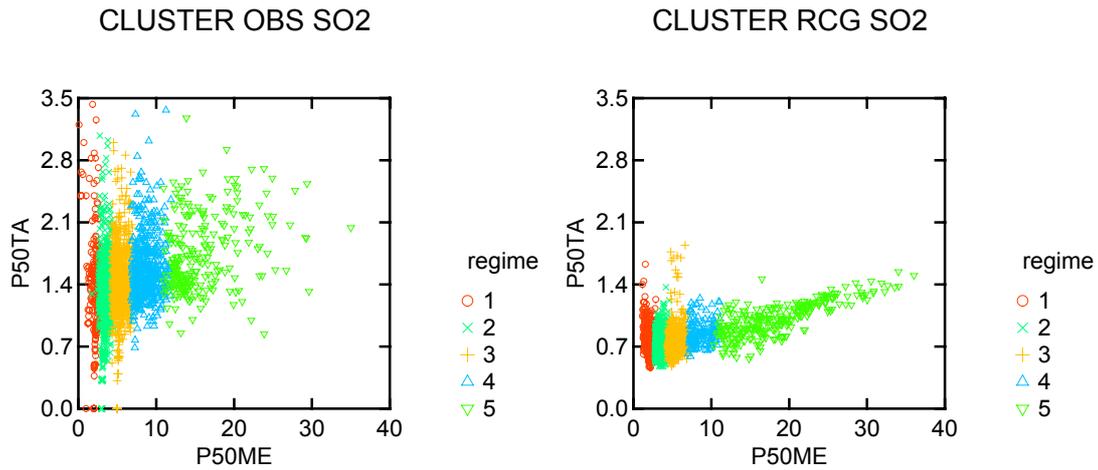


Abbildung 3.19 Streudiagramm der Parameter Median des Tagesmittelwertes (P50ME in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) und Median der normierten Tagesschwankung (P50TA) der  $\text{SO}_2$ -Jahreszeitreihen und die Lage der Cluster aus der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts).

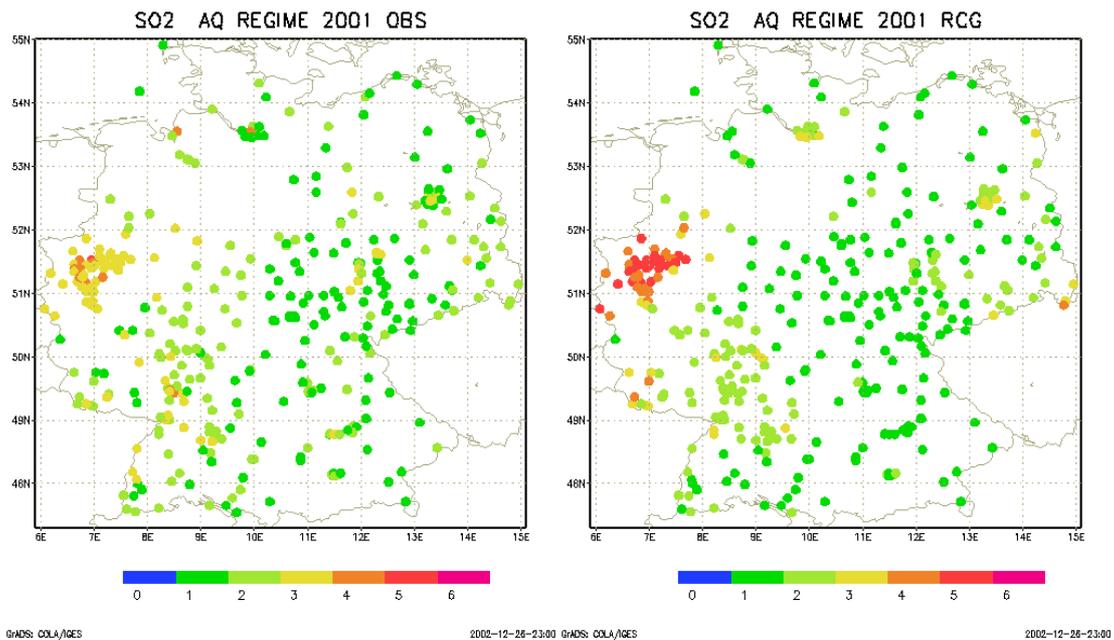


Abbildung 3.20 Karten der  $\text{SO}_2$ -Regimes für 2001 der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts)

### 3.7 Regimes der PM10-Immission

Die vorliegenden Messungen für Deutschland der Jahre 1995-99 galten nur dem Gesamtstaub (TSP); für die späteren Jahre nahm die Anzahl der PM10-Messungen stetig zu (siehe Tabelle 1). Da PM10 die relevante Größe für die EU-Rahmenrichtlinie ist und TSP nicht modelliert wird, erfolgte eine Umrechnung aller TSP-Messungen auf den PM10-Anteil von 80%.

539 Stationen wurden mit 2188 TSP- und PM10-Jahreszeitreihen klassifiziert. Die Unterscheidung im stabilsten Fall erfolgt wie bei NO<sub>2</sub> aufgrund der Tagesmittelwerte (P50ME). Die hohen SO<sub>2</sub>-Emissionen in Ostdeutschland waren häufig mit einer hohen TSP-Emission verbunden. Für die hohen Belastungen (Cluster 5 und 4) ergibt sich eine Verringerung (Abbildung 3.21) zugunsten der mittleren Regimes (2 und 3). Das heißt, dass trotz der Emissionsveränderungen die meisten Messstationen von PM10 weiterhin eine mittelhohe Belastung aufweisen. Der Eindruck ist dabei jedoch uneinheitlich. Das kann in der verschiedenartigen Datenlage begründet sein.

Die modellierten Zeitreihen weisen eine höhere Hintergrundbelastung aus, so dass hierbei – anders als bei der Messung – fast keine Zeitreihen des am geringsten belasteten Regimes (1) auftreten (siehe Abbildung 3.22). Die Mehrheit der modellierten Zeitreihen werden in die Regime 2 und 3 klassifiziert. Das Jahr 1996 ist dabei eine Ausnahme, hier werden aufgrund der meteorologischen Besonderheiten auch Stationen in das Regime 5 eingeordnet. Diese Besonderheit ist in den Beobachtungen nicht erkennbar.

Die Lage der Cluster im Raum der Variablen ist in Abbildung 3.24 dargestellt. Unabhängig von der mittleren Belastung besitzen die Stationen eine Tagesschwankung im Bereich von 100 bis 200% des Tagesmittelwertes (P50TA=1..2). Die modellierten Zeitreihen haben alle eine deutlich geringer normierte Tagesschwankung und die Minima und Maxima der PM10-Werte werden nicht wiedergegeben. Das Cluster 1 der am geringsten belasteten Stationen bedeckt einen Bereich von 10-18 µg/m<sup>3</sup> bzw. 15-18µg/m<sup>3</sup> hinsichtlich des Median der Tagesmittelwerte (P50ME). Dies ist Ausdruck einer um ca. 5 µg/m<sup>3</sup> höheren Hintergrundbelastung der Modellrechnung. Die Regimes 2 bis 4 haben eine Klassenbreite von ca. 5-10 µg/m<sup>3</sup>. Über 35 µg/m<sup>3</sup> beginnen die sehr hohen Belastungen des Clusters 5. Im Jahr 2001 werden durch die Beobachtung einer Station in Bayern (Augsburg, BY006) und durch die Modellierung 15 Stationen in Nordrhein/Westfalen in dieses Regime klassifiziert.

Die Maximalwerte (P98MA) der gemessenen PM10-Konzentration der Stationen liegen größtenteils im Bereich von 100 bis 300 µg/m<sup>3</sup> (Abbildung 3.23). Obwohl das Verhältnis der Maximalwerte zu den mittleren Verhältnissen für Beobachtung und Modellierung ähnlich groß wie bei SO<sub>2</sub> ist, gibt es bei den PM10-Messungen keine Stationen mit ausgesprochen niedrigen Maximalwerten.

Auch bei PM10 gibt die Modellrechnung die mittlere PM10-Immission im Ruhrgebiet etwas zu hoch an. Die Großstädte Berlin und Hamburg werden vom Modell und Beobachtung in vergleichbarer Art registriert. Auffällig ist die durchgängig höhere PM10-Beobachtung in Bayern, die keine Entsprechung in der Modellrechnung findet.

## AQ-Regimes 1995-2001 PM10 OBS

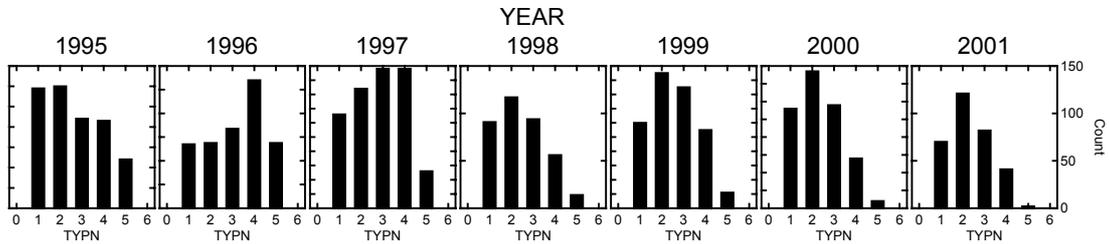


Abbildung 3.21 Anzahl der Stationen pro PM10-Immissionregime (TYPNN=1...5) der Beobachtung für die Jahre 1995-01

## AQ-Regimes 1995-2001 PM10 RCG

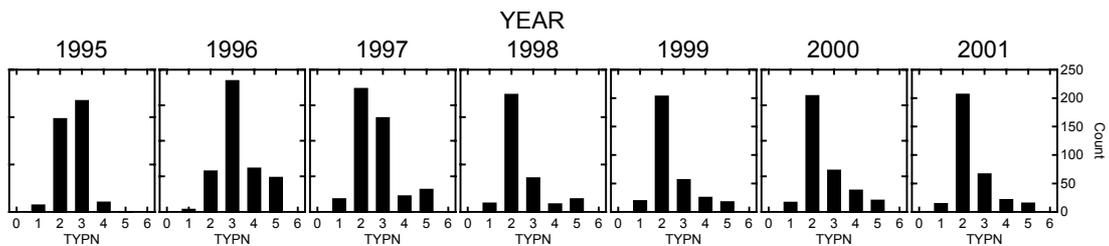


Abbildung 3.22 Anzahl der Stationen pro PM10-Immissionregime (TYPNN=1...5) der Modellierung für die Jahre 1995-01

## PM10 Maxima

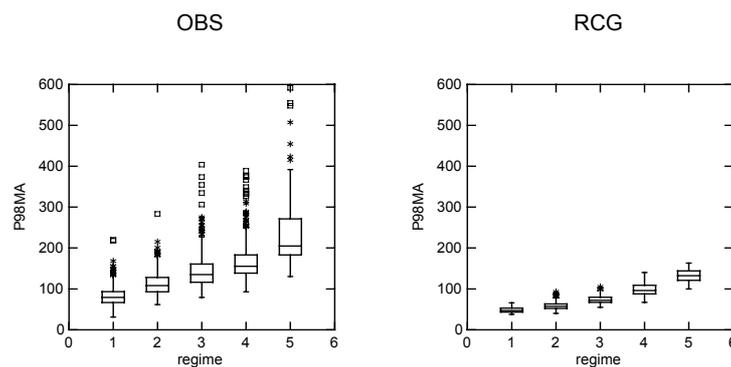


Abbildung 3.23 Box-Whiskers-Plot der 98%-Perzentile der Tagesmaxima (P98A in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) in Abhängigkeit vom Regime für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts).

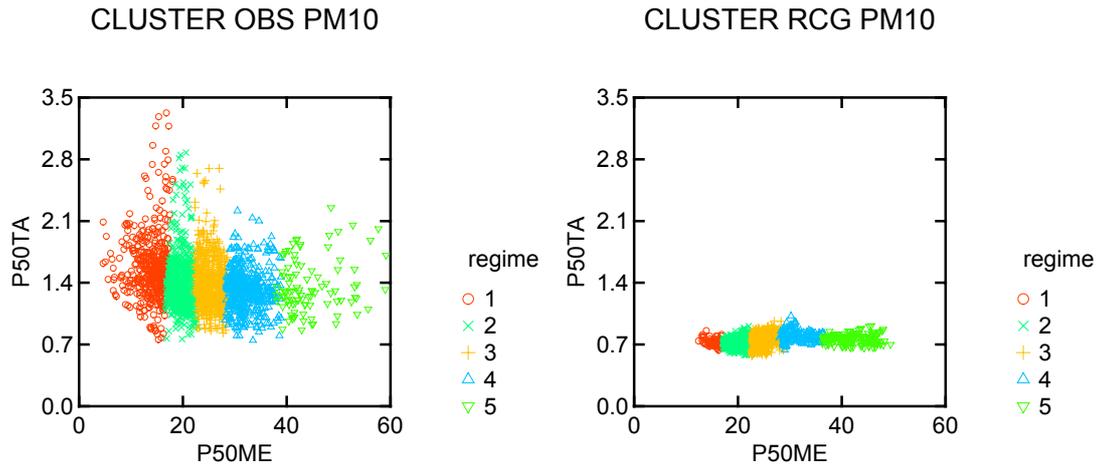


Abbildung 3.24 Streudiagramm der Parameter Median des Tagesmittelwertes (P50ME in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) und Median der normierten Tagesschwankung (P50TA) der PM10-Jahreszeitreihen sowie die Lage der Cluster aus der Beobachtung (links) und der Modellrechnung (rechts) .

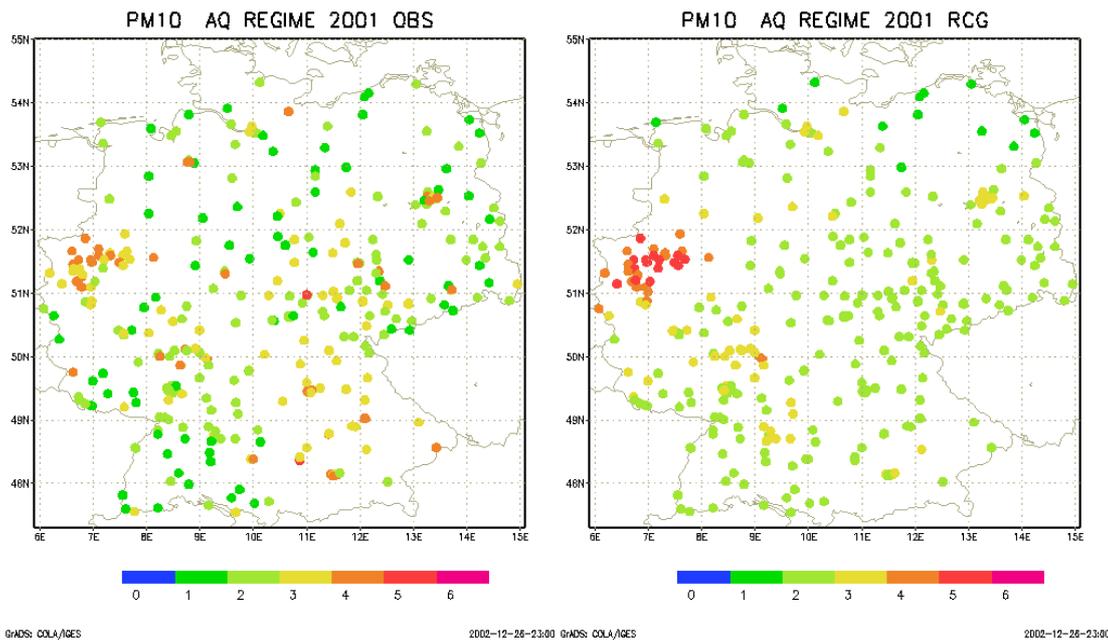


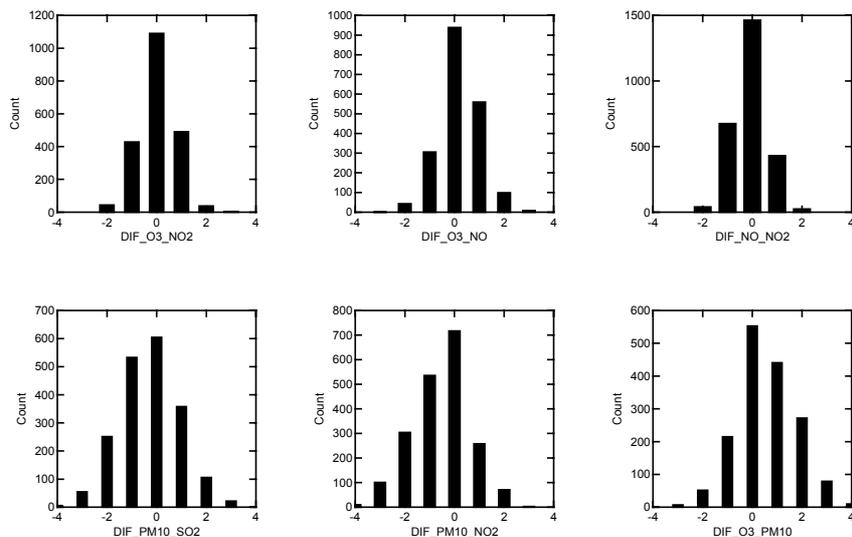
Abbildung 3.25 Karten der PM10-Regimes für 2001 für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) .

### 3.8 Vergleich der Regimes und Mediane verschiedener Stoffe

Im Folgenden werden die unabhängig für Ozon,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{SO}_2$  und  $\text{PM}_{10}$  durchgeführten Klassifikationen gegenübergestellt. Der Vergleich ist dabei auf die Messreihen derjenigen Stationen beschränkt, für die Zeitreihen der verschiedenen Spezies vorlie-

gen. Die Clustergrenzen wurden aufgrund der Struktur der gesamten vorliegenden Daten gebildet. Es ist demzufolge nicht zu erwarten, dass die Zugehörigkeit zu einem Cluster hinsichtlich aller Stoffe gewährleistet ist. So sind z. B. vollständige  $\text{NO}_x$ -Messreihen im Vergleich zu Ozon in höherem Maße in den verkehrsnahen Regimes vertreten, was eine unterschiedliche Grundgesamtheit für die Clusterung zur Folge hat. Zur einfachen Untersuchung der Übereinstimmung wurde die Differenz der Clusternummern für eine Station herangezogen. Voraussetzung dafür ist, dass der Cluster-Nummer eine quantitative Bedeutung zugeschrieben werden kann. Für Ozon ist die Zunahme der Clusternummer mit einer monotonen Abnahme der mittleren Belastung, für die übrigen Stoffe mit einer Zunahme verbunden. Weiterhin sind das Bergregime nur bei der Ozonimmission und das Regime der extremen Verkehrsbelastung nur bei  $\text{NO}_x$  identifiziert worden (siehe Tabelle 4). Beide Regimes werden bei diesem Vergleich den benachbarten Regimes (Land bzw. Verkehr) untergeordnet. Die Abbildung 3.26 zeigt die Histogramme der Differenzen in den Clusternummern für alle Vergleichspaare zwischen Ozon, NO und  $\text{NO}_2$  in der oberen Reihe. In der unteren Reihe sind die Histogramme für die Unterschiede zwischen  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{SO}_2$ ,  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{NO}_2$  sowie Ozon und  $\text{PM}_{10}$  dargestellt.

### Differences in AQ Classification for different species



**Abbildung 3.27** Unterschiede in der Klassifizierung (DIF\_XX\_YY) von Regimes für zwei Stoffe (XX und YY). Oben links: Differenz zwischen Nummer der Ozon- und  $\text{NO}_2$ -Immissionsclusterung, oben Mitte: für Ozon und NO, oben rechts: für NO und  $\text{NO}_2$ , unten links für  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{SO}_2$ , unten Mitte für  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{NO}_2$ , unten rechts für Ozon und  $\text{PM}_{10}$ .

Ca. 50% der Stationen werden nach den verschiedenen Immissionsparametern Ozon,  $\text{NO}_2$  und NO in das gleiche Cluster und weitere ca. 30–40% in das benachbarte eingeordnet. Es treten geringe systematische Unterschiede hinsichtlich der NO-Klassifikation auf, die durch den niedrigen Anteil der NO-Land-Stationen bedingt sind.

Die Ergebnisse der Clusterung nach Ozon und  $\text{NO}_2$  und in etwas geringerem Maße von  $\text{NO}$  sind demzufolge konsistent und entsprechen einander.

Hinsichtlich der Klassifikation von  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{SO}_2$  bzw. Ozon sind die Unterschiede erwartungsgemäß größer. Das Ozonregime ist demzufolge nur bedingt geeignet, das  $\text{PM}_{10}$ -Regime wiederzugeben.

Die Untersuchung der Unterschiede in der Klassifikation hinsichtlich verschiedener Stoffe kann helfen, Besonderheiten und Fehler einzelner Stationen aufzudecken. Eine genaue stationsbezogene Untersuchung entspricht nicht der Intention dieser Arbeit und würde ihren Umfang übersteigen. Im Folgenden werden einige auffällige Besonderheiten der Messungen aufgelistet, die der Ausgangspunkt für weitere Arbeiten sein können:

- In Baden-Württemberg weisen viele Stationen eine sehr geringe  $\text{PM}_{10}$ -Belastung auf (Belastungsstufe 1 und 2) während die zugehörige  $\text{NO}_x$ -Belastung den Regimes „belastete Stadt“ (U3) und „Straße“ (S) entspricht.
- Viele Stationen in Baden-Württemberg und in Ostdeutschland (Sachsen, Mecklenburg-Vorpommern, Brandenburg) weisen hinsichtlich der Ozonimmission ein suburbanes und urbanes Verhalten (U1, U2) auf, die zugehörige  $\text{NO}_x$ -Belastung ergibt jedoch ein verkehrsbelastetes Regime (U3, S) und ist damit im Verhältnis zu hoch.

Der Vergleich der Regimezugehörigkeit für die verschiedenen Stoffe wurde bisher nur für die Beobachtungen durchgeführt. Dem Anspruch der Arbeit folgend, wird nun der Vergleich ausgewählter stoffbezogener Zusammenhänge auch für die Modellrechnung durchgeführt. Dafür werden Streudiagramme der mittleren Belastung verschiedener Stoffe für Modell und Beobachtung gegenübergestellt. Aus Gründen der besseren Übersichtlichkeit werden dazu nur Daten des Jahres 2001 verwendet. Die Menge der betrachteten Stationen beschränkt sich naturgemäß auf diejenigen mit der gleichzeitigen Messung beider Komponenten und ist dadurch häufig sehr reduziert.

Zunächst fällt bei den Modellrechnungen auf, dass zwischen den Medianen der Konzentration verschiedener Zeitreihen ausgesprochen eindeutige Zusammenhänge bestehen, die auf eine ausgesprochen gute chemische Kopplung hinweisen.

Abbildung 3.28 und Abbildung 3.29 zeigen den Zusammenhang zwischen Ozon und  $\text{NO}$  bzw.  $\text{NO}_2$ . Bei einer typischen mittleren  $\text{NO}$ -Immission unter 10 ppb sind die zugehörigen Ozonwerte in der Modellierung deutlich niedriger als in der Beobachtung. Das gilt auch für die  $\text{NO}_2$ -Immission. Der Zusammenhang zwischen den typischen  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$ -Werten ist jedoch in Modell und Beobachtung ähnlich. Die Rechnung hat eine leichte Tendenz, bei niedrigen  $\text{NO}$ -Werten etwas höhere  $\text{NO}_2$ -Konzentrationen aufzuweisen.

Zwischen  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{NO}_2$  besteht in der Modellrechnung ein ausgesprochen linearer Zusammenhang. Dieser ist mit viel größerer Streuung auch in den Modellrechnungen zu finden. Die Verbindung zwischen  $\text{PM}_{10}$  und  $\text{SO}_2$  ist für 2001 in den Beobachtungen nur schwach, in der Modellrechnung jedoch deutlich ausgeprägt.

## O3 vs. NO (P50A)

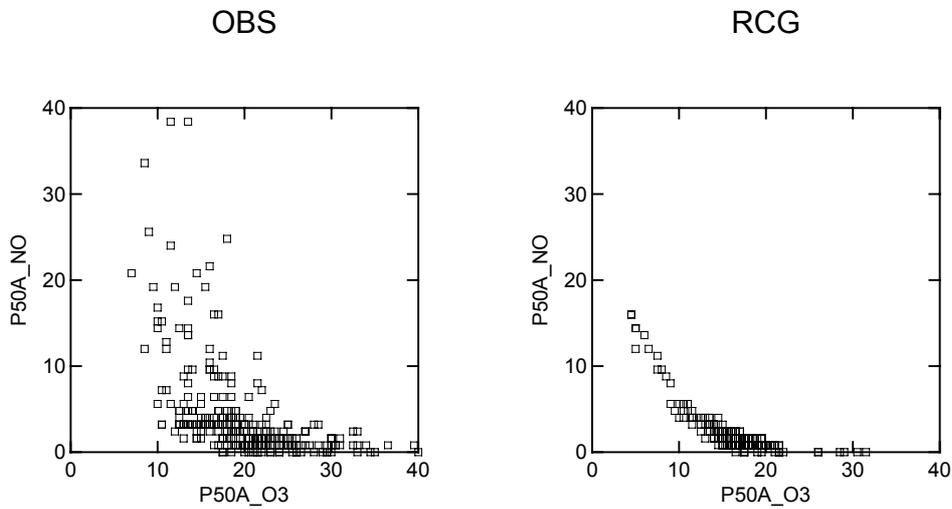


Abbildung 3.28 Streudiagramm der Mediane der Jahreszeitreihen für 2001 von Ozon (P50A\_O3 ppbb) und NO (P50A\_NO in ppb) für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts)

## O3 vs. NO2 (P50A)

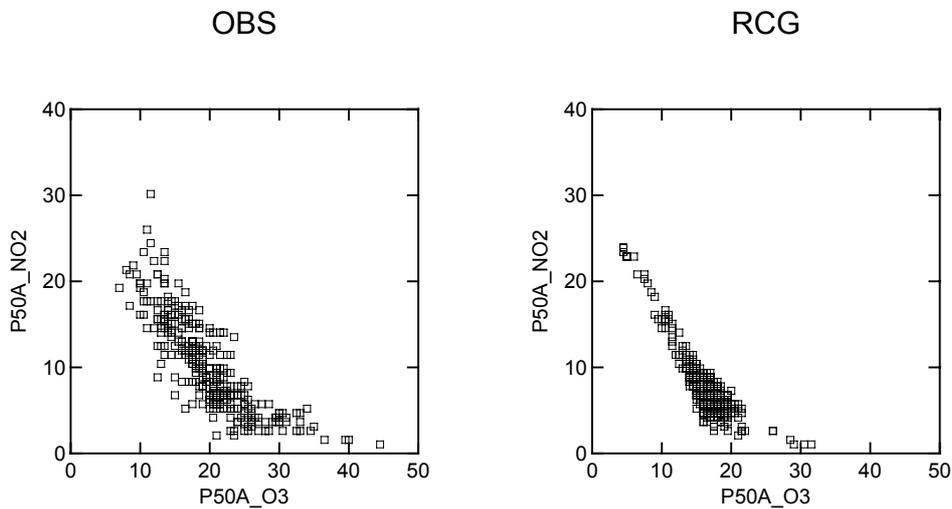


Abbildung 3.29 Streudiagramm der Mediane der Jahreszeitreihen für 2001 von Ozon (P50A\_O3 in ppb) und NO<sub>2</sub> (P50A\_NO2 in ppb) für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts)

## NO vs. NO<sub>2</sub> (P50A)

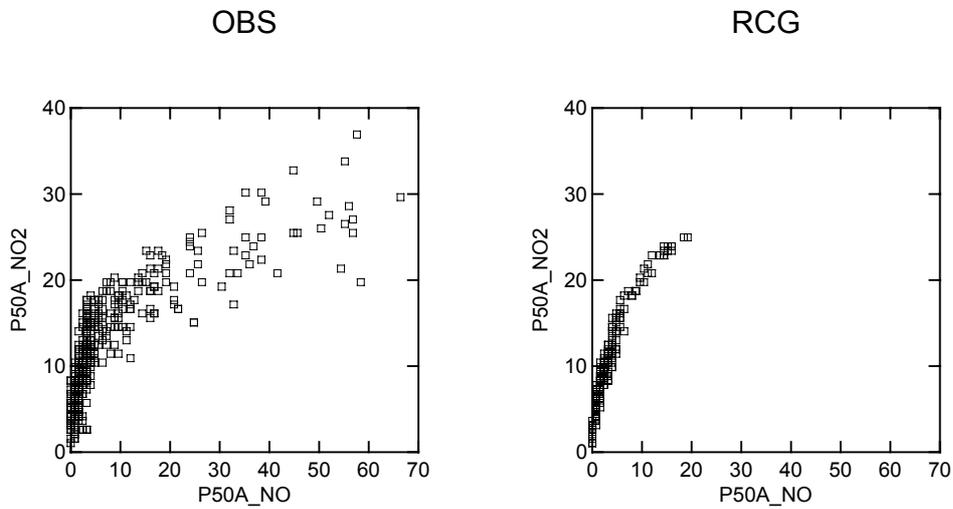


Abbildung 3.30 Streudiagramm der Mediane der Jahreszeitreihen für 2001 von NO<sub>2</sub> (P50A\_NO2 in ppb) und NO (P50A\_NO in ppb) für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts)

## PM<sub>10</sub> vs. NO<sub>2</sub> (P50A)

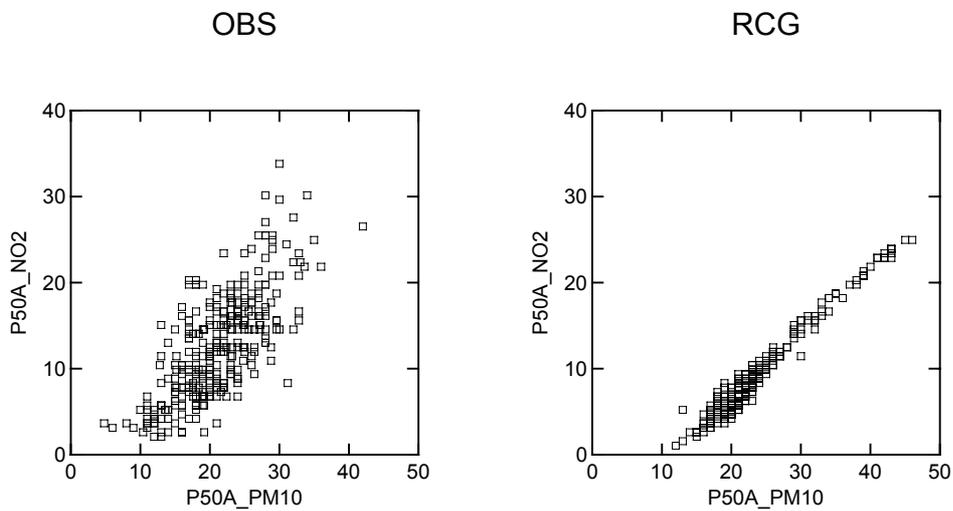


Abbildung 3.31 Streudiagramm der Mediane der Jahreszeitreihen für 2001 von PM<sub>10</sub> (P50A\_PM10 in µg/m<sup>3</sup>) und NO<sub>2</sub> (P50A\_NO2 in ppb) für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts)

## PM10 vs. SO<sub>2</sub> (P50A)

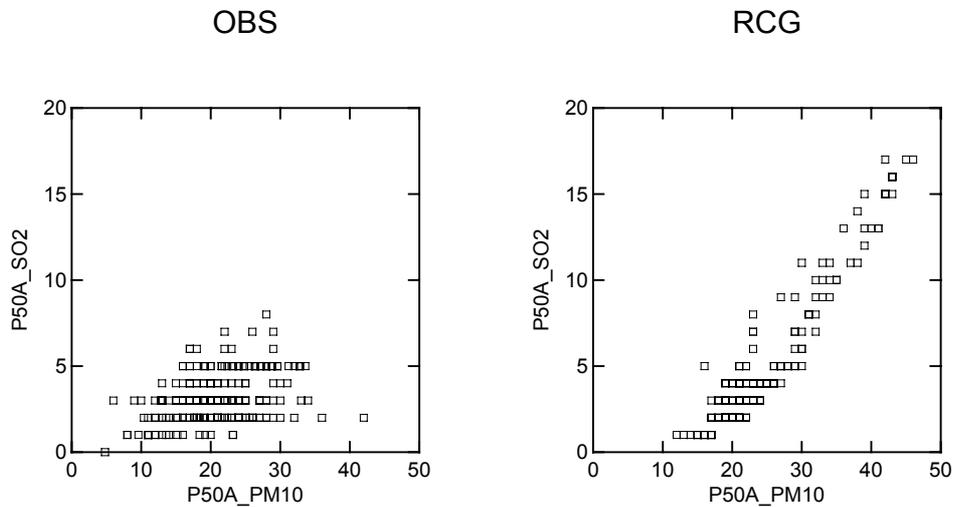


Abbildung 3.32 Streudiagramm der Mediane der Jahreszeitreihen für 2001 von SO<sub>2</sub> (P50A\_SO2 in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) und PM10 (P50A\_PM10 in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) für Beobachtung (links) und Modellrechnung (rechts)

### 3.9 Zeitliche Variabilität

Die Massenbilanz {1.1} ist die Grundlage des Chemie-Transport-Modells. Sie ist eine Gleichung für die zeitliche Änderung der Konzentration. Die Untersuchung der Wiedergabe der zeitlichen Variation ist demzufolge besonders wichtig für eine prozessorientierte Modellevaluierung.

Die Variabilität der Emission und der meteorologischen Einflussfaktoren sind die Ursache für die Zyklen der Immission. Letztere hat Auswirkung auf alle atmosphärischen Transportvorgänge einschließlich der Deposition und steuert dadurch sehr stark den Tages- und Jahresgang. Neben den ausgeprägten Zyklen der menschlichen Aktivität (Berufsverkehr, Wochenende, Tag-Nacht, Ferien) ist die Emission auch von der meteorologischen Situation beeinflusst. Das gilt z. B. für den Heizenergieverbrauch, für flüchtige Kohlenwasserstoffemissionen und Staubaufwirbelung. Weiterhin steuern Temperatur und Strahlung die chemischen Umwandlungen der Spurenstoffe. Die chemische Umwandlung aufgrund der Reaktion mit anderen Spurenstoffen sorgt für die Kopplung der Zyklen der Immission.

Während der Tages-, Wochen- oder Jahresgang die Folge „starker Anregungen“<sup>57</sup> ist, sind die Unterschiede von Jahr zu Jahr die Wirkung der kleinen Differenzen zwischen diesen Anregungen. Ihre Detektion ist demzufolge weniger gut möglich. Die Fragen der langfristigen Variabilität sind jedoch von großer umweltpolitischer Bedeutung. Auch hierbei stellt sich die Frage nach den Ursachen, die sowohl im veränderten Emissionsaufkommen als auch an der unterschiedlichen „Jahreswitterung“ oder im globalen Spurenstoffhaushalt liegen können. Die Beantwortung dieser Frage ist grundlegend für

<sup>57</sup> Sonnenstand, Emissionszyklen etc.

die Maßnahmenplanung, da die Wirkung von Emissionsänderungen durch die Wettervariabilität und globale Änderungen überdeckt werden kann.

Die Beobachtung und ihre korrekte Interpretation kann die interannuellen Änderungen erfassen; sie liefert aber nicht deren Ursache. Eine Trennung beider Ursachen wurde z. B. durch die Untersuchung von „wetterbereinigten“ Trends von Enke (1999) unternommen. Hierbei wurde der Wettereinfluss in den Immissionszeitreihen statistisch erfasst und anschließend beseitigt. Modellrechnungen bieten gleichfalls die Möglichkeit zur Abschätzung der meteorologisch bedingten Variabilität, indem die Rechnungen mit gleichbleibenden Emissionsdaten für verschiedene Jahre miteinander verglichen werden. Die interannuellen Unterschiede der Modellrechnung beruhen auf den meteorologischen Daten und groben Schätzungen der Emissionsentwicklung. Szenariorechnungen könnten somit Hinweise zur Trennung der Einflussfaktoren geben.

Die Veranschaulichung der zeitlichen Variabilität erfolgt durch Gruppenbildung in der nächstkleineren Zeiteinheit. Das Ensemble wird dann pro Regime mit seinem Median wiedergegeben. So setzt sich der Jahresgang aus den 12 Medianen zusammen, die aus allen Werten eines Monats gebildet worden sind. Der Wochengang wird aus den Wochentagen und der Tagesgang aus allen Tagesstunden konstruiert.

Die Regimeeinteilung erfolgt separat für Modellrechnung und Beobachtung. Durch dieses Vorgehen ist ein genereller Bias zwischen Modell und Beobachtung nicht erkennbar, da die absolute Anzahl der Zeitreihen pro Regime nicht berücksichtigt wird. Weiterhin sollte beachtet werden, dass innerhalb der Monate, Wochentage und Tagesstunden eine Streuung existiert, die hier nur beispielhaft für den Tagesgang von  $\text{NO}_2$  in Abbildung 3.38 dargestellt wurde. Der Tagesgang wird als typisch für das gesamte Jahr ermittelt. Eine feinere Untersuchung der Unterschiede in Sommer und Winter ist empfehlenswert, sprengt aber den Rahmen dieser Darstellung.

### 3.9.1 Tages-, Wochen- und Jahresgang

Modellrechnung und Beobachtung zeigen für Ozon eine gute Übereinstimmung im grundsätzlichen Verlauf des Tagesganges. Das Ergebnis der Modellrechnung ist für die urbanen Regimes nachts zu tief, mittags zu hoch und überschätzt damit den gemessenen Tagesgang.

Der Tagesgang von  $\text{NO}_2$  ist durch ein Hauptminimum in der Nacht und ein Nebenminimum am Nachmittag gekennzeichnet. Die Modellrechnung übertreibt das Mittagminimum sehr stark und zeigt nachts kein Minimum, sondern erhöhte Werte.

Dieses Verhalten ist bei  $\text{NO}$  noch ausgeprägter, wo die Nachmittagswerte zu gering, die nächtlichen Werte jedoch mit Ausnahme des ländlichen Regimes zu hoch sind. Das morgendliche Maximum ist jedoch in Modell und Beobachtung um 8 Uhr zu finden.

Auch bei  $\text{PM}_{10}$  zeigt die Modellrechnung ein starkes Minimum am Nachmittag, das in der Beobachtung nicht zu finden ist. Der morgendliche Anstieg der  $\text{PM}_{10}$ -Konzentration in den höher belasteten Regimes wird jedoch gut vom Modell wiedergegeben. Für  $\text{SO}_2$  kann dieses Verhalten nicht festgestellt werden.

Das festgestellte Verhalten des Modells kann mit einem übertriebenen mittäglichen vertikalen turbulenten Austausch und einem zu schwachen Austausch in der Nacht erklärt werden. Dass dieses Verhalten bei  $\text{SO}_2$  nicht gefunden wird, kann aus der Tatsache erklärt werden, dass der Großteil der  $\text{SO}_2$ -Emission aus Punktquellen und nicht in die Bodenschicht erfolgt.

Die belasteten urbanen und Verkehrsregimes weisen bei der Beobachtung einen deutlichen Wochengang auf, mit einer Zunahme von Ozon und einer Abnahme von  $\text{NO}_x$  und

PM10 am Wochenende. In der Rechnung ist dieses Verhalten nicht für Ozon und NO<sub>2</sub> zu finden. Bei NO und PM10 ist ein abgeschwächter Wochengang zu erkennen. NO weist weiterhin ein leichtes Freitagmaximum und PM10 ein leichtes Montagsminimum auf, das in dieser Weise in der Beobachtung nicht zu erkennen ist. Der Jahresgang ist mit Ausnahme von SO<sub>2</sub> für alle Stoffe vom Modell übertrieben dargestellt. Dies gilt für das Sommermaximum des Ozons und die Sommerminima von NO<sub>2</sub>, NO und PM10. Letzteres zeigt in der Beobachtung keinen ausgeprägten Jahresgang. Bei SO<sub>2</sub> werden die Wintermaxima durch das Modell leicht überschätzt.

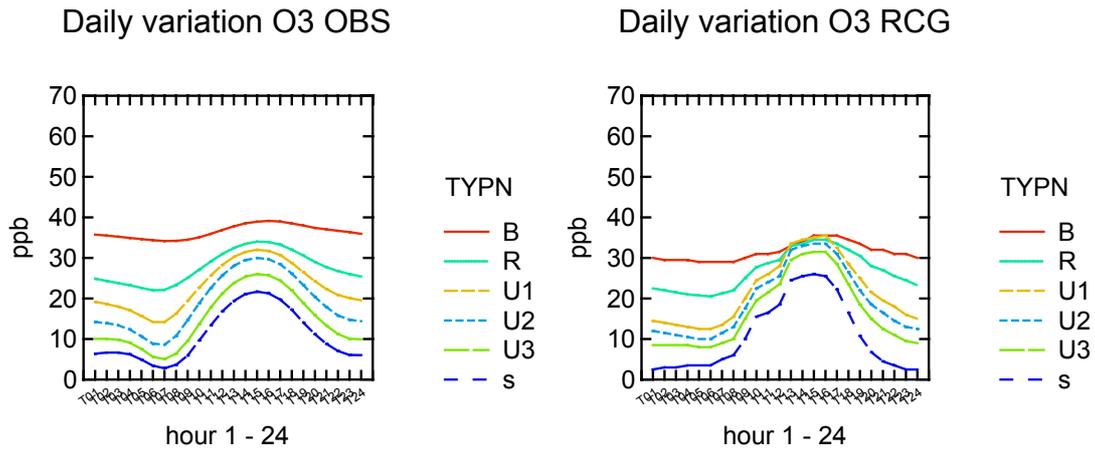


Abbildung 3.33 Tagesgang von Ozon (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

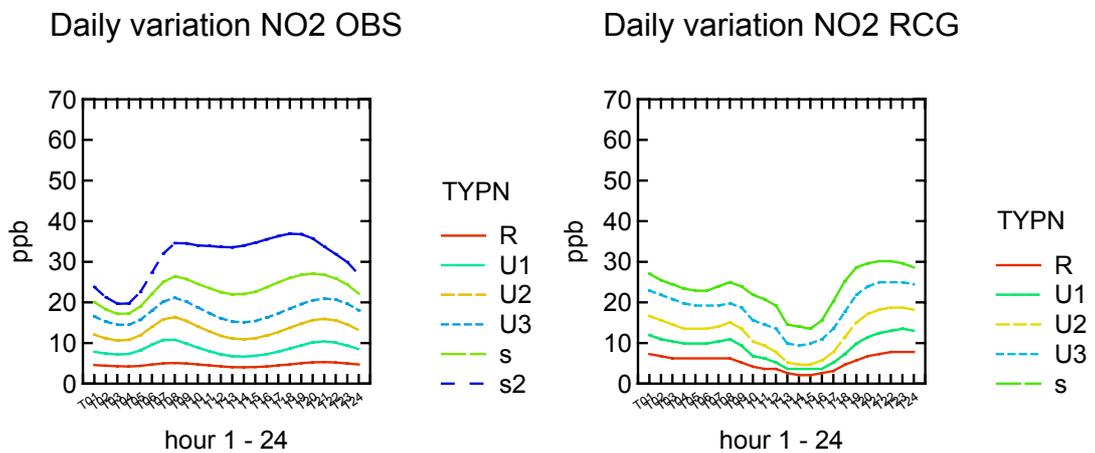


Abbildung 3.34 Tagesgang von NO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

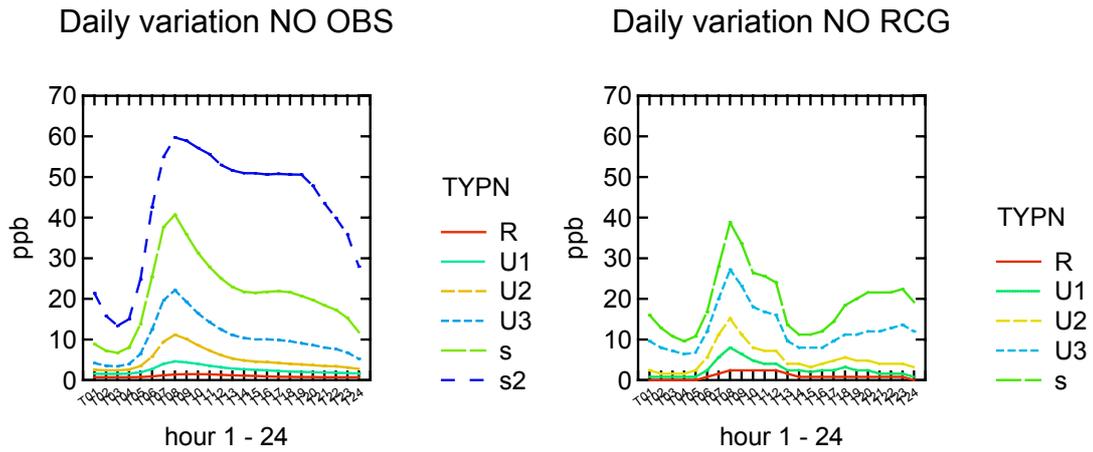


Abbildung 3.35 Tagesgang von NO (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

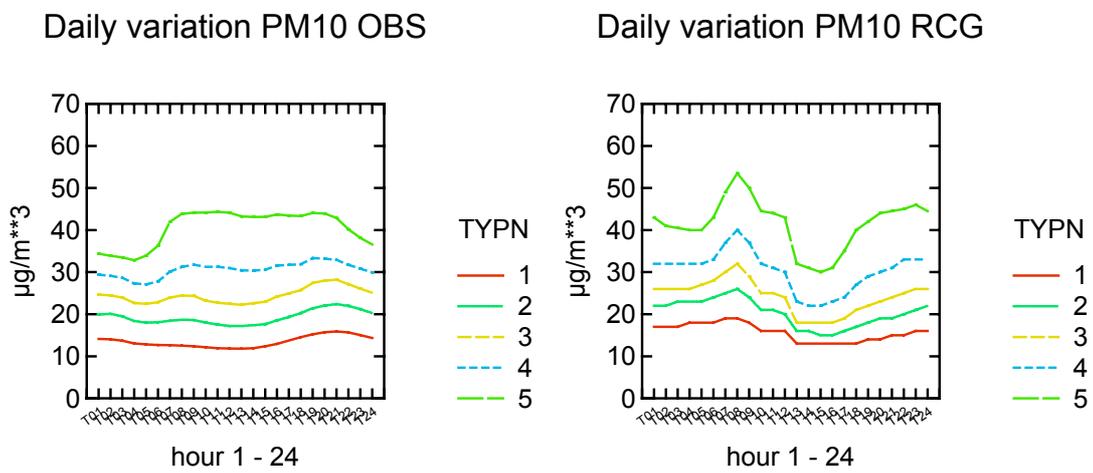


Abbildung 3.36 Tagesgang von PM10 (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

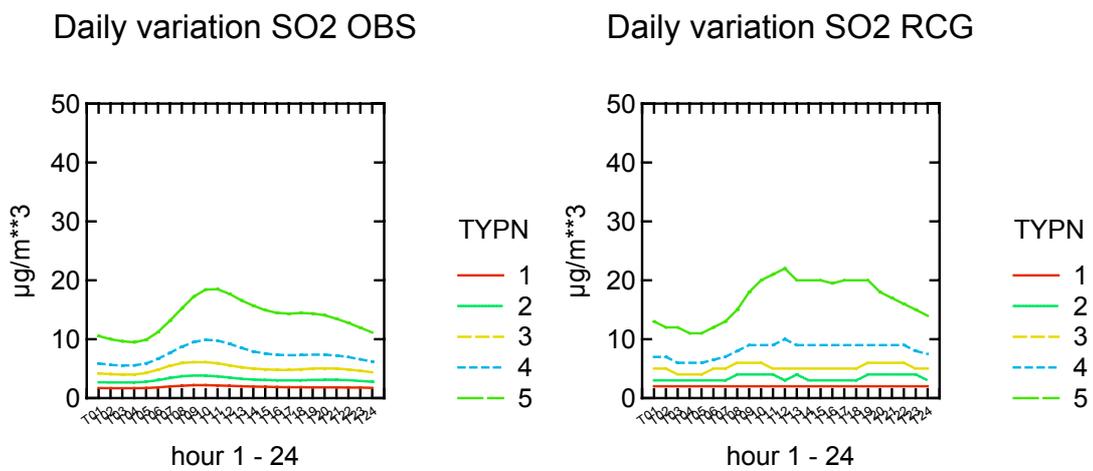


Abbildung 3.37 Tagesgang von SO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

## Tagesgang NO2

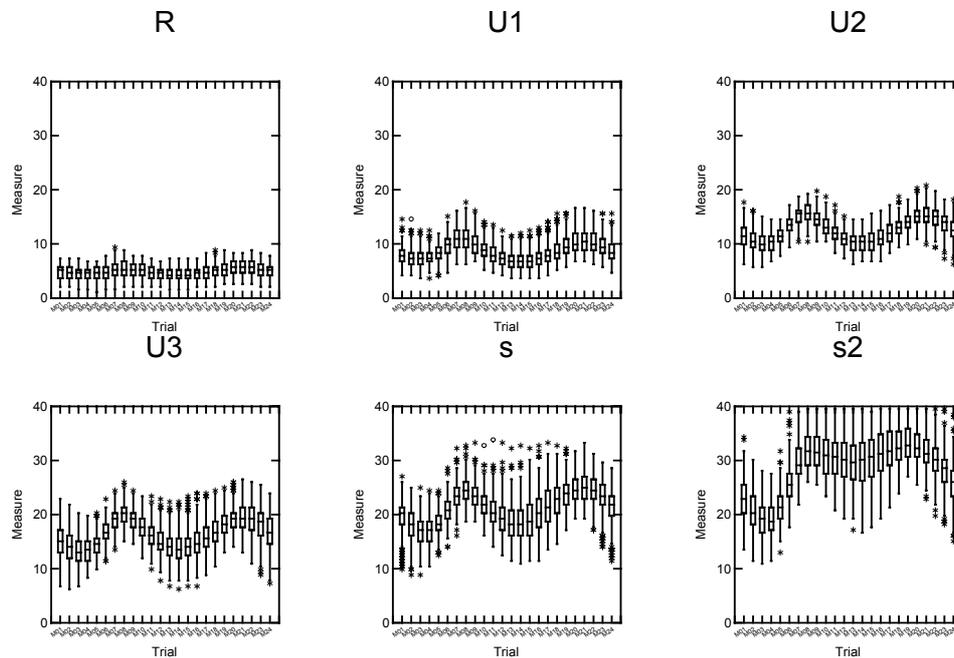


Abbildung 3.38 Häufigkeitsverteilung des Medians (P50A) aller Stationen pro Regime für jede Tagesstunde von NO<sub>2</sub>. Die entsprechenden Mediane des Ensembles, d. h. der Mittelstrich der Box, sind in Abbildung 3.34 dargestellt.

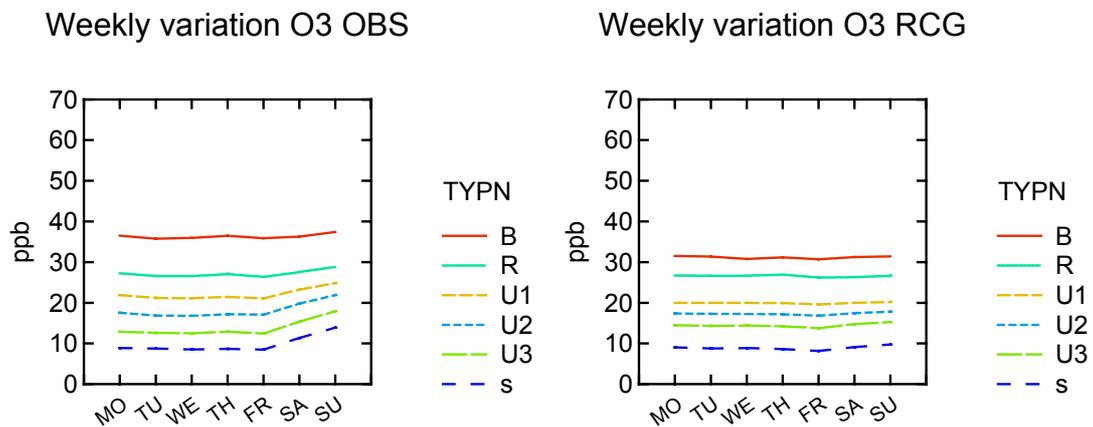
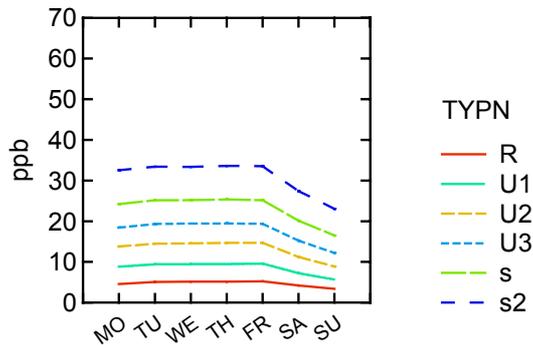


Abbildung 3.39 Wochengang von Ozon (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Weekly variation NO<sub>2</sub> OBS



Weekly variation NO<sub>2</sub> RCG

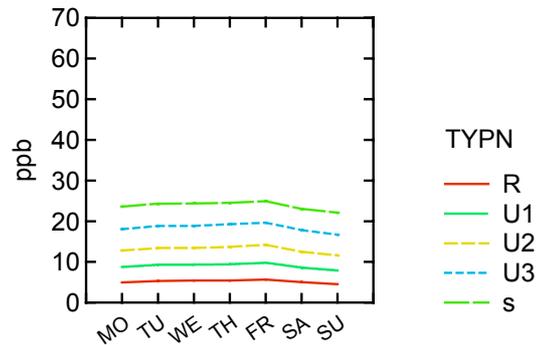
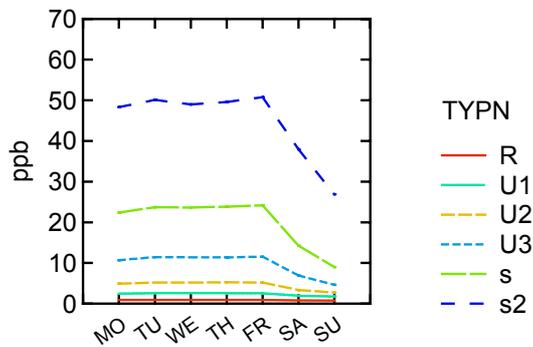


Abbildung 3.40 Wochengang von NO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Weekly variation NO OBS



Weekly variation NO RCG

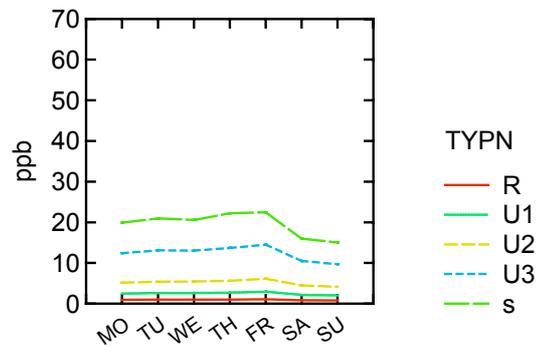
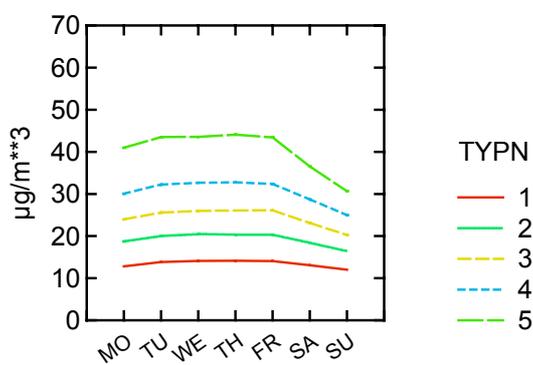


Abbildung 3.41 Wochengang von NO (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Weekly variation PM<sub>10</sub> OBS



Weekly variation PM<sub>10</sub> RCG

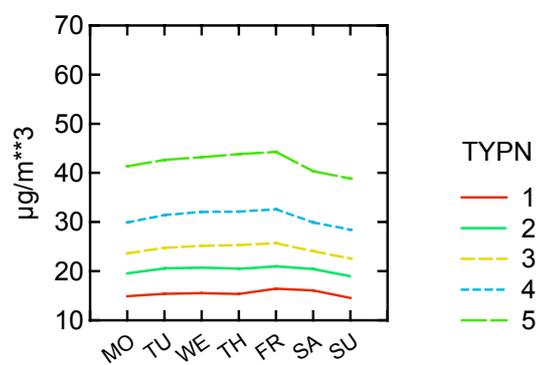
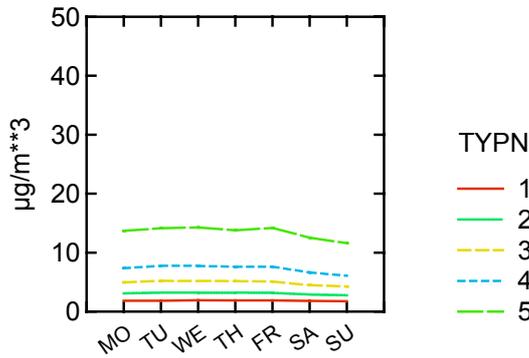


Abbildung 3.42 Wochengang von PM<sub>10</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Weekly variation SO2 OBS



Weekly variation SO2 RCG

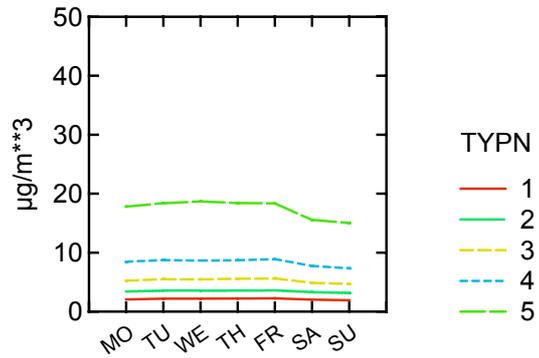
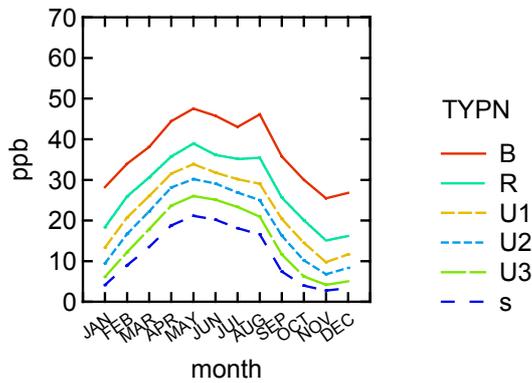


Abbildung 3.43 Wochengang von SO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Annual variation O3 OBS



Annual variation O3 RCG

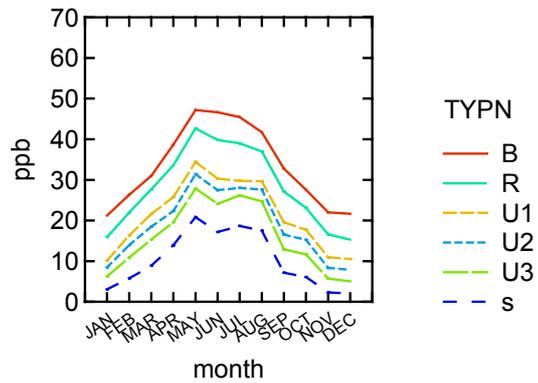
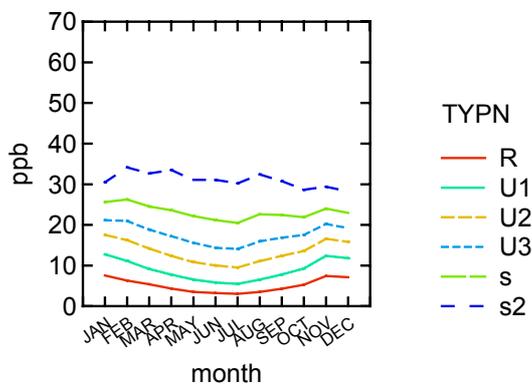


Abbildung 3.44 Jahrgang von Ozon (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Annual variation NO2 OBS



Annual variation NO2 RCG

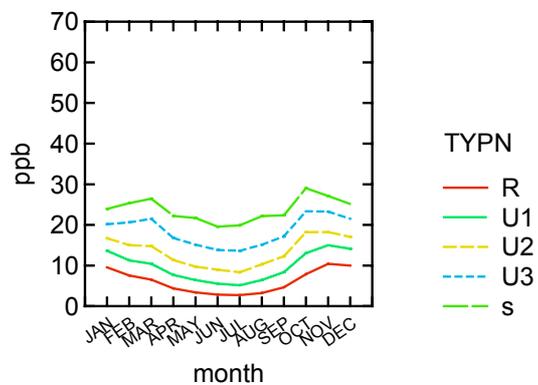


Abbildung 3.45 Jahrgang von NO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

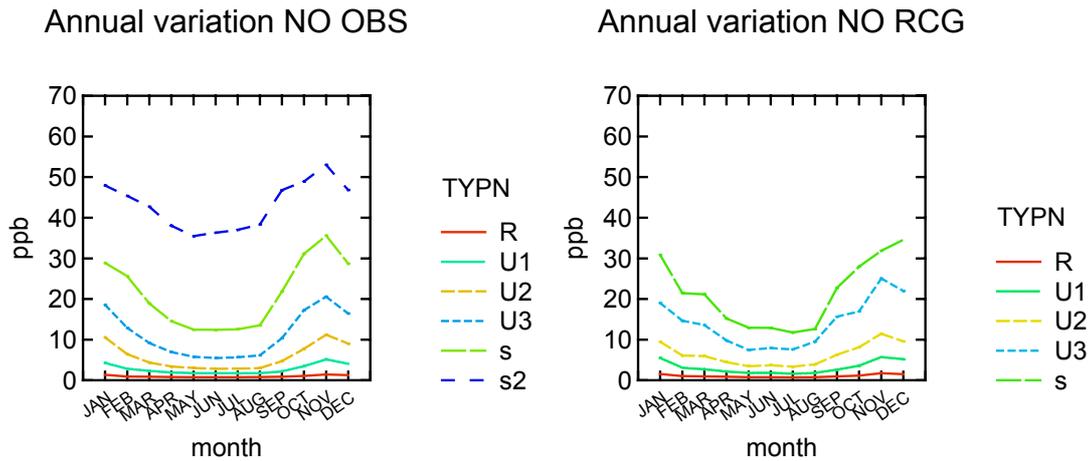


Abbildung 3.46 Jahrgang von NO (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

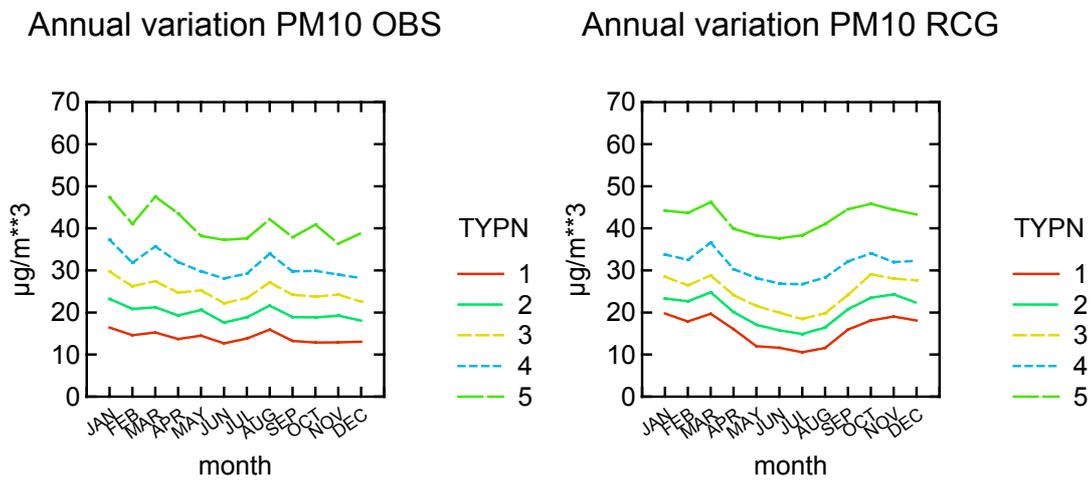


Abbildung 3.47 Jahrgang von PM10 (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

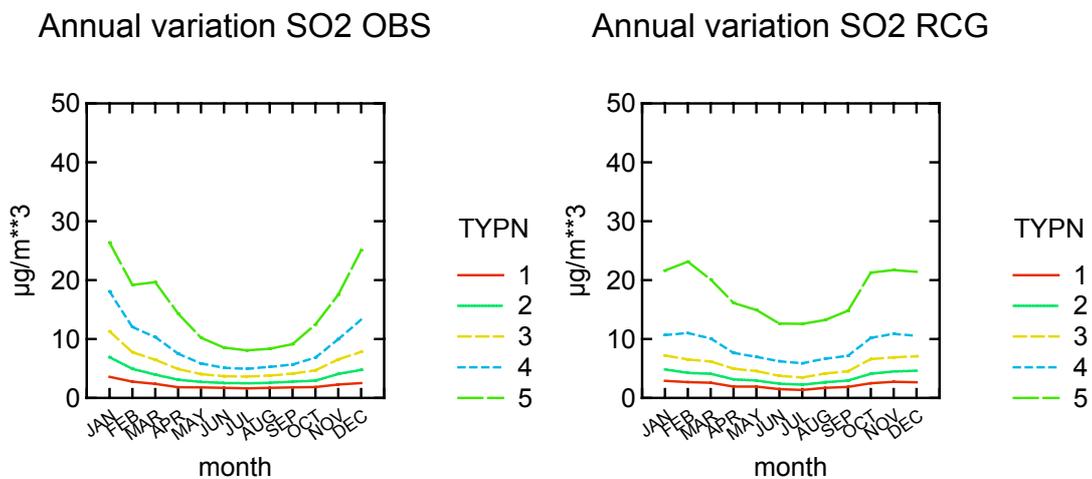


Abbildung 3.48 Jahrgang von SO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

### 3.9.2 Zwischenjährliche Variabilität

Die Erfassung von troposphärischen Spurenstofftrends im nationalen, europäischen oder globalen Maßstab ist Inhalt umfangreicher Forschungsaktivität (z. B. Beilke und Uhse, 1999, Roemer, 2001 und Oltmans, 1998).

Die korrekte Erfassung der zwischenjährlichen Variabilität aus der Beobachtung ist mit Problemen behaftet, denn die Anzahl der messenden und ausreichend vollständigen Stationen ist sehr uneinheitlich und die Messungen sind von unterschiedlicher Qualität. Dieses Problem wird auch von anderen Autoren bei der Detektion von Immissions-trends in den Mittelpunkt gestellt (Roemer, 2001).

In gewissen Sinn ist bereits die Überprüfung der jährlichen Übereinstimmung der Klassifikation (siehe z. B. Kapitel 3.2) für die einzelnen Jahre eine robuste Methode, um die Änderungen festzustellen.

Analog zu der Darstellung im vorherigen Kapitel werden hier die Änderungen der typischen mittleren Verhältnisse innerhalb der einzelnen Regimes zusammengefasst. Dazu wird ein Ensemble aus allen Medianen (P50TA) der Jahreszeitreihen eines Regimes zusammengestellt. Der Median dieses Ensembles wird dann für Modellrechnung und Beobachtung wiedergegeben. Die Untersuchung der Veränderung der Maximalwerte ist damit nicht beabsichtigt. Es sei nur erwähnt, dass z. B. für Ozon die Tendenz zum Anstieg der mittleren Werte mit einem Sinken der Maximalwerte einhergeht (Enke, 1999).

Der Schwerpunkt dieser Untersuchung liegt nicht vordergründig auf der Feststellung von Trends, sondern auf der Begutachtung der Möglichkeiten des Modells, die interannuelle Variabilität wiederzugeben.

Damit die Änderung der Stationsanzahl pro Regime keinen Einfluss gewinnt, wird die Klassifikation für den gesamten Zeitraum gewählt (siehe 2.3.2.5). Ist eine Station in diesem Jahr nicht mit einer vollständigen Jahreszeitreihe vertreten, so wird sie nicht in die Darstellung einbezogen.

Die mittlere Ozonimmissionen zeigte von 1996 bis 1998 einen Anstieg, der sich in den darauffolgenden Jahren nicht fortsetzte (Abbildung 3.49). Bei den Berg- und Küsten-Stationen findet der Anstieg ein Jahr früher statt. Die modellierten Regimes besitzen eine geringere Variabilität. 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 übrigen Jahren.

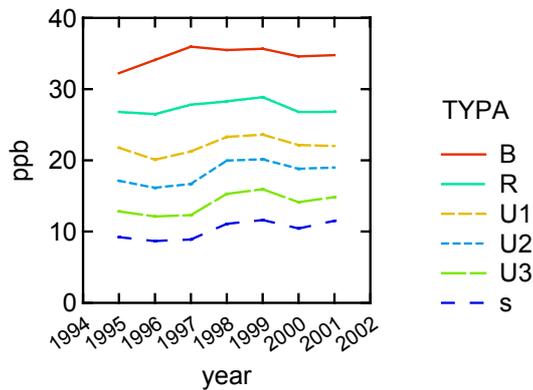
Für NO und NO<sub>2</sub> weisen die Beobachtungen in allen Regimes eine leichte Abnahme der mittleren Belastung ab dem Jahr 1998 auf. Die modellierten Zeitreihen zeigen eine vergleichbare Tendenz (Abbildung 3.50 und Abbildung 3.51).

Die mittlere beobachtete PM<sub>10</sub><sup>58</sup>- und SO<sub>2</sub>-Belastung hat sich in dem betrachteten Zeitraum in allen Regimes deutlich reduziert (Abbildung 3.52 und Abbildung 3.53). Auch die modellierten Zeitreihen geben diesen Trend wieder. Er ist jedoch für PM<sub>10</sub> deutlich schwächer ausgeprägt; hier zeigt das Jahr 1996 die höchste Belastung. Der modellierte Trend von SO<sub>2</sub> stimmt jedoch gut mit der Beobachtung überein.

---

<sup>58</sup> Die Frage, inwieweit der Trend von PM<sub>10</sub> durch Artefakte der TSP-PM<sub>10</sub>-Umrechnung modifiziert ist, kann hier nicht beantwortet werden.

Interannual variation O3 OBS



Interannual variation O3 RCG

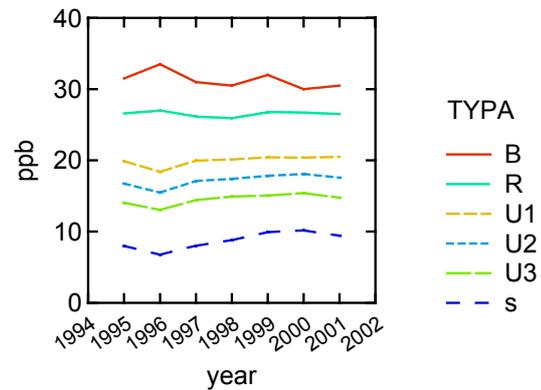
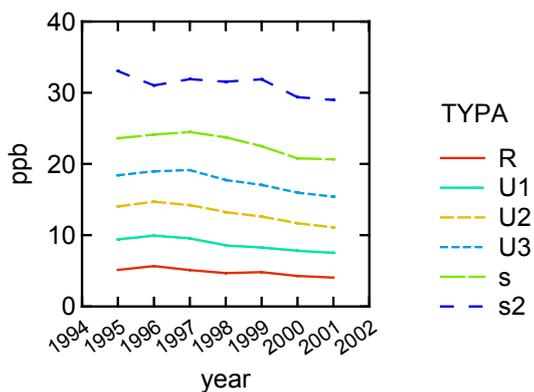


Abbildung 3.49 Interannuelle Variation von Ozon (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Interannual variation NO2 OBS



Interannual variation NO2 RCG

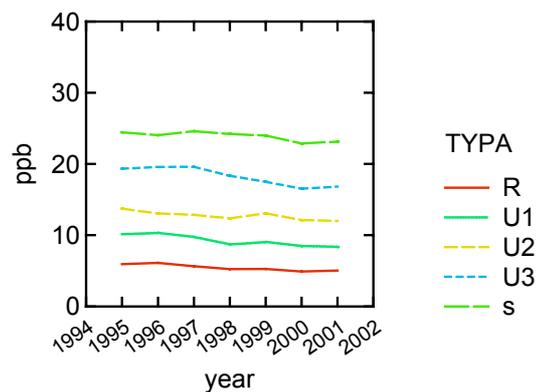
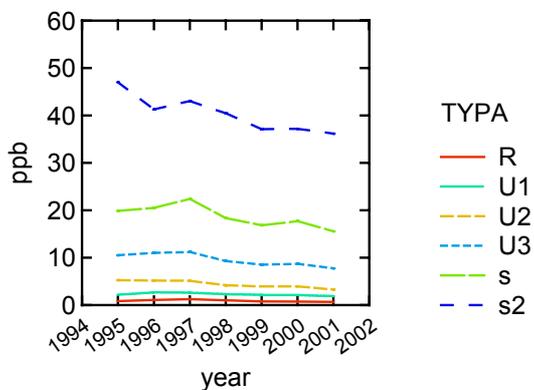


Abbildung 3.50 Interannuelle Variation von NO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Interannual variation NO OBS



Interannual variation NO RCG

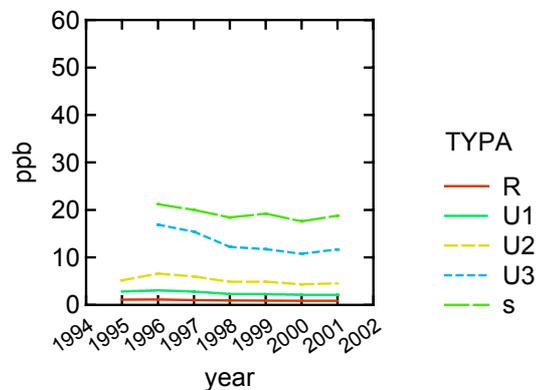
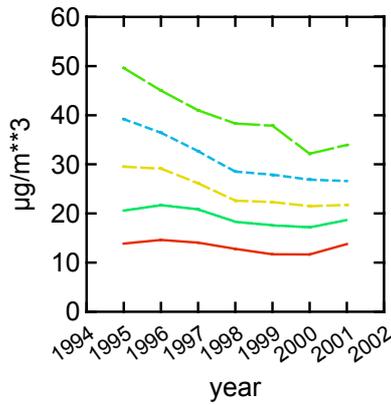


Abbildung 3.51 Interannuelle Variation von NO (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Interannual variation PM10 OBS



Interannual variation PM10 RCG

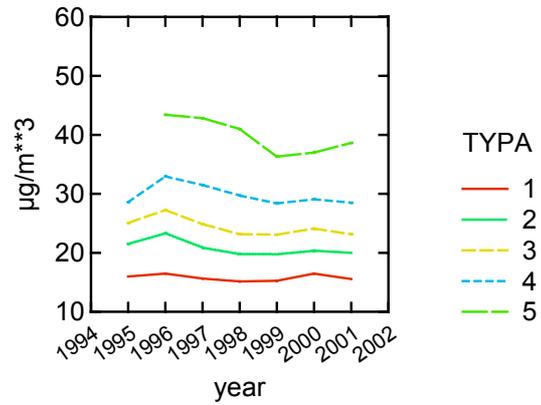
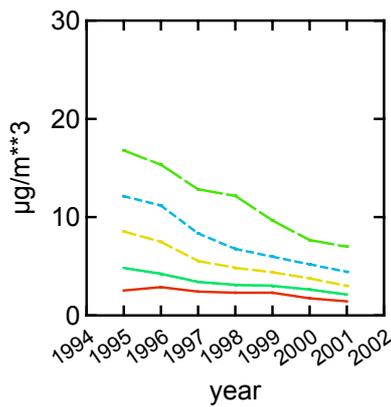


Abbildung 3.52 Interannuelle Variation von PM10 (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes

Interannual variation SO2 OBS



Interannual variation SO2 RCG

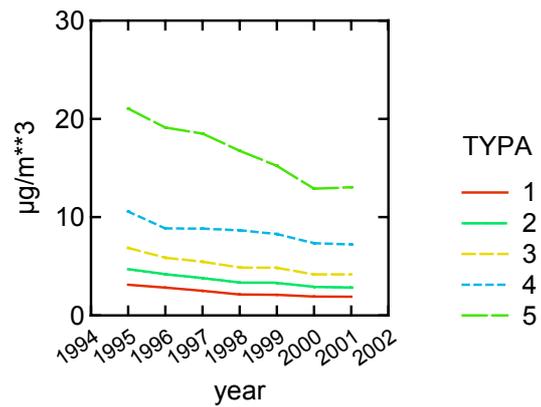


Abbildung 3.53 Interannuelle Variation von SO<sub>2</sub> (Median) für die Beobachtung (links) und die Modellrechnung (rechts) in den Regimes