

TEXTE

57/2013

# Einfluss der biogenen und natürlichen Emissionen, abgeleitet aus verschiedenen Datensätzen und Berechnungsmethoden, auf modellierte Schadstoffkonzentrationen



UMWELTFORSCHUNGSPLAN DES  
BUNDESMINISTERIUMS FÜR UMWELT,  
NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT

Forschungskennzahl 206 43 200/01  
UBA-FB 001524/ANH,27

**Einfluss der biogenen und natürlichen  
Emissionen, abgeleitet aus  
verschiedenen Datensätzen und  
Berechnungsmethoden, auf modellierte  
Schadstoffkonzentrationen**

**Teilbericht zum F&E-Vorhaben „Strategien zur  
Verminderung der Feinstaubbelastung - PAREST“**

von

**Andreas Kerschbaumer**

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

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

**UMWELTBUNDESAMT**

Diese Publikation ist ausschließlich als Download unter <http://www.uba.de/uba-info-medien/4532.html> verfügbar.

Die in der Studie geäußerten Ansichten und Meinungen müssen nicht mit denen des Herausgebers übereinstimmen.

ISSN 1862-4804

Durchführung der Studie:	Freie Universität Berlin Institut für Meteorologie Troposphärische Umweltforschung Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10 12165 Berlin
Abschlussdatum:	August 2010
Herausgeber:	Umweltbundesamt Wörlitzer Platz 1 06844 Dessau-Roßlau Tel.: 0340/2103-0 Telefax: 0340/2103 2285 E-Mail: <a href="mailto:info@umweltbundesamt.de">info@umweltbundesamt.de</a> Internet: <a href="http://www.umweltbundesamt.de">http://www.umweltbundesamt.de</a> <a href="http://fuer-mensch-und-umwelt.de/">http://fuer-mensch-und-umwelt.de/</a>
Redaktion:	Fachgebiet II 4.1 Grundsatzfragen der Luftreinhaltung Johanna Appelhans

Dessau-Roßlau, Juni 2013

## Inhaltsverzeichnis:

1.	Einleitung.....	1
2.	VOC aus Wäldern.....	3
2.1	Biogene VOC nach Simpson et al. (1995) und Landnutzungsdatenbasis von Smiatek (1998).....	3
2.2	Biogene VOC nach Simpson et al. (1999) und Landnutzungsdatenbasis von Smiatek-Köble (2002).....	4
2.3	Berechnung der Emissionsflüsse .....	10
2.4	NATAIR (Steinbrecher et al. 2009).....	11
2.5	Landnutzungsdatenbasen .....	14
2.6	Unterschiede zwischen [Smiatek (1998) – Simpson et al. (1995)] und [Köble et al. (2002) – Simpson et al. (1999)] .....	16
2.7	Unterschiede zwischen mit RCG online berechneten biogenen VOC und extern produzierten NATAIR-Daten .....	21
3.	Ergebnisse: RCG mit biogenen VOC-Emissionen aus unterschiedlichen Datensätzen .....	24
3.1	Ozon.....	24
3.2	Sekundäre organische Aerosole (SOA) .....	32
3.3	PM10.....	36
3.4	Biogene VOC-Emissionen: Diskussion.....	40
4.	Windaufwirbelung: Feinstaub.....	47
4.1	Online-Modellierung der Aufwirbelung von Staub aus naturbelassenen Böden in RCG.....	47
4.2	NATAIR: Aufwirbelung von Feinstäuben.....	49
4.3	Vergleich: NATAIR – RCG-Standard.....	51
5.	Ergebnisse: RCG mit Feinstaub aus Aufwirbelungsprozessen aus unterschiedlichen Datensätzen.....	55
6.	Zusammenfassung.....	61
7.	Bibliographie.....	64
8.	Abbildungsverzeichnis.....	67
9.	Tabellenverzeichnis .....	74



## 1. Einleitung

Ein wesentliches Ziel des Umweltschutzes ist es, schädliche Emissionen soweit wie möglich zu reduzieren, um so Luftverschmutzung, Bodenverschmutzung oder Gewässerverschmutzung zu vermeiden und den Menschen vor gesundheitsgefährdenden Einflüssen zu schützen.

Emissionen sind zum einen anthropogenen Ursprungs, zum anderen gibt es natürliche Emittenten. Pflanzen emittieren Pollen und flüchtige organische Verbindungen (*volatile organic compound*, VOC), Vulkane emittieren Schwefeldioxid (SO<sub>2</sub>), Gesteine sondern Radioaktivität und Schwermetalle in unterschiedlichem Ausmaß ab. Stickstoffoxide gelangen zum Beispiel durch die Oxidation des natürlichen Stickstoffes bei Blitzentladungen oder durch Freisetzung aus Nitraten im Boden in die Luft. Während natürliche NO<sub>x</sub>-Emissionen in Deutschland gegenüber den anthropogenen Emissionen eher einen geringen Einfluss haben (Umweltamt, NRW, 2010), sind die leicht flüchtigen organischen Substanzen sehr oft natürlichen Ursprungs. Dabei handelt es sich überwiegend um reaktive Kohlenwasserstoffe wie Terpene und Isoprene aus Wäldern und Grünflächen. VOC-Emissionen aus Wäldern hängen von der Temperatur und der Strahlung, sowie der vorhandenen Biomasse ab. Gerade im Sommer werden deshalb große Mengen an biogenen VOC-Stoffen freigesetzt, die dann wesentlich zu erhöhten Ozonkonzentrationen vor allem in ländlichen Gebieten, aber auch in urbanen Gegenden aufgrund des geänderten Mischungsverhältnisses von VOC und NO<sub>x</sub> führen können. Auch werden Sekundärpartikel aus VOC-Stoffen in der Atmosphäre gebildet. Gerade im Sommer übersteigen dabei die VOC Emissionen aus natürlichen Quellen wie Wälder und Wiesen die anthropogenen Emissionen um ein vielfaches.

Natürliche Schwefelverbindungen stammen global gesehen zum überwiegenden Teil aus Ozeanen, aus Vulkanen und auch aus Waldbränden. Vulkanische Gase bestehen dabei hauptsächlich neben Wasserdampf und Kohlenstoffdioxid aus H<sub>2</sub>S und SO<sub>2</sub>, während biogene Schwefelverbindungen aus den Weltmeeren hauptsächlich als Dimethylsulfid (DMS) in die Atmosphäre gelangen. Auch anaerobe Zersetzungsprodukte organischer, schwefelhaltiger Materialien tragen nicht unwesentlich zum Schwefelhaushalt in der Luft bei.

Direkte Einträge in die Atmosphäre von partikelförmigen Mineralstoffen führen häufig zu Überschreitungen der EU-Grenzwerte für PM<sub>10</sub> von 50 µg/m<sup>3</sup> an mehr als 35 Tagen im Jahr. Vor allem in Südeuropa führen Saharastürme zu stark erhöhten Werten. Aber auch Seesalzaerosole können in Küstennähe zu erhöhten Feinstaubkonzentrationen führen. Bei starken Winden können diese Partikel bis ins Ruhrgebiet transportiert werden und dort zu Überschreitungen der Grenzwerte führen, da sich zu den ohnehin schon hohen, hausgemachten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen natürliche Bestandteile aufaddieren.

Die Kenntnis natürlicher Emittenten ist immer noch unzureichend. Auch die Abschätzung der in die Luft eingespeisten Mengen an Schadstoffen aus natürlichen Quellen ist noch sehr approximativ. Deshalb wurde im Rahmen des von der EU geförderten NATAIR-Projektes (Friedrich, 2008) versucht, eine verbesserte Berechnungsmethode für die Emissionen aus natürlichen und biogenen Quellen auf der Basis von Auswertungen aktueller Messergebnisse und vorhandener Daten zu entwickeln. Untersucht wurden die

Emissionen von Stickstoffoxiden, VOC, Methan, Schwefeldioxid, Ammoniak, Kohlenmonoxid, Staub verschiedener Partikelgrößen, organisches Material, Seesalz sowie Dimethylsulfide (DMS).

Das hier benutzte Werkzeug zur Klärung der Beiträge biogener Emissionen an VOC und aufgewirbeltem Feinstaub zu europaweiten Schadstoffkonzentrationen in der Luft ist das an der FU-Berlin entwickelte Aerosol-Chemie-Transport-Modell REM\_Calgrid (RCG) (Stern, 2009). Es wurde mit einer horizontalen Auflösung von ca. 30x30 km<sup>2</sup> mit anthropogenen Emissionen aus dem PAREST-Datensatz (Jörß et al., 2010) betrieben. Die biogenen oder natürlichen Emissionen werden in den folgenden Absätzen näher erläutert. RCG ist ein so genanntes off-line-Modell, das seine meteorologischen Daten einmal pro Stunde übermittelt bekommt. Zur Erstellung der notwendigen meteorologischen Felder wurde das TRAMPER – System (Kerschbaumer et al., 2003) verwendet. Mit RCG können auf Stundenbasis alle relevanten Schadstoffe in der Gasphase sowie Feinstabpartikel kleiner 10 µm (PM10) berechnet werden. Neben der Gesamtsumme werden auch die Einzelkomponenten von PM10 separat ausgewiesen. Diese sind

- die Grobfraction an Mineralstäuben zwischen 2.5 und 10 µm,
- die Feinfraction an Mineralstäuben kleiner 2.5 µm,
- elementarer Kohlenstoff,
- organischer Kohlenstoff,
- anorganische Sekundäraerosole (Sulfate, Nitrate, Ammonium und Seesalze) und
- organische Sekundäraerosole aus biogenen und aus anthropogenen Vorläuferstoffen.

Die gasförmigen Luftschadstoffe werden mit dem von Gery et al. (1989) beschriebenen CBM-IV-Modul simuliert. Der Mechanismus enthält die von Carter (1996) entwickelte Isopren-Chemie. Die organischen sekundären Aerosole hingegen werden mithilfe des von Schell et al. (2001) entwickelten SORGAM-Moduls simuliert. Organische Sekundärpartikel entstehen aus schwerflüchtigen Folgeprodukten der Oxidation biogener (Terpene und Isoprene) und anthropogener (Aldehyde) Kohlenwasserstoffe. Im SORGAM-Modul wird diese Oxidation berechnet und in einem zweiten Schritt die Partitionierung des schwerflüchtigen Materials zwischen Gas- und Partikelphase über das thermodynamische Gleichgewicht abgeschätzt.

Im Folgenden werden die Auswirkungen von verschiedenen Methoden zur Generierung von VOC-Emissionen auf die Ozon-, organischen Sekundärpartikel- und PM10-Konzentrationen genauer beleuchtet. Des Weiteren werden die Beiträge von Aufwirbelungsprozessen auf die Gesamtfeinstaubkonzentration analysiert.

Andere biogene Emissionen wurden nicht hinsichtlich ihrer Beiträge zu Schadstoffkonzentrationen begutachtet.

## **2. VOC aus Wäldern**

VOC-Emissionen aus Wäldern können erheblichen Einfluss auf die Ozonproduktion und auf die Bildung von sekundären organischen Aerosolen (SOA) haben. So haben zum Beispiel (Andreani-Aksoyoglu et al., 2008) gezeigt, dass in der Schweiz bis über 50% der Feinstaubbelastungen auf natürliche biogene Quellen aus Wäldern zurückzuführen sein könnten. Die Produktionsraten und -wege von biogenen SOA sind jedoch immer noch sehr ungenau beschrieben (Hildebrandt et al., 2009). Vor allem die Rolle der Terpene wird immer wieder konträr begutachtet. Wurden bis vor ein paar Jahren vor allem die Spezies der Monoterpene ( $\alpha$ -Pinen,  $\beta$ -Pinen und Limonen) als aktive Ozon- und SOA-Produktionsterme angesehen, so wird heute auch vor allem die Rolle der Sesquiterpene hervorgehoben. Letztendlich muss jedoch der chemische Zusammenhang zwischen langgliedrigen biogenen Aerosolen und biogenen VOC-Vorläuferstoffen noch eindeutig gefunden werden, bevor er Einzug in gebräuchliche Chemie-Transport-Modelle finden kann. Nichtsdestoweniger macht es Sinn, auch diese Spezies in Emissionskatastern zu erfassen.

Emissionsabschätzungen für biogene VOC hängen zum einen von den meteorologischen Feldern, und da hauptsächlich von der Temperatur und der Strahlung ab, zum anderen von den berücksichtigten Baumarten. Diese wiederum müssen in Baumkatastern zusammengefasst werden. Isoprene und Terpene spielen bei der Ozon- und SOA-Produktion bei den biogenen VOC die wichtigste Rolle. Die Emissionsfaktoren für diese beiden Spezies wiederum sind von Baumart zu Baumart sehr variabel. Deshalb kann die Güte der Emissionsschätzungen sehr vom verwendeten Landnutzungsdatensatz abhängen. Es hat sich auch schon in verschiedenen Studien gezeigt, dass unterschiedlich detaillierte Datensätze zu sehr großen Änderungen in der Emissionsmenge an biogenen VOC geführt haben. So hat Simpson et al. (1995) bereits in ihrem Artikel hervorgehoben, dass aufgrund von unterschiedlichen Waldklassifizierungen vor allem an Fichten 50-100% höhere VOC-Mengen berechnet werden können. Auch die räumliche Verteilung der Fichtensorten, aber auch der Eichensorten in Skandinavien und in mediterranen Gebieten hat zu wesentlichen Unterschieden in den biogenen Emissionen geführt.

### **2.1 Biogene VOC nach Simpson et al. (1995) und Landnutzungsdatenbasis von Smiatek (1998)**

In ihrer Studie haben Simpson et al. verschiedene Baumklassen unterschieden, diese aber in 6 Oberklassen zusammengefasst, die wiederum die Emissionseigenschaften der relevanten Baumarten repräsentierten. Daraus wurde ein Algorithmus zur Berechnung der biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern herausgearbeitet. Dieser 1995 vorgestellte Algorithmus für Isoprene und für Mono-Terpene in Abhängigkeit von Temperatur, Strahlung und Biomasse gründete im Wesentlichen auf Arbeiten, die bereits in Guenter et al. (1993) beschrieben worden sind. Simpson et al (1995) haben dann erstmals die Algorithmen auf europäische Wälder angewandt und somit eine VOC-Emissionsmenge für Europa bestimmt. Um auch die nicht in Isoprenen und Mono-Terpenen beinhalteten flüchtigen Kohlenwasserstoffe zu berücksichtigen, wurde eine Emissionsklasse OVOC

(other volatile organic carbons) eingeführt. Das Baumkataster wurde in folgenden 6 Oberklassen zusammengefasst:

- Northern Oak (nordische Eiche)
- Mediterranean Oak (mediterrane Eiche)
- Other broadleaf (anderer Laubbaum)
- LI/Sitka spruce (westliche Fichte)
- Other spruce (andere Fichte)
- other coniferous (anderer Nadelbaum)

Des Weiteren wurde dann die statistische Verteilung dieser Bäume pro europäisches Land genommen, da diese als einzige Aufstellung vollständig vorlag. Um nun die Bäume räumlich zu verteilen, wurde eine gerasterte Landnutzungsdatenbasis von Smiatek (1998) benutzt, die als Landnutzungsklassen zwischen Nadelbäumen, Laubbäumen und Mischwald unterschied. Auf diese Maschen wurden dann die statistischen Werte der europäischen Länder angewandt. Da der Algorithmus nicht den einzelnen Bäumen VOC-Emissionen zuschrieb, sondern den Biomassen, die den Bäumen zugeordnet wurden, mussten auch diese noch abgeschätzt werden.

Am Ende wurden demnach die folgenden Schritte durchgeführt:

- 1) wie viele der 6 Baumarten gibt es pro Land?
- 2) wie viel Biomasse wird jeder Bauart zugewiesen?
- 3) die räumliche Verteilung wird auf ein Landnutzungsraster übertragen,
- 4) die funktionalen Abhängigkeiten von Temperatur, Strahlung und Biomasse werden für die Emissionen von Isopren, Mono-Terpenen und anderen VOC angewandt.

Dies führte zur Aufsummierung von Unsicherheiten, auch statistischer Natur. Ein wesentlicher Faktor für die Vereinfachung auf 6 Baumgruppen lag auch darin, dass Emissionsfaktoren nur für Eiche und Fichte mit einer benutzbaren Genauigkeit vorlagen. Die Unsicherheiten bei anderen Baumarten waren sehr hoch. Dennoch wurden auch diese Baumarten mit Biomassen und darüber mit Emissionsfaktoren versehen. Diese Methode der Abschätzung der VOC-Emissionen aus Wäldern ist standardmäßig im RCG kodiert.

## **2.2 Biogene VOC nach Simpson et al. (1999) und Landnutzungsdatenbasis von Smiatek-Köble (2002)**

Simpson et al veröffentlichten 1999 ein Folgepaper, in dem sie über 42 Baumarten mit Biomassen und Emissionsfaktoren versahen. Dies war aufgrund von neuen Experimenten und von einer gesicherteren Auswertung vielerlei Experimenten möglich. Zudem wurden aber weiterhin die Prozentanteile von verschiedenen Wäldern in europäischen Ländern geliefert. Des Weiteren wurde eine europäische Walddatenbasis von Köble et al. (2002) erstellt, die 115 Baumarten in Europa berücksichtigte. Die Daten wurden aus verschiedenen Quellen zusammengetragen und auf unterschiedlichen Gebietseinheiten zusammengefasst. Aufbauend auf den Arbeiten von Simpson et al. (1995 und 1999) sowie auf der CORINE-Datenbasis und Daten von ICP-Forest wurden statistische nationale Daten z.B. aus EUROSTAT in die Walddatenbasis mit aufgenommen, und ein einheitlicher Datensatz für 30 europäische und angrenzende Länder erzeugt. Die Daten wurden auf einem Gitter von 1x1 km<sup>2</sup> Auflösung gerastert und der FU zur Verfügung gestellt. A. Bleeker an der TNO (Bultjes et al., 2006) hat die Walddaten mit der im

RCG-Ausbreitungsmodell verwendeten Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) abgeglichen und sie einheitlich auf ein europaweites Raster von 2x2 km<sup>2</sup> gebracht. Smiateks Datenbasis ist eine Integration der CORINE-Daten mit PELINDA-Daten und wird standardmäßig sowohl im meteorologischen Treiber TRAMPER als auch im Chemie-Transport-Modell RCG verwendet. Deshalb war eine Weiterverwendung dieser Landnutzungsdaten von großem Interesse, und die detaillierten Walddaten von Köble et al. (2002) wurden in diese ältere Datenbasis von Smiatek (1998) eingearbeitet. Die aus Simpson et al. (1999) abgeleiteten Biomassen für über 40 Waldspezies wurden den 115 Baumarten aus Köble et al. (2002) entweder bei gleichen Baumarten eindeutig oder bei ähnlichen Baumarten über die Baumklassen zugewiesen. Bei der Überlagerung der Smiatek-Datenbasis und der Köble-Datenbasis kam es jedoch auch zu Unstimmigkeiten: das heißt, wenn in der Smiatek-Datenbasis eine Gitterzelle nicht mit Wald belegt war, diese Gitterzelle in der Köble-Datenbasis jedoch mit Bäumen versehen war, so wurde die Smiatek-Zuordnung beibehalten. Umgekehrt, wenn Smiatek eine Zelle mit Wald belegt hatte, Köble für diese Zelle jedoch keine Bäume vorwies, wurde die allgemeine Smiatek-Klassifikation beibehalten. Diese ist für Waldzellen wie folgt:

- Nadelwald,
- Laubwald und
- Mischwald.

Für diese Zellen wurde dann der alte Ansatz beibehalten, d. h. über die nationalen, statistischen Erhebungen der 6 in Simpson et al. (1995) beschriebenen Waldklassen wurden diese Baumspezies auf diese Zellen pro Land verteilt und die VOC-Emissionen wurden wie oben beschrieben abgeschätzt.

Der nun ins RCG alternativ eingebaute Ansatz ist aufgrund verbesserter Landnutzungsdaten nach Köble et al. (2002) vor allem in den 115 vorherrschenden Baumarten in Europa detaillierter in der Zuweisung von Biomassen und darauf aufbauenden Emissionskoeffizienten für Isopren, Monoterpene und OVOC. Dabei werden die neuen Erkenntnisse in Simpson et al. (1999) berücksichtigt. Die wesentlichen Unterschiede zu Simpson et al. (1995) sind

1. die Unterteilung der Terpene in Monoterpene die nur temperaturabhängig sind und in Monoterpene, die sowohl temperatur- als auch licht- (d.h. einstrahlungs-) abhängig sind in Abhängigkeit der Baumart,
2. die für die 42 unterschiedlichen Baumklassen vorgeschlagenen Biomassen und Emissionskoeffizienten,
3. die teilweise geänderten Biomassen der Baumarten,
4. und die aus neuen Mitteilungen der europäischen Länder abgeleiteten Prozentanteile für ca. 40 Baumarten.

Es liegen somit zwei wesentliche Informationsquellen vor, die miteinander verbunden wurden und alternativ zum alten Ansatz ins RCG integriert wurden:

- a) Die ursprünglichen 13 Landnutzungsklassen nach Smiatek (1998) wurden um 115 Baumklassen (Köble et al., 2001) von Bleeker (Bultjes et al., 2006) erweitert. Dabei wurden in die Smiatek-Klassen die Baumarten integriert. Die horizontale Auflösung ist 0.016667° in Nord-Süd und in West-Ost-Richtung (ca. 2x2 km<sup>2</sup>). Das Gebiet umfasst Gesamteuropa von 36° West bis 56° Ost und von 29° Nord bis 75° Nord. Wenn keine Informationen über den Baumbestand vorlagen,

wurden die alten Smiatek-Klassen „Nadelwald“, „Laubwald“ und „Mischwald“ beibehalten.

- b) Simpson et al. (1999) haben 42 Baumarten Biomassen, Emissionskoeffizienten und Abhängigkeiten von Licht und Temperatur zugeordnet. Des Weiteren liegen prozentuale Angaben über das Auftreten der 42 Baumarten in den europäischen Ländern vor.

Diese zwei Informationsquellen wurden vereinigt: die 42 Biomassen wurden auf die 115 Baumarten übertragen, die Emissionskoeffizienten wurden für alle 115 Baumarten abgeschätzt und die allgemeinen Waldklassen (Nadelwald, Laubwald, Mischwald) wurden aufgrund der Prozentanteile in den einzelnen Ländern auf die Baumarten verteilt. Jeder 2x2 km<sup>2</sup>-Zelle wurde über dieses Verfahren ein biogener Emissionsfluss zugewiesen und auf die im RCG verwendete Gitterauflösung aufsummiert.

**Tabelle 1:** Landnutzungs- und Baumklassen, Biomassen und Emissionskoeffizienten nach Simpson et al. 1999.

Code	Name	From	Biomass[g/m <sup>2</sup> ]	iso-coeff.	terp-coeff.(light)	terp-coeff.(mass)
1	Urban areas	Smiatek	0	0	0	0
2	Agriculture	Smiatek	1000	0	0	0.1
3	Grassland	Smiatek	400	0.1	0	0.1
4	Deciduous forest	Smiatek	300	10	0.2	0.2
5	Coniferous forest	Smiatek	1400	5	1.5	1.5
6	Mixed forest	Smiatek	850	5	1.5	1.5
7	Water	Smiatek	0	0	0	0
8	Marsh or wetland	Smiatek	0	0	0	0
9	Sand, bare rocks	Smiatek	0	0	0	0
10	Tundra	Smiatek	0	0	0	0
11	Permanent ice	Smiatek	0	0	0	0
12	Tropical forest	Smiatek	0	0	0	0
13	Woodland scrub	Smiatek	200	8	0	0.65
22	Abies alba	Koeble	1400	0.1	0	3
23	Abies borisii-regis	Koeble	1400	0.1	0	3
24	Abies cephalonica	Koeble	1400	0.1	0	3
25	Abies grandis	Koeble	1400	0.1	0	3
26	Acer campestre	Koeble	320	0.1	0	3
27	Acer monspessulanum	Koeble	320	0.1	0	3
28	Acer opalus	Koeble	320	0.1	0	3
29	Acer platanoides	Koeble	320	0.1	0	3
30	Acer sp.	Koeble	320	0.1	0	3
31	Alnus cordata	Koeble	320	0.1	0	1.5
32	Alnus glutinosa	Koeble	320	0.1	0	1.5
33	Alnus incana	Koeble	320	0.1	0	1.5
34	Alnus viridis	Koeble	320	0.1	0	1.5
35	Arbutus andrachne	Koeble	320	0.1	0	0
36	Arbutus unedo	Koeble	320	0.1	0	0
37	Betula pendula	Koeble	320	0.1	2	0.2
38	Betula pubescens	Koeble	320	0.1	0.2	0
39	Buxus semperviridis	Koeble	320	0.1	0	0
40	Carpinus betulus	Koeble	320	0.1	0	0.65
41	Carpinus orientalis	Koeble	320	0.1	0	0.65
42	Castanea sativa	Koeble	320	0.1	0	0.65
43	Cedrus atlantica	Koeble	700	0.1	0	0
44	Cedrus deodara	Koeble	700	0.1	0	0
45	Cercis siliquastrum	Koeble	320	0.1	0	0
46	Ceratonia siliqua	Koeble	200	0.1	0	0

47	<i>Corylus avellana</i>	Koeble	320	0.1	0	0
48	<i>Cupressus sempervirens</i>	Koeble	700	0.1	0	0.65
49	<i>Erica arborea</i>	Koeble	320	0.1	0	0
50	<i>Erica manipuliflora</i>	Koeble	320	0.1	0	0
51	<i>Erica scoparia</i>	Koeble	320	0.1	0	0
52	<i>Eucalyptus</i> sp.	Koeble	400	20	0	3
53	<i>Fagus moesiaca</i>	Koeble	320	0.1	0	0.65
54	<i>Fagus orientalis</i>	Koeble	320	0.1	0	0.65
55	<i>Fagus sylvatica</i>	Koeble	320	0.1	0.4	0
56	<i>Fraxinus angustifolia</i>	Koeble	320	0.1	0	0
57	<i>Fraxinus excelsior</i>	Koeble	320	0.1	0	0
58	<i>Fraxinus ornus</i>	Koeble	320	0.1	0	0
59	<i>Ilex aquifolium</i>	Koeble	320	0.1	0	0
60	<i>Juglans nigra</i>	Koeble	320	0.1	0	0
61	<i>Juglans regia</i>	Koeble	320	0.1	0	0
62	<i>Juniperus communis</i>	Koeble	700	0.1	0	0.65
63	<i>Juniperus oxycedrus</i>	Koeble	700	0.1	0	0.65
64	<i>Juniperus phoenicea</i>	Koeble	700	0.1	0	0.65
65	<i>Juniperus thurifera</i>	Koeble	700	0.1	0	0.65
66	<i>Larix decidua</i>	Koeble	300	0.1	0	1.5
67	<i>Larix kaempferi</i>	Koeble	300	0.1	0	1.5
68	<i>Laurus nobilis</i>	Koeble	300	0.1	0	0
69	<i>Malus domestica</i>	Koeble	300	0.1	0	0
70	<i>Olea europaea</i>	Koeble	200	0.1	0	0
71	<i>Ostrya carpinifolia</i>	Koeble	300	0.1	0	0
72	Other broadleaves	Koeble	300	0.1	0	0
73	Other conifers	Koeble	1000	0.1	0	0
74	<i>Phillyrea latifolia</i>	Koeble	300	0.1	0	0
75	<i>Picea abies</i>	Koeble		0.1	1.5	1.5
76	<i>Picea sitchensis</i>	Koeble		0.1	1.5	1.5
77	<i>Pinus brutia</i>	Koeble	700	0.1	0	3
78	<i>Pinus canariensis</i>	Koeble	700	0.1	0	3
79	<i>Pinus cembra</i>	Koeble	700	0.1	0	3
80	<i>Pinus contorta</i>	Koeble	700	0.1	0	3
81	<i>Pinus halepensis</i>	Koeble	700	0.1	0	0.65
82	<i>Pinus leucodermis</i>	Koeble	700	0.1	0	3
83	<i>Pinus mugo</i>	Koeble	700	0.1	0	3
84	<i>Pinus nigra</i>	Koeble	700	0.1	0	3
85	<i>Pinus pinaster</i>	Koeble	700	0.1	0	3
86	<i>Pinus pinea</i>	Koeble	700	0.1	0	6
87	<i>Pinus radiata</i>	Koeble	700	0.1	0	3
88	<i>Pinus strobus</i>	Koeble	700	0.1	0	3
89	<i>Pinus sylvestris</i>	Koeble		0	0	3
90	<i>Pinus uncinata</i>	Koeble	700	0.1	0	3
91	<i>Pistacia lentiscus</i>	Koeble	320	0.1	0	3
92	<i>Pistacia terebinthus</i>	Koeble	320	0.1	0	3
93	<i>Platanus orientalis</i>	Koeble	320	34	0	0
94	<i>Populus alba</i>	Koeble	320	60	0	0
95	<i>Populus canescens</i>	Koeble	320	60	0	0
96	<i>Populus hybrides</i>	Koeble	320	60	0	0
97	<i>Populus nigra</i>	Koeble	320	60	0	0
98	<i>Populus tremula</i>	Koeble	320	60	0	0
99	<i>Prunus avium</i>	Koeble	300	0.1	0	0
100	<i>Prunus padus</i>	Koeble	300	0.1	0	0
101	<i>Prunus serotina</i>	Koeble	300	0.1	0	0
102	<i>Pseudotsuga menziesii</i>	Koeble	1000	0.1	0	1.5
103	<i>Pyrus communis</i>	Koeble	300	0.1	0	0
104	<i>Quercus cerris</i>	Koeble	320	0.1	0	1

105	Quercus coccifera	Koeble	500	0.1	20	0
106	Quercus faginea	Koeble	320	60	0	0.2
107	Quercus frainetto	Koeble	320	60	0	0.2
108	Quercus fructosa	Koeble	500	0.1	20	0
109	Quercus ilex	Koeble	500	0.1	20	0
110	Quercus macrolepis	Koeble	320	60	0	0.2
111	Quercus patraea	Koeble	320	60	0	0.2
112	Quercus pubescens	Koeble	320	60	0	0.2
113	Quercus pyrenaica	Koeble	320	60	0	0.2
114	Quercus robur	Koeble	320	60	0	0.2
115	Quercus rotundifolia	Koeble	320	0.1	0	0
116	Quercus rubra	Koeble	320	60	0	0.2
117	Quercus suber	Koeble	500	0.1	0	0.2
118	Quercus trojana	Koeble	320	0.1	0	0
119	Robinia pseudoacacia	Koeble	320	34	0	0
120	Salix alba	Koeble	150	34	0	0
121	Salix caprea	Koeble	150	34	0	0
122	Salix cinerea	Koeble	150	34	0	0
123	Salix eleagnos	Koeble	150	34	0	0
124	Salix sp.	Koeble	150	34	0	0
125	Sorbus aria	Koeble	300	0.1	0	0
126	Sorbus aucuparia	Koeble	300	0.1	0	0
127	Sorbus domestica	Koeble	300	0.1	0	0
128	Sorbus torminalis	Koeble	300	0.1	0	0
129	Taxus baccata	Koeble	700	0.1	0	0
130	Thuja sp.	Koeble	700	0.1	0	0
131	Tilia cordata	Koeble	320	0.1	0	0
132	Tilia platyphyllos	Koeble	320	0.1	0	0
133	Tsuga sp.	Koeble	700	0.1	0	0
134	Ulmus glabra	Koeble	320	0.1	0	0.2
135	Ulmus laevis	Koeble	320	0.1	0	0.2
136	Ulmus minor	Koeble	320	0.1	0	0.2

Wie eingangs erklärt, wurden die nicht klassifizierten Smiatek-Landnutzungsklassen prozentual den in Köble et al. (2002) aufgelisteten Baumklassen zugewiesen und dabei die in Tabelle 2 dargestellte Zuordnung übernommen. Dabei wurde wie folgt vorgegangen: Die für jedes Land mitgeteilten Prozentanteile an Wald (Tabelle 3) wurden für jede Waldzelle auf die einzelnen Bäume aufgeteilt.

**Tabelle 2:** Zuweisung der in Simpson et al. (1999) aufgelisteten Baumklassen zu den in Köble et al. (2002) genannten Bäumen, bzw. zu den in Smiatek (1998) Landnutzungsklassen für Wälder: 4 = laubabwerfend, 5 = zapfentragend und 6 = Mischwald.

Name	Smiatek-id	Köble-id
Abies	5	22
Acer	4	26
Alnus	4	31
Betula	4	37
Carpinus	4	40
Castanea	4	42
Citrus	4	91
Eucalyptus	4	52
Fagus	4	53
Fraxinus	4	56
Larix	5	66

Olea	4	70
Picea unspecified	5	75
Picea abies	5	75
Picea sitchensis	5	76
Pinus unspecified	5	77
Pinus brutia	5	77
Pinus cembra	5	79
Pinus contorta	5	80
Pinus halepensis	5	81
Pinus laricio	5	77
Pinus nigra	5	84
Pinus pinaster	5	85
Pinus sylvestris	5	89
Populus	4	94
Populus tremula	4	98
Pseudotsuga	5	102
Quercus unspecified	4	104
Quercus cerris	4	104
Quercus robur	4	114
Quercus Faginea	4	106
Quercus Lusitanica	4	104
Quercus ilex	4	109
Quercus petraea	4	104
Quercus pubescens	4	112
Quercus suber	4	117
Quercus decid	4	104
Robinia	4	119
Salix	4	120
Other confifers	5	22
Other broadleaf	4	53
Other trees	6	99

**Tabelle 3:** Prozentuale Waldbestände in den europäischen Ländern nach Simpson et al., 1999.

Country	Name	Country-Id	Forest-Fraction
AL	Albanien	3	38%
AT	Österreich	6	39%
BY	Weißrussland	9	36%
BE	Belgien	7	19%
BA	Bosnien-Herzegowina	8	47%
BG	Bulgarien	10	35%
HR	Kroatien	27	37%
CS	Serbien-Montenegro	16	37%
DK	Dänemark	12	12%
EE	Estland	15	44%
FI	Finnland	17	76%
FR	Frankreich	19	27%
GDR	Frühere DDR	24	30%
FRG	Frühere BRD	24	30%
GR	Griechenland	25	20%
HU	Ungarn	28	18%
IE	Irland	14	5%
IT	Italien	33	23%
LU	Luxemburg	45	34%
LT	Litauen	42	30%
LI	Lichtenstein	68	26%

NL	Niederlande	54	9%
NO	Norwegen	55	27%
PL	Polen	56	29%
PT	Portugal	57	32%
RO	Rumänien	58	29%
RU	Russland	59	38%
SK	Slowakei	43	40%
SI	Slowenien	61	50%
ES	Spanien	63	32%
SE	Schweden	66	68%
CH	Schweiz	68	26%
FYM	Ehem. Jugoslawien-Mazedonien	48	42%
UA	Ukraine	73	15%
UK	Großbritannien	72	10%
YU	Ehem. Jugoslawien	64	41%

### 2.3 Berechnung der Emissionsflüsse

Aus den maximalen Emissionsflüssen wird wie bereits in Simpson et al. (1995) nach Guenther et al. (1993) der effektive Emissionsfluss berechnet.

Die Aufteilung der Monoterpene in temperatur-abhängige Flüsse (mts) und in temperatur- und licht-abhängige Flüsse (mtl) ist dabei jedoch neu:

Der maximale Isoprene- bzw. Monoterpene-Emissionsfluss wird wie folgt ausgedrückt:

$$\text{Isoprenfluss}_{\text{max}} = \text{Biomasse} * \text{Isopren-Emissionskoeffizient}$$

$$\text{Monoterpenefluss}_{\text{max}} = \text{Biomasse} * \text{Monoterpen-Emissionskoeffizient}$$

Eine Einheitenanalyse ergibt:

$$[\mu\text{g (C) / m}^2 \text{ h}] = [\text{g/m}^2] * [\mu\text{g (C) / g h}]$$

Die effektive Emissionsstärke F berechnet sich in Abhängigkeit von Temperatur und Lichtstrahlung:

$$F = \text{isoprene} * \gamma(\text{iso})$$

$$F = \text{monoterpeneS} * \gamma(\text{mts})$$

$$F = \text{monoterpeneL} * \gamma(\text{mtl})$$

$$F = \text{ovoc} * \gamma(\text{mts})$$

wobei der Emissionskoeffizient für Isoprene  $\gamma(\text{iso})$  sowohl von der Lichteinstrahlung (PAR – Photosynthetically active Radiation) als auch von der Temperatur (T) abhängt und der Emissionskoeffizient für Monoterpene  $\gamma(\text{mts})$  unterschiedlich für verschiedene Baumklassen ist; zum einen nur licht- (PAR) und zum anderen licht- und temperatur- (PAR,T) abhängig.

$$\gamma(\text{iso}) = \gamma(\text{iso})(\text{PAR},\text{T})$$

$$\gamma(\text{mts}) = \gamma(\text{mts})(\text{T})$$

$$\gamma(\text{mtl}) = \gamma(\text{iso})(\text{PAR},\text{T})$$

PAR = photosynthetically active radiation

$$\gamma(iso) = \frac{\alpha C_{L1} Q}{\sqrt{1 + \alpha^2 Q^2}} * \frac{\exp \frac{C_{T1}(T - T_s)}{RT_s T}}{1 + \exp \frac{C_{T2}(T - T_m)}{RT_s T}}$$

Q = PAR [ $\mu\text{mol}(\text{photons})/(\text{m}^2 \text{ s})$ ]

T = ambient temperature [K]

T<sub>s</sub> = leaf temperature at standard [K] (= 303K)

R = 8.314 J\*K<sup>-1</sup>\*mol<sup>-1</sup>

$\alpha$  = 0.0027

C<sub>L1</sub> = 1.066

C<sub>T1</sub> = 95000 J\*mol<sup>-1</sup>

C<sub>T2</sub> = 230000 J\*mol<sup>-1</sup>

T<sub>m</sub> = 314K

C<sub>T3</sub> = 0.961

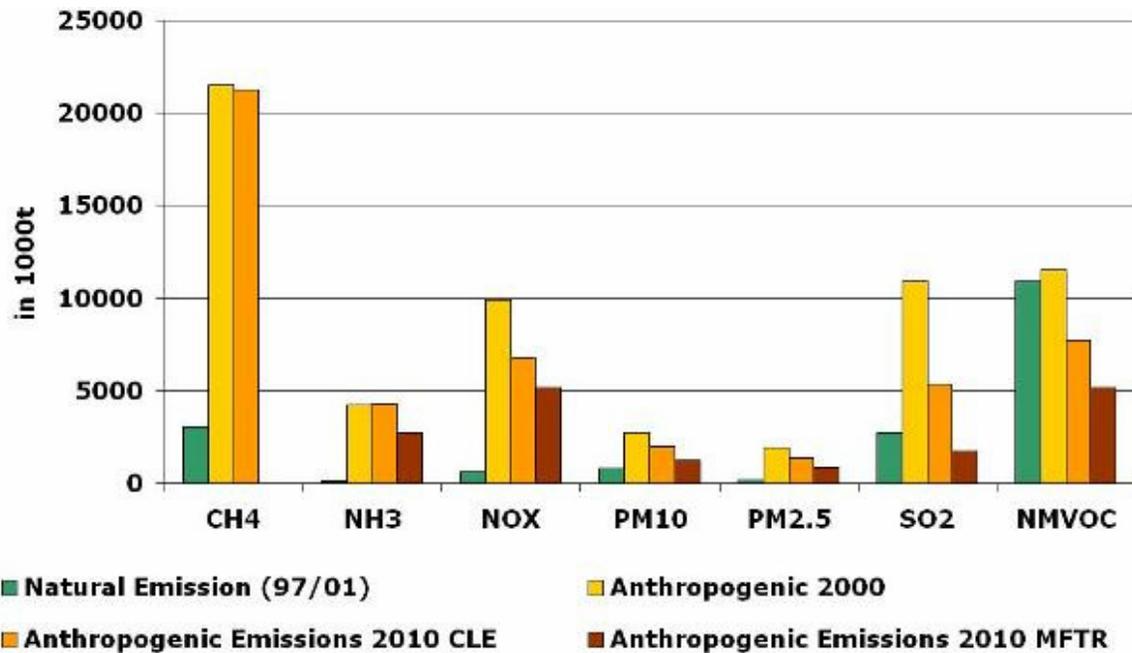
$\gamma(\text{mts}) = \exp[\beta*(T - T_s)]$

$\beta = 0.09 \text{ K}^{-1}$

$\gamma(\text{mtl}) = \gamma(\text{iso})$

## 2.4 NATAIR (Steinbrecher et al. 2009)

Im Rahmen des sechsten Rahmenprogramms der Europäischen Gemeinschaft wurde unter Federführung der Universität Stuttgart das Forschungsprojekt NATAIR durchgeführt (Friedrich, 2008). Vor allem die Lücke in der quantitativen Erfassung, aber auch die Lücke im Verständnis der Produktionsprozesse von natürlichen und biogenen Emissionen war ausschlaggebend für das Durchführen dieses Projektes. Des Weiteren wird ein steter Rückgang der anthropogenen Emissionen in Europa festgestellt, was die Wichtigkeit der natürlichen und biogenen Emissionsquellen hervorhebt. Ein wesentlicher Punkt des FP6-Forschungsprojektes NATAIR war es dementsprechend auch, die Genauigkeit der biogenen und der natürlichen Emissionsstärken zu verbessern, um deren Einfluss auf die Entstehung von Luftschadstoffen in Europa besser abschätzen zu können.



**Abbildung 1:** Abschätzung der natürlichen (grüne Balken) und der anthropogenen Emissionsmengen für das Jahr 2000 (gelber Balken) im NATAIR-Gebiet und Projektionen für das Jahr 2010 unter Annahme der Umsetzung der laufenden Gesetze (dunkelgelber Balken) und unter Annahme der Durchführung aller technischen Möglichkeiten (brauner Balken) (aus Friedrich, 2008).

Abbildung 1 zeigt beispielsweise die Emissionsprojektionen für das Jahr 2010 ausgehend von einem Basisjahr 2000 für das NATAIR-Gebiet. Deutlich ersichtlich wird, dass vor allem für SO<sub>2</sub> und für VOC der Beitrag aus natürlichen Quellen an den Gesamtemissionen erheblich und auch vorrangig sein wird.

Innerhalb des NATAIR-Projektes wurde dabei versucht, den aktuellen Wissenstand zu sammeln, alle relevanten biogenen und natürlichen Emissionsquellen für VOC, PM, SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, CO, DMS, NH<sub>3</sub>, CH<sub>4</sub> und NO zu benennen und Abschätzungen sowohl der Gesamtmengen als auch deren Unsicherheit zu geben. Dabei wurden folgende Quellen berücksichtigt:

- Natürliche und semi-natürliche Vegetation (VOC)
- Staubaufwirbelung (PM)
- Vulkane (SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, PM)
- Waldbrände und Biomassenverbrennung (NO<sub>x</sub>, PM, CO, VOC)
- NO aus Naturböden
- Blitze (NO)
- Biologische Primärpartikel (PM)
- Küstengebiete, Ozeane und Seen (DMS)
- Seesalz (PM)
- Wildtiere (CH<sub>4</sub>, NH<sub>3</sub>)
- Anaerobe Bodenprozesse, Sümpfe (CH<sub>4</sub>)
- Geologisches Aussickern (CH<sub>4</sub>).

Algorithmen wurden gesammelt, geprüft und angewandt und über Publikationen der Öffentlichkeit zur Verfügung gestellt.

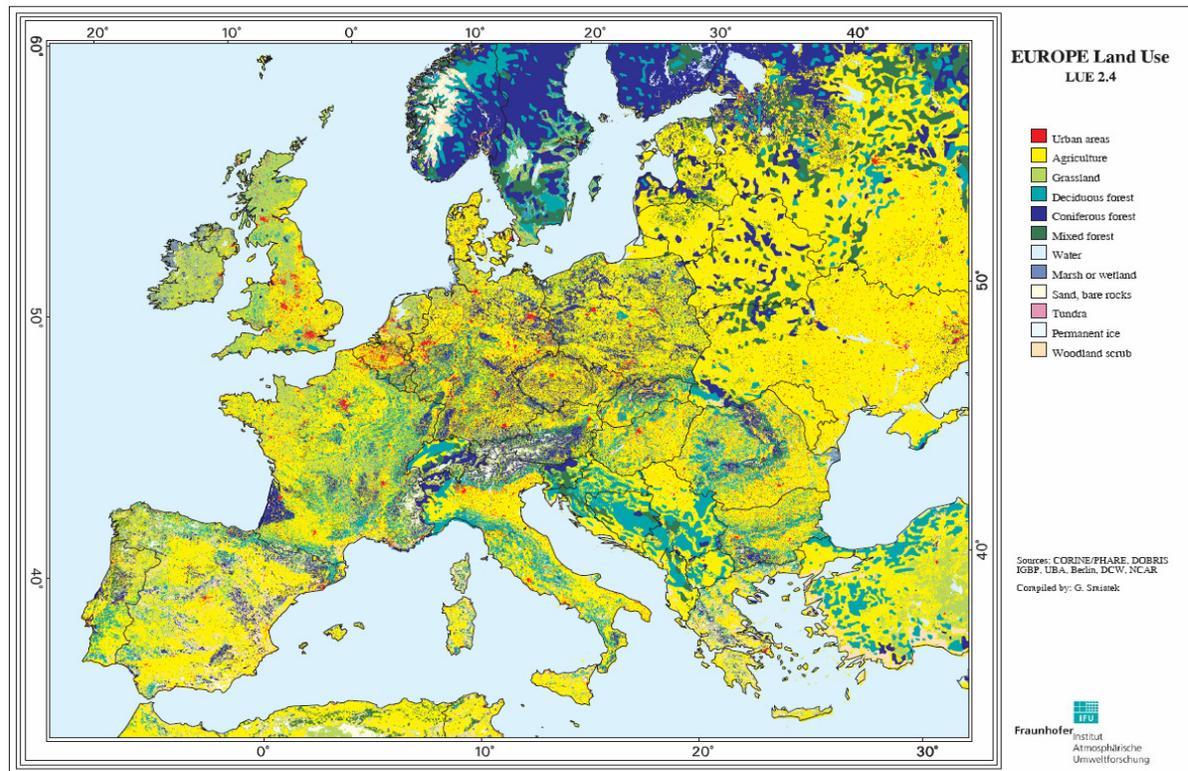
Räumlich wurden alle während der Projektlaufzeit (Jan 2005 – Mar 2007) dazugehörenden 25 Europäische Länder, sowie Schweiz, Norwegen, Bulgarien und Rumänien berücksichtigt.

Die im NATAIR-Projekt durchgeführten biogenen VOC-Schätzungen für Wälder basieren auf der Methode, die in Simpson et al. (1999) beschrieben worden ist, die wiederum die Emissionsfaktoren über die Strahlungs- und Biomassenabhängigkeit benutzt, die bereits in Guenther et al. (1993) zu finden ist. Dieser Ansatz wurde auch im RCG implementiert und wird im weiteren Verlauf der Arbeit häufig als [Simpson 99] bezeichnet werden. Die wichtigsten Merkmale in der für das NATAIR-Projekt produzierten VOC-Emissionsdatenbasis für Europa sind

- die höhere Informationsdichte bezüglich Baumverteilung auf regionaler Ebene (in Simpson et al. (1999) war die nur auf nationaler Ebene verfügbar),
- überarbeitete Emissionsfaktoren und zugewiesene Biomassen für einzelne Baumarten und deren Jahreszeitenabhängigkeit, und
- die Einführung einer Strahlungsminderung innerhalb des Waldbestandes, die die Emissionen von unteren Baumschichten bzw. Ästen anders behandelt als die Baumkronen.

Die Details sind in Steinbrecher et al. (2009) beschrieben. Die verwendeten meteorologischen Variablen wurden mit MM5 simuliert. Am Ende stand ein stündlicher Datensatz mit einer horizontalen Auflösung von 10x10 km<sup>2</sup> für Europa und anliegende Länder für Isoprene, Monoterpene, Sesquiterpene und „OVOC“ (other VOCs) für die Jahre 1997, 2000, 2001 und 2003 zur Verfügung.

## 2.5 Landnutzungsdatenbasen



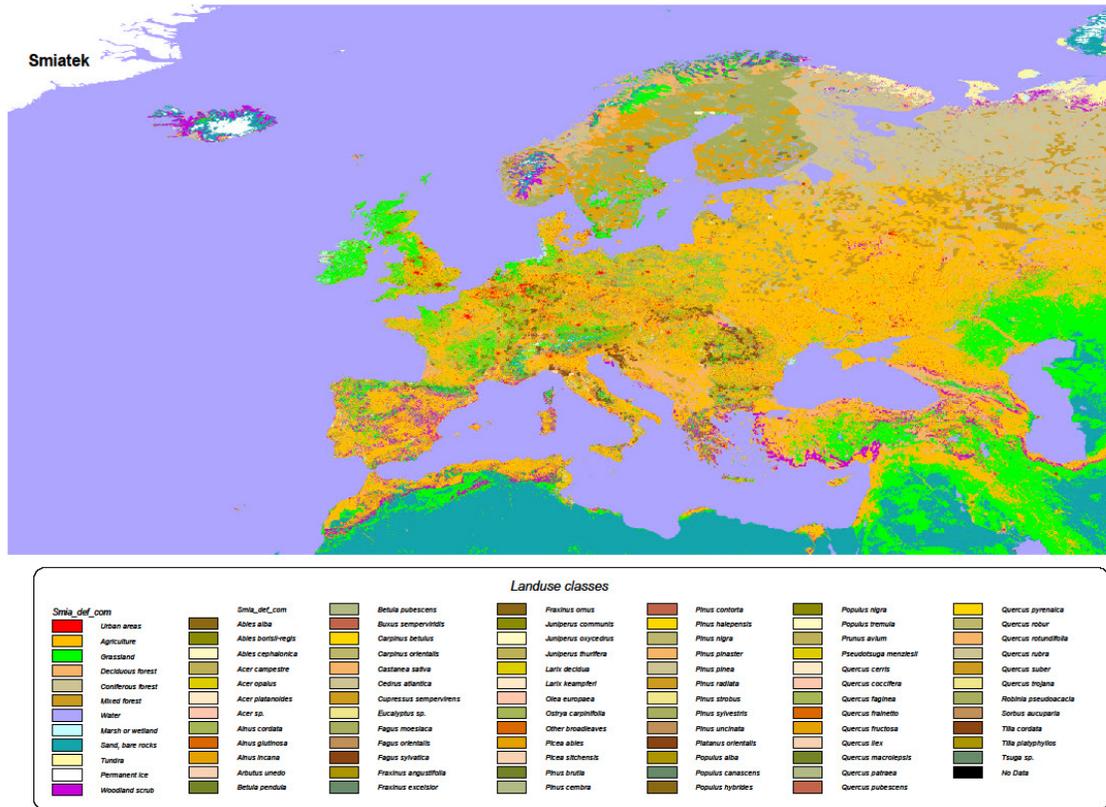
**Abbildung 2:** Landnutzungsdatenbasis nach Simatek (1998) mit 13 Landnutzungsklassen, von denen 3 für Wälder (Nadelwald, Laubwald, Mischwald).

Abbildung 2 zeigt die von Simatek (1998) erstellte Landnutzungsdatenbasis mit einer räumlichen Auflösung von ca.  $2 \times 2 \text{ km}^2$  ( $0.01667^\circ \times 0.01667^\circ$ ) für Europa und anliegende Länder. Die 13 Landnutzungsklassen sind folgende:

- städtische Gebiete,
- Landwirtschaft,
- Grasflächen,
- Laubwerfende Wälder,
- Zapfentragende Wälder,
- Mischwald,
- Wasser,
- Feuchtgebiete,
- Sand, Fels,
- Tundra,
- Eis und
- Busch.

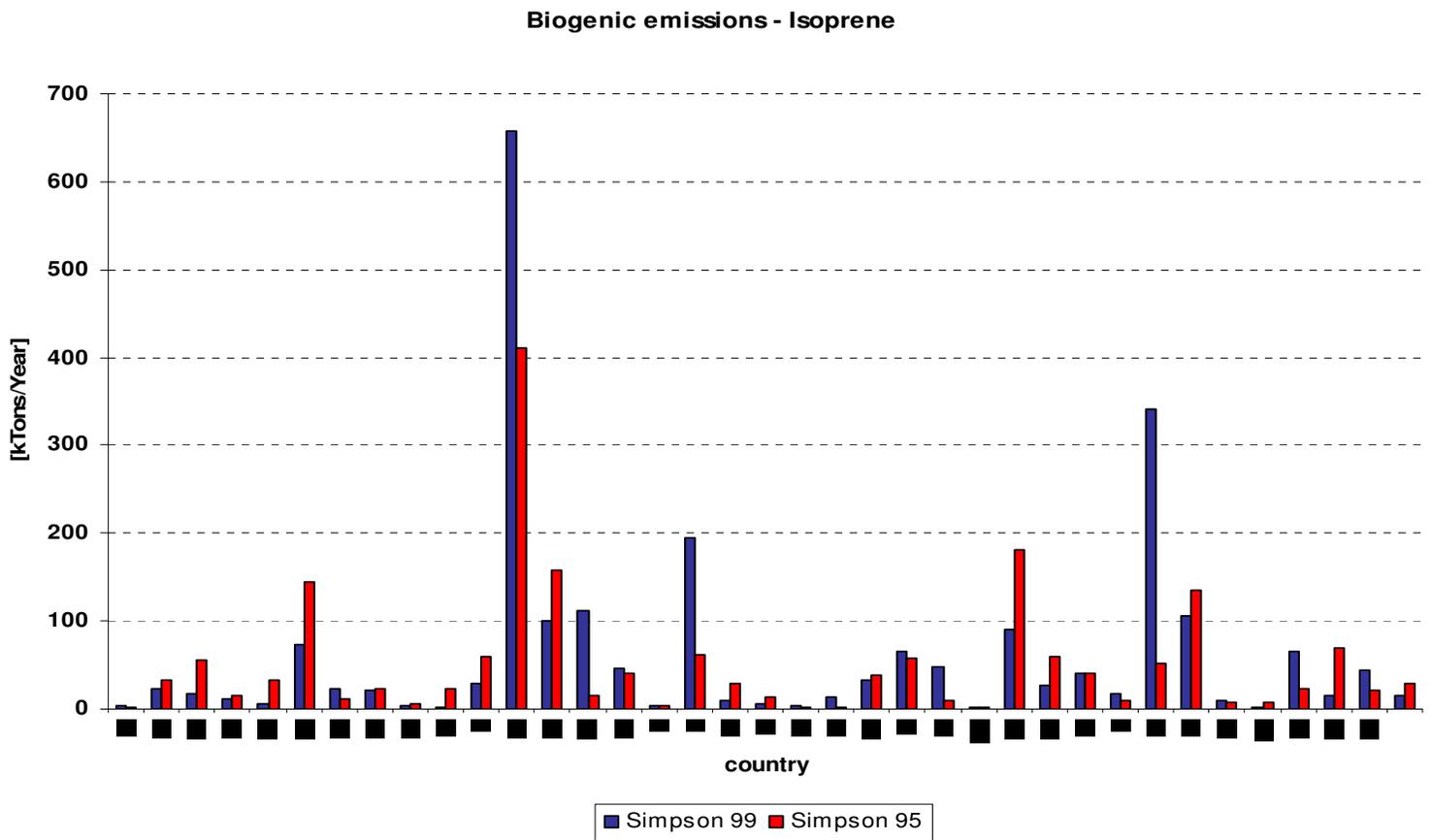
In diese Datenbasis wurden von A. Bleeker (Builjtes et al., 2006) die in Abbildung 3 dargestellten Zusatzinformationen eingebaut. Dabei wurde die von Köble et al. (2002) generierte Baumdatenbasis für Europa und anliegende Länder mit der Simatek-Landnutzungsdatenbasis georeferenziert verknüpft. War ursprünglich die Köble-Datenbasis  $1 \times 1 \text{ km}^2$  aufgelöst, so musste nun diese höhere Auflösung in die gröbere

Smiatek-Auflösung (ca. 2x2 km<sup>2</sup>) überführt werden. Auch konnten nicht für alle Zellen Übereinstimmungen gefunden werden: so kam es vor, dass in der Köble-Datenbasis Bäume dort zu finden waren, wo in der Smiatek-Datenbasis keine der drei Waldklassen zu finden war und umgekehrt. Dort wurde dann die Smiatek-Landnutzung beibehalten. Dies heißt jedoch auch, dass in der neuen verknüpften Datenbasis weiterhin generische Waldklassen zu finden sind, nämlich dort, wo für diese Smiatek-Zellen keine Waldinformationen von Köble zu finden waren.



**Abbildung 3:** Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998), verknüpft mit Walddaten von Köble et al. (2002) mit Informationen über 115 Baumspeszies.

## 2.6 Unterschiede zwischen [Smiatek (1998) – Simpson et al. (1995)] und [Köble et al. (2002) – Simpson et al. (1999)]



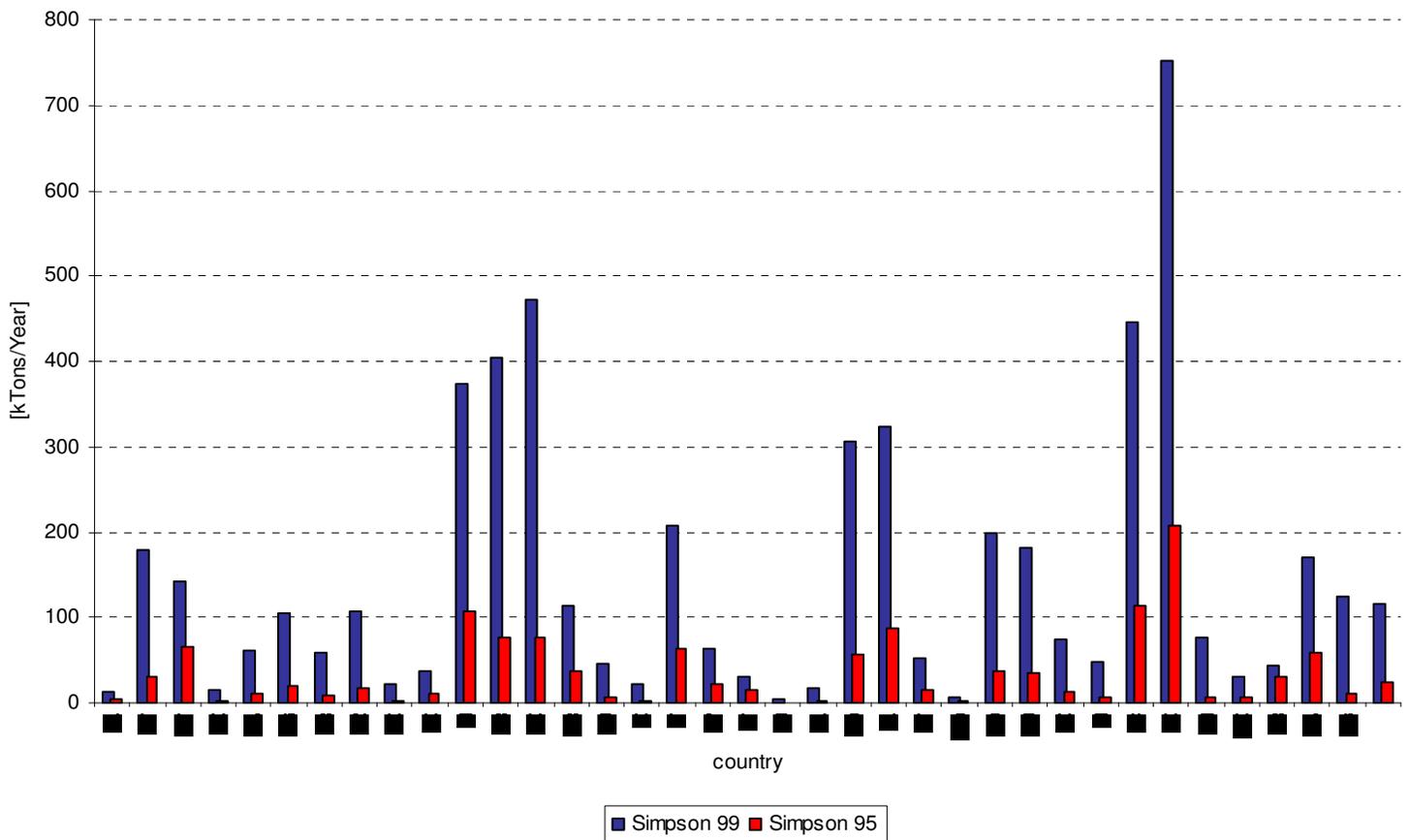
**Abbildung 4:** Vergleich der biogenen Isopren-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995)

Abbildung 4 zeigt die berechneten Jahressummen für das meteorologische Jahr 2005 der Isoprenemissionen aus Wäldern für unterschiedliche europäische und angrenzende Länder in Kilo-Tonnen pro Jahr. Deutlich wird, dass für Frankreich die höchsten biogenen Emissionsmengen aus Wäldern berechnet werden, sowohl wenn als Datengrundlage die Landnutzungsdatenbasis von Smiatek (1998) benutzt wird (rote Balken) als auch wenn die Zusatzinformationen über verschiedene Baumarten Verwendung finden (blaue Balken). Auffallend ist, dass die im mediterranen Bereich sich befindenden Länder (Frankreich, Italien, Spanien, Griechenland) mit deutlich höheren Isoprenmengen simuliert werden, wenn der Ansatz nach Simpson et al. (1999) und mit der Köble-Datenbasis benutzt wird, als wenn Simpson et al. (1995) und der Smiatek-Datensatz zur Grundlage gelegt wird. Umgekehrt verhält es sich zum Beispiel für Deutschland (DE), Rumänien (RO), Schweden und Bulgarien. Es zeigt sich jedoch auch, dass die unterschiedlichen Datensätze zu bis zu fünffach unterschiedlichen

Isoprenmengen führen (z. B. Spanien) können. Nicht immer werden jedoch mit der Köble-Datenbasis höhere Werte berechnet als mit der Smiatek-Datenbasis.

Schaut man sich nun jedoch die Abschätzungen für Terpene an (Abbildung 5), so ergibt sich ein vollkommen anderes Bild. Wird hier die Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und die Methode, die in Simpson et al. (1999) beschrieben worden ist, zur Grundlage für die Berechnung der Terpenemissionen 2005 angewandt, so werden für alle Länder deutlich höhere biogene Emissionsmengen vorhergesagt, als mit der alten Methode.

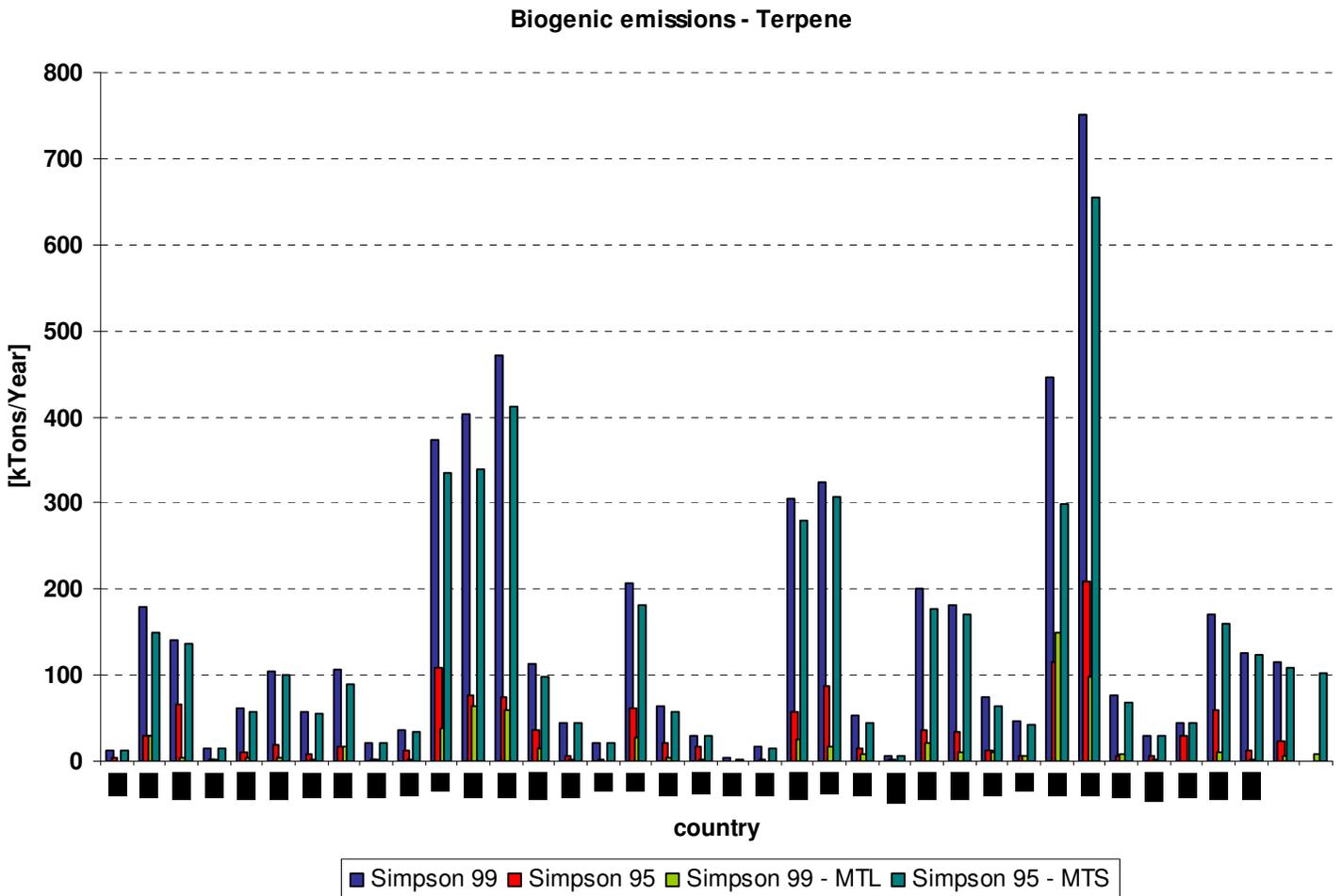
### Biogenic emissions - Terpene



**Abbildung 5:** Vergleich der biogenen Terpen-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995)

Für fast alle Länder werden dabei mindestens doppelt so hohe Terpenemissionen aus Wäldern berechnet, unabhängig von geographischer Breite. So werden zum Beispiel für Deutschland ca. 5fach höhere Monoterpenemissionen vorhergesagt, wenn die Zusatzinformationen aus der Köble-Walddatenbasis in die Smiatek-Landnutzungsclassen eingearbeitet werden und wenn die von Simpson et al. (1999) überarbeiteten Biomassen und Emissionsfaktoren berücksichtigt werden. Abbildung 6 schlüsselt die Berechnung der Monoterpenemissionen aus Wäldern auf: so wird bei der Abschätzung nach Simpson

et al. (1999), aufbauend auf die Zusatzinformationen über Baumklassen aus der Köble et al. (2002)-Datenbasis, zwischen strahlungsabhängigen und biomassenabhängigen Emissionsentstehungsprozessen unterschieden. Die Summe dieser beiden Beiträge liefert dann die Gesamtemission an Monoterpenen aus Wäldern. Wie ersichtlich ist, wird bei weitem in allen berücksichtigten Ländern der höchste Beitrag aus den biomassenabhängigen Emissionsprozessen berechnet. Der Anteil der biogenen VOC-Emissionen für Monoterpene, der strahlungsbedingt berechnet wird, liegt bei ca. einem Achtel.

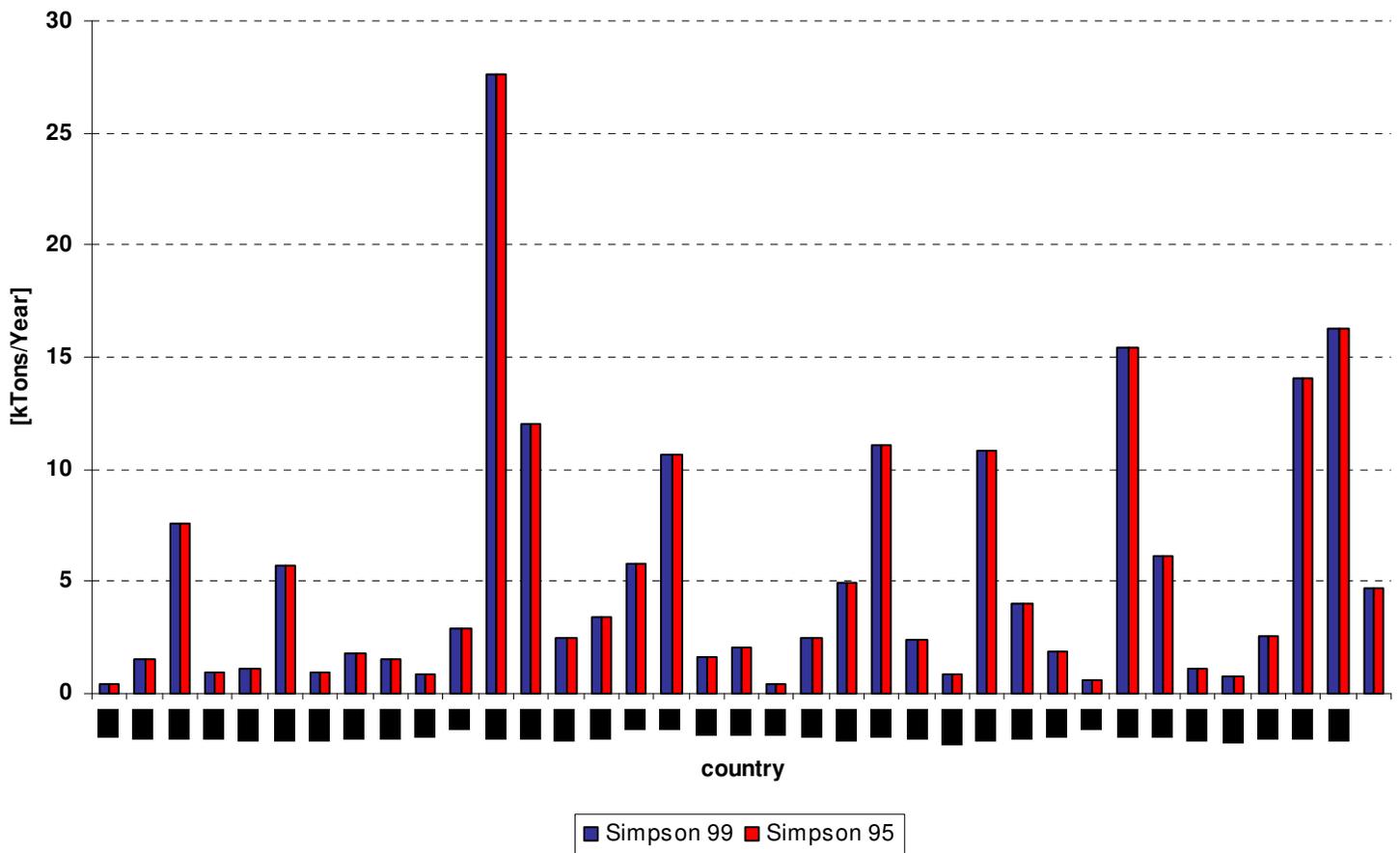


**Abbildung 6:** Vergleich der biogenen Terpen-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995), hellgrüne Balken: Köble-Bauminformationen (2002) und Simpson et al. (1999)-Methode zur Berechnung der Monoterpen-Emissionen, die aus der alleinigen Strahlungsabhängigkeit herrühren, dunkelgrüne Balken: Köble-Bauminformationen (2002) und Simpson et al. (1999)-Methode zur Berechnung der Monoterpen-Emissionen, die aus der alleinigen Biomassenabhängigkeit herrühren (Summe der grünen Balken = blauer Balken)

Abbildung 7 stellt die für die berücksichtigten Länder berechneten NO-Emissionen aus natürlichen Böden dar. Die Methode für die Berechnung dieser Emissionen hat sich nicht geändert. Die höchsten Werte werden auch hier für Frankreich berechnet, gefolgt von

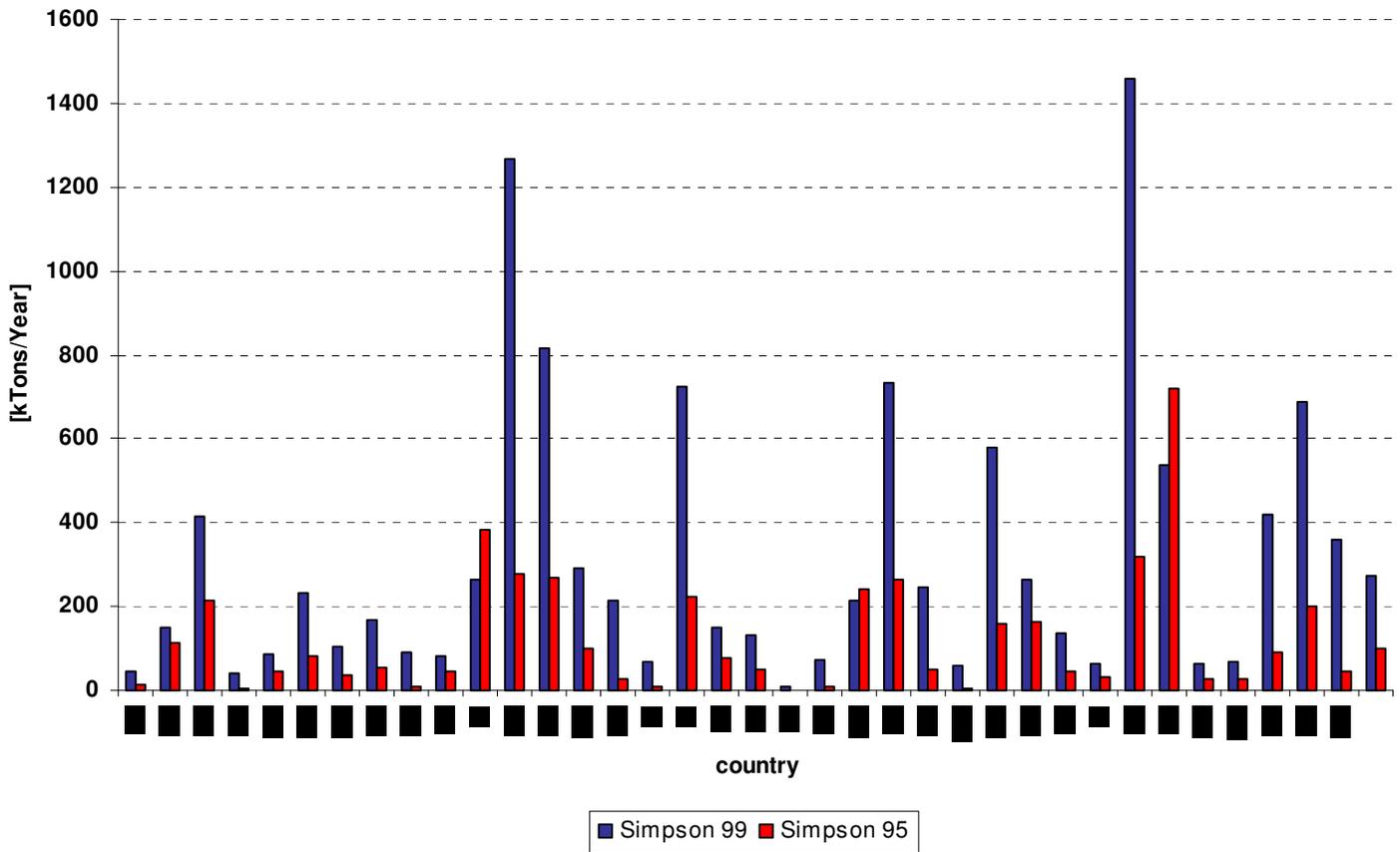
Großbritannien und Spanien. Für Deutschland wurden mit der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode für das Jahr 2005 ca. 12 Kilotonnen berechnet. Dem gegenüber wurden zur Bestimmung der so genannten „übrigen VOC“ („other VOC“ – OVOC) die Zusatzinformationen von Köble et al. benutzt, die von Simpson et al. (1999) zur Berechnung dieser Emissionen vorgeschlagen wurden (Abbildung 8). Vor allem in Frankreich, Deutschland, Italien und Spanien werden mit der neuen Methode deutlich höhere Werte berechnet als mit der alten. Nur in Skandinavien (Finnland, Schweden, Norwegen) werden anhand der alten Länderstatistiken und anhand der nicht aufgeschlüsselten Bauminformationen höhere OVOC-Mengen simuliert. Wiederum liegen die Änderungen anhand anderer Informationen und anderer Berechnungsmethoden bei über 100% für einen Großteil der berücksichtigten Länder.

### Biogenic emissions - NO



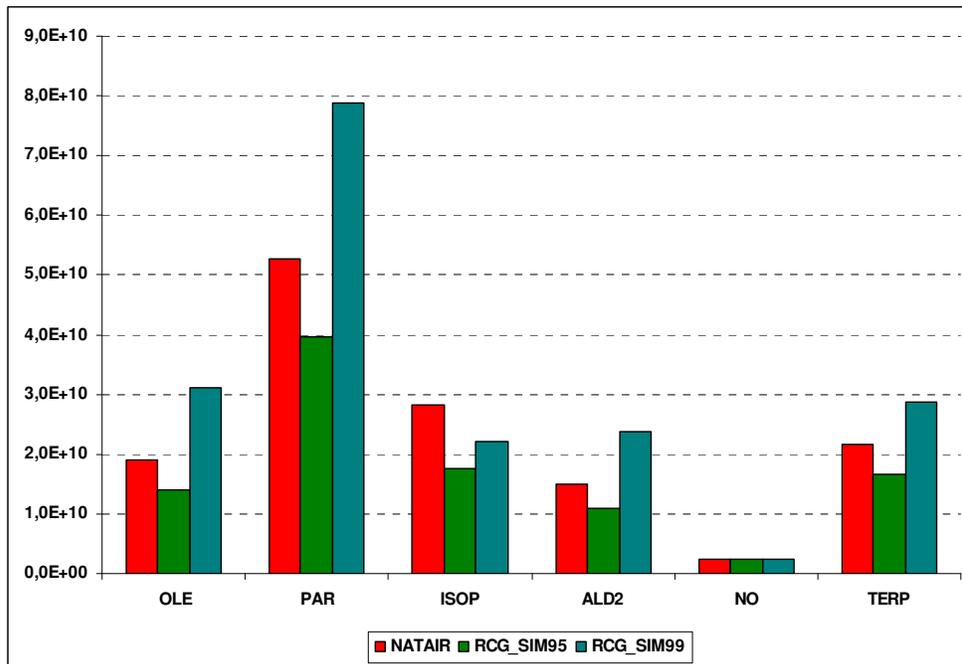
**Abbildung 7:** Vergleich der biogenen NO-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995)

## Biogenic emissions - OVOC



**Abbildung 8:** Vergleich der biogenen „OVOC“-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995)

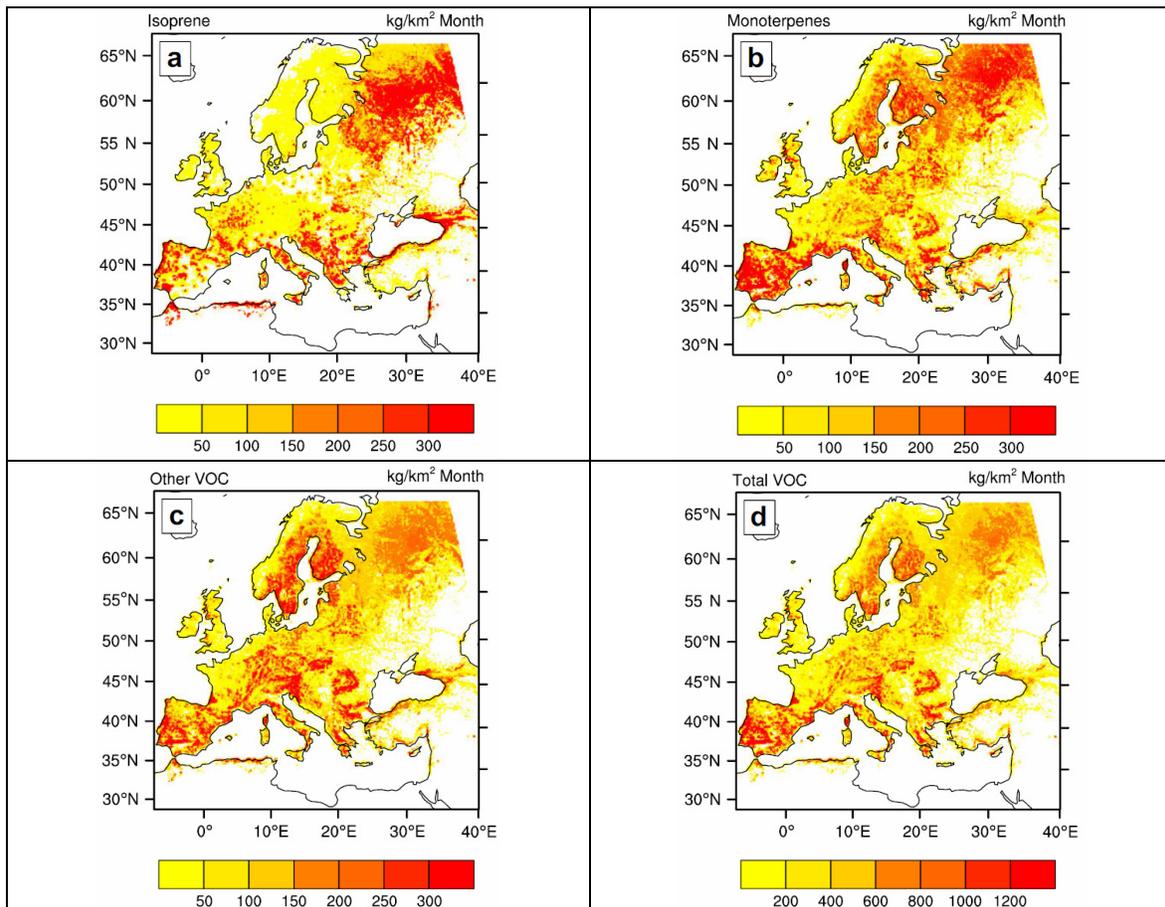
## 2.7 Unterschiede zwischen mit RCG online berechneten biogenen VOC und extern produzierten NATAIR-Daten



**Abbildung 9:** Vergleich der durch die verschiedenen Berechnungsarten erhaltenen biogenen VOC im RCG-Gebiet in kg/Jahr: OLE = Olefine Verbindungen, PAR = paraffine Verbindungen, ISOP = Isoprene, ALD2 = Aldehyde, NO = Stickstoffmonoxid aus Naturböden, TERP = Terpene (die Abkürzungen entsprechen dem CBIV-Mechanismus (Gery et al., 1995)). NATAIR: Emissionen aus dem NATAIR-Projekt, RCG\_SIM95: Emissionen aus der Smiatek-Datenbasis nach der Methode beschrieben in Simpson et al. (1995). RCG\_SIM99: Emissionen aus der Köble et al.-Datenbasis nach der Methode beschrieben in Simpson et al. (1999).

Abbildung 9 zeigt den Vergleich zwischen den in RCG implementierten Verfahren zur Berechnung der biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern (RCG\_SIM95: Landnutzungsdatenbasis Smiatek (1998), Methode beschrieben in Simpson et al. (1995); RCG\_SIM99: Landnutzungsdatenbasis Köble et al. (2002), Methode beschrieben in Simpson et al. (1999), NATAIR: Emissionen aus dem NATAIR-Projekt) und den Emissionsschätzungen aus dem NATAIR-Projekt, die in einer stündlichen zeitlichen Auflösung und einer räumlichen Auflösung von 10x10 km<sup>2</sup> für Isoprene, Monoterpene, Sesquiterpene und „OVOC“ (other VOCs) vorlagen. Diese Daten wurden, wie in Steinbrecher et al. (2009) beschrieben, aus einer Landnutzungsdatenbasis abgeleitet, die die Bauminformationen von Köble et al. (2002) mit regionalen Statistiken und mit erweiterten Datensätzen der CORINE-Datenbasis verknüpfte. Als meteorologischer Treiber wurde MM5 verwendet. Die weitere Zuordnung zu Olefinen (OLE), Paraffinen (PAR), Isoprenen (ISOP), Aldehyden (ALD2), und Terpenen (TERP) wurde für alle drei Berechnungsarten konform durchgeführt und ist in Stern (2009) erklärt. Es wird deutlich, dass die alte RCG-VOC-Schätzung die geringsten Werte liefert und die neue RCG-VOC-Bestimmung, die anhand der Köble-Walddaten und der in Simpson et al. (1999)

beschriebenen Methode erstellt wurde, zu höheren Werten führt. Die in NATAIR bestimmten Werte liegen alle über den alten RCG-Werten. Außer bei den Isopren-Werten aber liegen die NATAIR-Massen unter den Mengen aus der neuen RCG-Methode. Da Stickstoffoxide aus Naturböden weiterhin mit der alten RCG-Methode aufbauend auf Smiatek (1998) und auf Simpson et al. (1999) berechnet wurden, gibt es hier keine Änderungen. Paraffine werden mit RCG\_SIM99 am höchsten abgeschätzt, mit NATAIR etwas niedriger und mit RCG\_SIM95 am niedrigsten. Dies gilt in etwas schwächerer Ausprägung auch für Oleffine, für Aldehyde und für Terpene. Die Isoprene hingegen werden mit NATAIR höher berechnet als mit RCG, liegen aber auch hier wieder näher an der Version Köble et al. (2002) – Simpson et al. (1999) als an der Version Smiatek (1998) – Simpson et al. (1995). Dies kann damit erklärt werden, dass RCG\_Sim99 und NATAIR im Grunde die gleichen Ausgangsinformationen besitzen. Unterschiede finden sich in der benutzten Meteorologie – MM5 für NATAIR, TRAMPER für RCG\_Sim99, und in den Emissionsfaktoren (abgewandelte Faktoren von Simpson et al. (1999), beschrieben in Steinbrecher et al. (2009) für NATAIR, und originale Faktoren von Simpson et al. (1999) für RCG\_Sim99).



**Abbildung 10:** Biogene VOC-Emissionen aus Vegetation in Europa für das Jahr 2000 (aus Steinbrecher et al., 2009, Seite 1385).

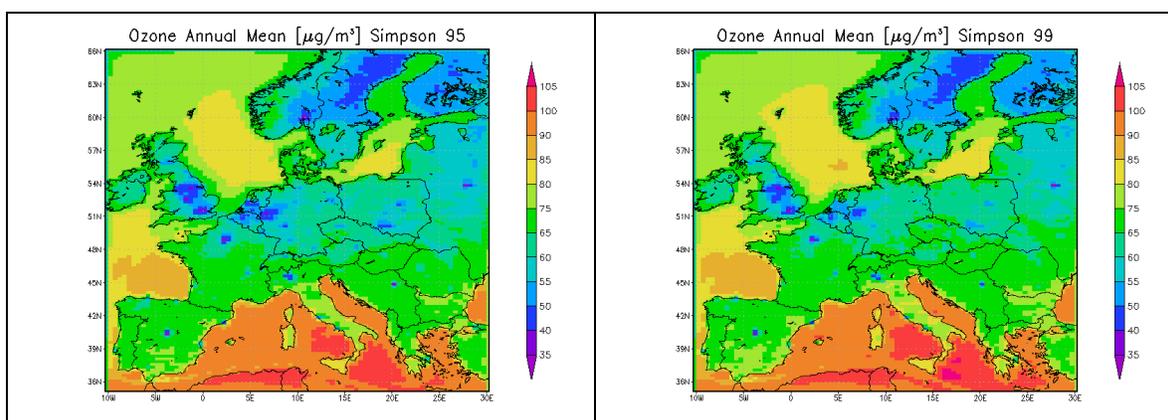
Abbildung 10 zeigt die räumliche Verteilung der NATAIR-VOC-Emissionen aus natürlicher Vegetation. Die höchsten Emissionen finden sich dabei in Portugal und in

Spanien (Abbildung 10, d), gefolgt von den Gebirgen in Mittel- und Osteuropa und dann von Skandinavien. Diese Verteilung ist der RCG-SIM99-Verteilung sehr ähnlich. RCG-SIM95 hatte hingegen die höchsten VOC-Emissionen in Skandinavien.

### 3. Ergebnisse: RCG mit biogenen VOC-Emissionen aus unterschiedlichen Datensätzen

Das Chemie-Transport-Modell REM\_Calgrid (RCG) ist verwendet worden, um die Konzentrationen der Luftschadstoffe zu berechnen. Dabei werden in diesem Modell standardmäßig die biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern online über die Landnutzungsdatenbasis von Smiatek (1998) mit der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode berechnet. Nachfolgend wird diese Modellkonfiguration als RCG-Standard oder RCG-SIM95 bezeichnet. Alternativ dazu wurden die biogenen VOC-Emissionen über die erweiterte Köble et al. (2002)-Datenbasis und mit der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode wiederum online berechnet.

#### 3.1 Ozon

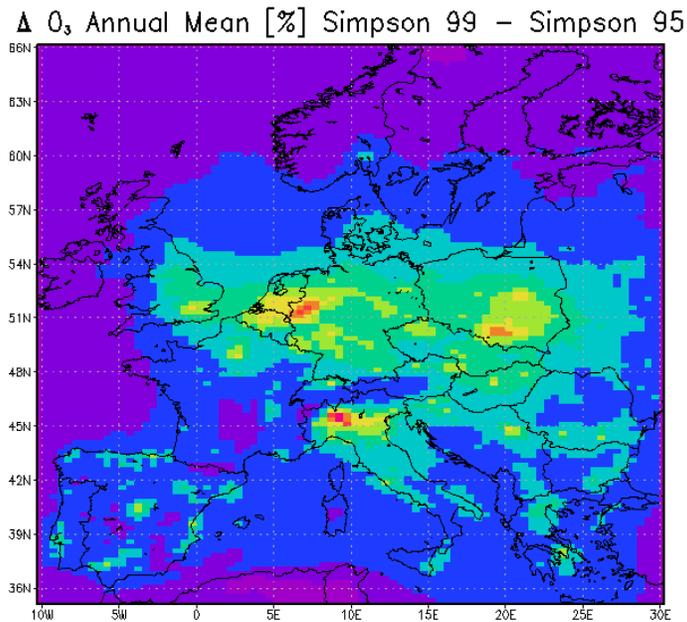


**Abbildung 11:** Jahresmittelwert der Ozonkonzentrationen, simuliert mit RCG für das meteorologische Jahr 2005. Biogene VOC-Emissionen aus Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1995 (links) und aus Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1999.

Abbildung 11 (links) zeigt das mit der RCG-Standardversion berechnete Jahresmittel für Ozon 2005. Höhere Werte werden im Süden, niedrigere Werte im Norden und aufgrund des Titrationseffektes in den Ballungsgebieten mit erhöhten NO<sub>x</sub>-Emissionen simuliert. Vergleicht man diese Berechnung mit der RCG-Simulation, in der die biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern aus der von Köble et al. (2002) erweiterten Landnutzungsdatenbasis und mit der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode geschätzt worden sind (Abbildung 11, rechts), so sieht man das gleiche räumliche Muster. Über den Meeren wird Ozon angehäuft, weil es nicht löslich ist, und demnach auf Wasser nicht deponiert wird. Auch die Absolutwerte von über 90 µg/m<sup>3</sup> über dem Mittelmeer, über 80 µg/m<sup>3</sup> über Sardinien, Sizilien und Korsika, Küstengebieten in Griechenland und an der italienischen Adriaküste und zwischen 65 und 80 µg/m<sup>3</sup> im Jahresmittel über weite Teile des ländlichen Spaniens, Frankreichs und der Balkanstaaten sind in beiden Modellversionen ähnlich. In beiden Modellkonfigurationen sind die deutlich niedrigeren Ozonjahresmittelwerte in Paris, London und Mittelengland, Niederlande bis ins

Ruhrgebiet, Mailand und in Südpolen erkennbar. Dort werden auch die höchsten NO<sub>x</sub>-Konzentrationen simuliert (hier nicht gezeigt). Des Weiteren werden in beiden Läufen die skandinavischen Länder mit Ozonjahresmittelwerten von unter 55 µg/m<sup>3</sup> simuliert. RCG-Standard wurde in verschiedenen Studien (z. B. Tilmes et al. 2002) hinsichtlich Ozon validiert und lieferte in seiner Standardversion sehr gute Ergebnisse.

Abbildung 12 zeigt die Differenz in den Ozonjahresmittelwerten, die aufgrund der unterschiedlichen Behandlung der biogenen VOC-Emissionen in der Berechnung entstanden sind. Grundsätzlich werden mit den VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis nach Simpson et al. (1999) gleich hohe oder höhere Ozonjahresmittel simuliert als mit der RCG-Standardversion. Vor allem in der Poebene und im Ruhrgebiet Deutschlands werden teilweise bis über 6% höhere Werte simuliert. Auffallend ist, dass in den NO<sub>x</sub>-starken Gebieten die Ozonproduktion aufgrund höherer VOC-Emissionen aus Wäldern zunimmt. Dies kann mit einem Verschieben der VOC-NO<sub>x</sub>-Sensitivität in Städten zusammenhängen. Mehr VOCs vor allem in NO<sub>x</sub>-trächtigen Gebieten führen zu einer höheren O<sub>3</sub>-Produktion, bzw. der Ozon-Abbau aufgrund der Reaktion  $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$  wird durch eine erhöhte Ozon-Produktion über die VOC-Kette abgeschwächt. Auch über ländlichen Gebieten wird im Jahresmittel mehr Ozon aufgebaut, wenn mehr VOC aus Wäldern in das System fließt. Dies geschieht am stärksten im Sommer; über das gesamte Jahr gemittelt ist der Einfluss eher gering und beträgt beispielsweise über Süddeutschland oder über Mittelitalien ca. 2 bis 3%.



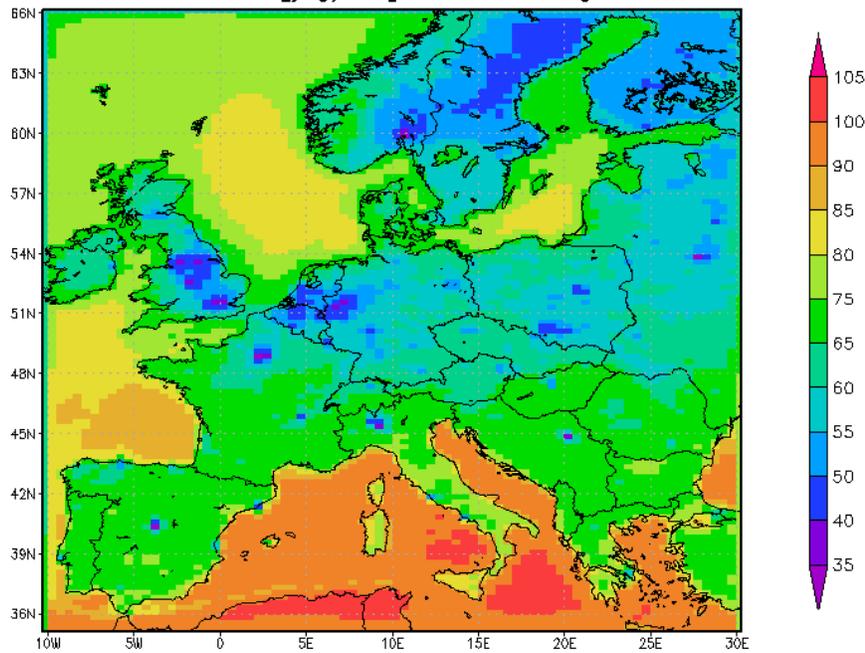
**Abbildung 12:** Differenz der simulierten Ozonjahresmittelwerte in % zwischen RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1995 und RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1999.

Der Einfluss biogener VOC-Emissionen auf die Ozonjahresmittelwerte wurde dadurch abgeschätzt, dass ein RCG – Lauf für 2005 ohne biogene VOC-Emissionen durchgeführt worden ist (Abbildung 13). Die räumliche Verteilung wird wie bei den anderen beiden

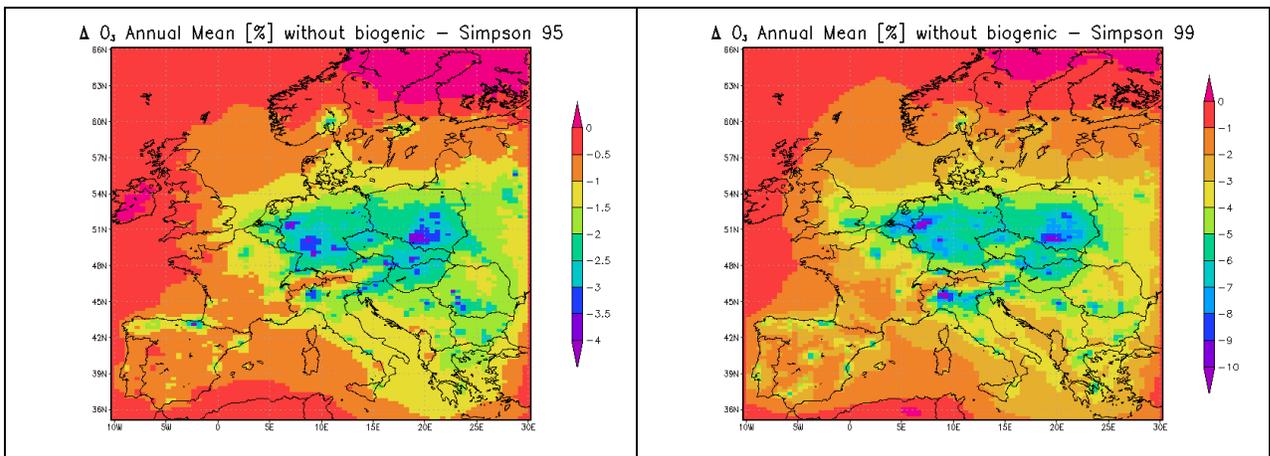
Läufen auch simuliert mit höheren Werten im Süden und über den Meeren und niedrigeren Werten in den Ballungsgebieten, bzw. in Industriegebieten, und im Norden Europas. Auch die Absolutwerte bis annähernd  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  im Jahresmittel über Nordafrika und über dem Mittelmeer werden auch ohne biogene VOC-Emissionen erreicht. Auch bleiben die räumlichen Maxima der Ozonwerte, die auch schon mit den biogenen VOC-Emissionen simuliert worden sind, weiterhin erhalten. Wird nun der Einfluss der unterschiedlichen VOC-Emissionsschätzungen auf die simulierten Ozonkonzentrationen berechnet (Abbildung 14), so schlagen diese weit stärker durch, wenn biogene VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis nach Simpson et al. (1999) berechnet werden (rechtes Bild) als wenn sie aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis und nach Simpson et al. (1995) abgeschätzt werden (linkes Bild). Der Einfluss ist ca. doppelt so hoch. Maximale Ozonzunahmen aufgrund der zusätzlichen VOC-Emissionen nach Simpson et al. (1995) sind in Südpolen, im Ruhrgebiet, im Rhein-Main-Necker-Gebiet und in der Poebene zu verzeichnen und reichen da bis zu +4% im Jahresmittel. Werden hingegen die biogenen VOC-Emissionen nach Simpson et al. (1999) berechnet, so ist die Ozonzunahme über den gleichen Gebieten ungefähr doppelt so hoch, reicht also bis ca. 10% im Jahresmittel. Anders ausgedrückt heißt das, dass der berechnete Ozonmittelwert vor allem über den Ballungsgebieten bis zu 10% von den biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern abhängt, im Mittel über ländlichen Gegenden in Deutschland, Polen und der Slowakei beispielsweise bis ca. 6% von biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern und über weiten Teilen Frankreichs und Spaniens bis ca. 3% von biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern abhängt. Die Wahl der Berechnungsart oder die Wahl der Landnutzungsdatenbasis hat dabei auch einen wesentlichen Einfluss. Die prozentualen Änderungen fallen dabei bei Verwendung der Köble-Landnutzungsdatenbasis doppelt so hoch aus wie bei Verwendung der Smiatek-Landnutzungsdatenbasis. Dies sind Jahresmittelbetrachtungen. Biogene VOC-Emissionen sind jedoch im Sommer sehr viel stärker als im Winter. Die Sensitivität von Ozon gegenüber der Wahl der Landnutzungsdatenbasis – und dem zur Folge dann der Methode, VOC-Emissionen abzuschätzen – ist im Sommer sehr viel höher als im Winter. Es kann davon ausgegangen werden, dass der Wintermittelwert bei beiden Arten der biogenen VOC-Emissionsberechnung konstant bleibt.

Für die Sensitivitätsstudie zur Abhängigkeit der Ozonwerte von biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern wurde auf die Unterscheidung von Jahreszeiten verzichtet. Diese wurden jedoch sehr wohl in den folgenden Untersuchungen berücksichtigt, wenn es darum geht, die unterschiedlichen Ozonkonzentrationen anhand der unterschiedlichen Landnutzungsdatenbasen bzw. unterschiedlicher VOC-Datensätze zu erklären.

Ozone Annual Mean [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] without biogenic emissions

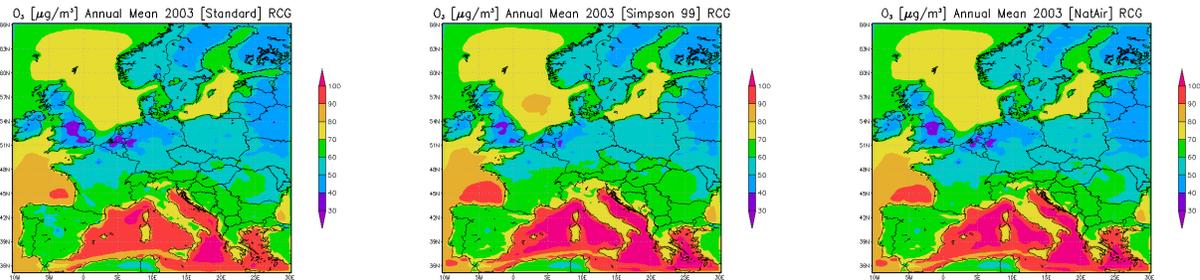


**Abbildung 13:** Jahresmittelwert der Ozonkonzentrationen, simuliert mit RCG für das meteorologische Jahr 2005 ohne biogene VOC-Emissionen.



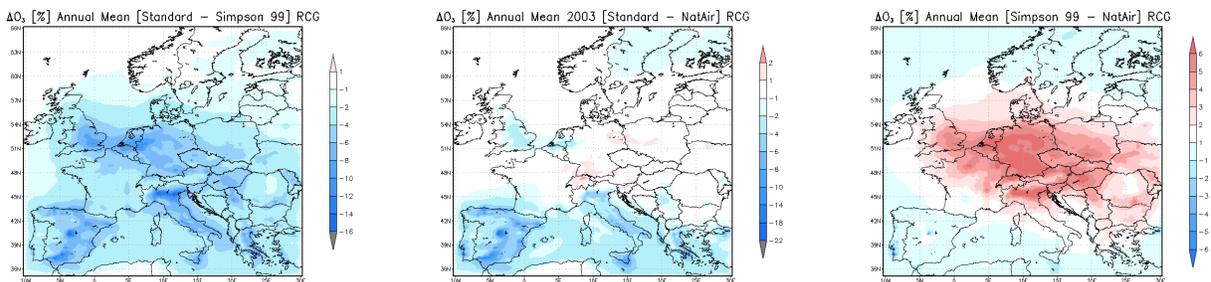
**Abbildung 14:** Differenz der simulierten Ozonjahresmittelwerte in % zwischen RCG-Referenzlauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1995 und RCG-Lauf ohne biogene Emissionen (links) und zwischen der simulierten Ozonjahresmittelwerte in % zwischen RCG-Referenzlauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1999 und RCG-Lauf ohne biogene Emissionen (rechts).

Abbildung 15 zeigt die mit den drei RCG-Konfigurationen berechneten O<sub>3</sub>-Jahresmittel 2003, während Abbildung 16 die jeweiligen prozentualen Änderungen für das gesamte Jahresmittel darstellen. Die drei RCG-Konfigurationen sind: RCG-Standard (VOC aus der Smiatek-Landnutzungsdatenbasis anhand von Simpson et al. (1995) mit 6 Baumklassen), RCG-Sim\_99 (VOC aus der Köble-Datenbasis mit 115 Baumspesies anhand von Simpson et al. (1999)) und RCG-NATAIR.



**Abbildung 15:** Ozon Jahresmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim\_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).

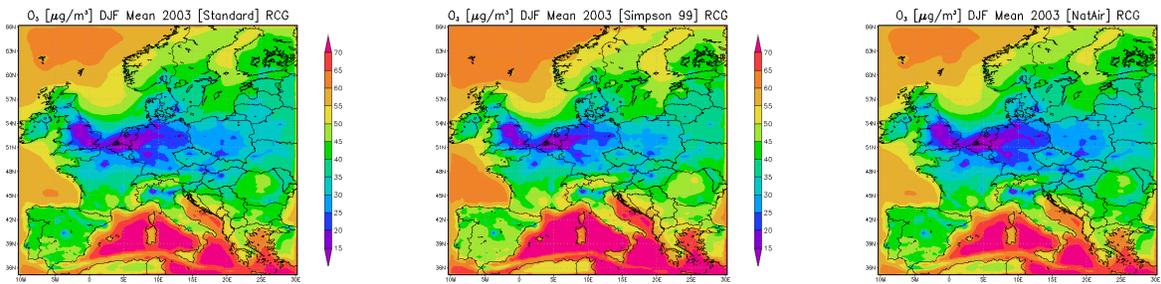
Im Jahresmittel werden aufgrund unterschiedlicher Behandlung der biogenen VOC-Emissionen bis zu 20% unterschiedliche Ozonkonzentrationen simuliert. Die größten Unterschiede werden dabei in Spanien zwischen der Standardversion und der RCG-Version mit biogenen VOC-Emissionen aus der Köble - Datenbasis nach Simpson et al. (1999) berechnet, die geringsten Unterschiede im Jahresmittel werden zwischen der Standardversion und der RCG-Version mit biogenen VOC-Emissionen aus dem NatAir-Projekt in Deutschland und in Polen berechnet. Die Unterschiede zwischen RCG-Simpson99 und RCG-NatAir sind in Gesamteuropa eher gering und bewegen sich zwischen +6% höheren O<sub>3</sub>-Konzentrationen in Deutschland und -6% niedrigeren O<sub>3</sub>-Werten in Portugal.



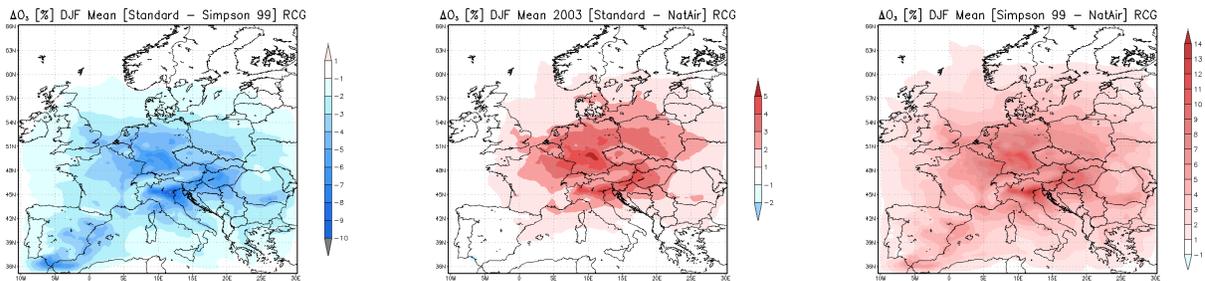
**Abbildung 16:** Prozentuale Änderung der Ozonjahresmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim\_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).

Betrachtet man sich nun die einzelnen Unterschiede in Abhängigkeit der Jahreszeiten (Abbildung 17 und Abbildung 18 für die Wintermonate Dezember, Januar und Februar (DJF), Abbildung 19 und Abbildung 20 für die Frühlingsmonate März, April und Mai (MAM), Abbildung 21 und Abbildung 22 für die Sommermonate Juni, Juli und August (JJA) und Abbildung 23 und Abbildung 24 für die Herbstmonate September, Oktober und November (SON)), so finden sich die größten Unterschiede im Sommer und die

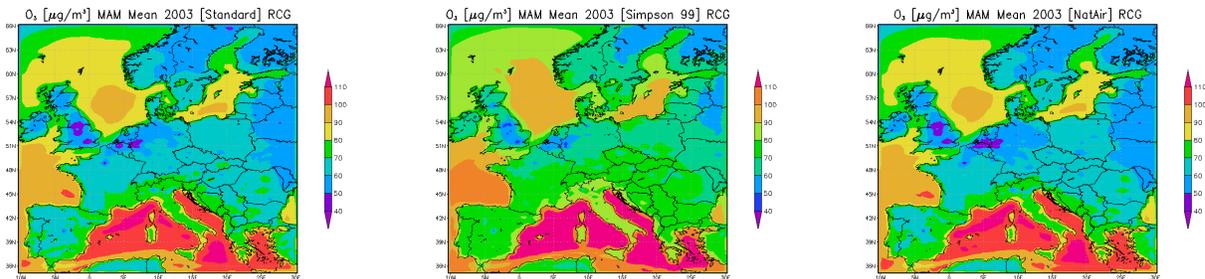
niedrigsten im Winter. Dies ist auch zu erwarten, da die biogenen VOC-Emissionen vor allem im Sommer von Wäldern emittiert werden, da sie in dieser Jahreszeit hauptsächlich von der Strahlung und von der Temperatur angetrieben werden, während im Winter oder in den Übergangsjahreszeiten vor allem die biomassenabhängigen Terpen-Emission zum Tragen kommen. Isopren wird im Winter so gut wie gar nicht emittiert. Des Weiteren hängen die strahlungsbedingten Emissionen auch von der geographischen Breite ab sowie von der Tageszeit. In der RCG-Standardversion wurden deutlich höhere Isopren- aber auch Monoterpen-Emissionen im Norden – Skandinavien – emittiert als mit der überarbeiteten RCG-Version, in die die Zusatzinformationen von Köble et al. (2002) und Simpson et al. (1999) eingeflossen sind und als im NATAIR-Projekt. Dies sieht man sehr deutlich in den Sommermittelwerten des simulierten Ozons. Vor allem in Spanien, in Italien, aber auch im Industriegürtel Mittelengland, Niederlande, Ruhrgebiet werden mit der Standardversion des RCG-Modells bis über 20% niedrigere Ozonsommermittel berechnet als mit den übrigen beiden Konfigurationen. Die relativ hohen Änderungen im Industriegürtel lassen sich zum Teil über die relativ geringen Absolutwerte an Ozon in dieser Region erklären, die vor allem über erhöhte NO<sub>x</sub> und deshalb über erhöhte Titrationsaktivität gekennzeichnet ist. Während die RCG-Konfiguration mit NatAir-Emissionen und die RCG-Konfiguration mit VOC-Emissionen aus Köble et al. (2002) und aus Simpson et al. (1999) relativ ähnliche O<sub>3</sub>-Sommermittel über weiten Teilen Europas liefern – die Unterschiede belaufen sich dabei auf maximal ±10% - so werden vor allem mit der RCG-NatAir-Konfiguration in Zentralspanien und über weiten Teilen Italiens über 30% höhere Ozonwerte simuliert als mit der Standardversion. Die Übergangsjahreszeiten werden unterschiedlich stark von der Art und Weise der Berechnung der biogenen Wald-VOC-Emissionen in der Simulation der Ozonwerte geprägt. Was auffällt sind die bis zu 15% höheren Ozonherbstwerte, wenn anstatt der NatAir-Datenbasis die Berechnung nach Köble+Simpson\_99 als Grundlage der biogenen VOC-Emissionen benutzt wird. Dies kann zum Teil durch unterschiedliche meteorologische Treiber und da durch unterschiedliche Bedeckungsgrade erklärt werden. Gerade in den Übergangsjahreszeiten spielt die Wolkenbedeckung in der Abschätzung der strahlungsbedingten VOC-Emissionen eine wesentliche Rolle. Im Herbst werden nämlich mit den beiden RCG-Versionen, die als meteorologischen Treiber TRAMPER benutzen, aber unterschiedliche Waldinformationen zur Berechnung der biogenen VOC-Emissionen benutzen über Deutschland nur ca. ±8% Ozonänderungen berechnet. Weitere Untersuchungen der meteorologischen Parameter wären dafür notwendig. Sowohl die Wintermonate als auch die Übergangsmonate sind auch dadurch gekennzeichnet, dass die Standard-RCG-Version niedrigere Ozonmittelwerte liefert als die RCG-Simpson99-Version, aber höhere als die RCG-NATAIR-Version. Im Sommer hingegen liefert die RCG-Standard-Version sowohl im Vergleich zu RCG-Simpson\_99 als auch zu RCG-NATAIR niedrigere Ozonmittelwerte. RCG-Simpson\_99 und RCG-NATAIR sind im Sommer am ähnlichsten, im Winter und in den Übergangsmonaten produziert RCG-Simpson\_99 gerade über Deutschland doch wesentlich höhere Ozonmittelwerte als RCG-NATAIR.



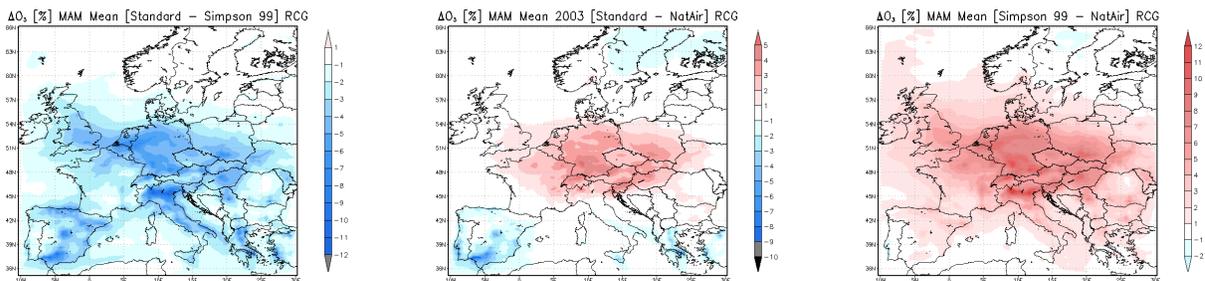
**Abbildung 17:** Ozon Wintermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim\_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



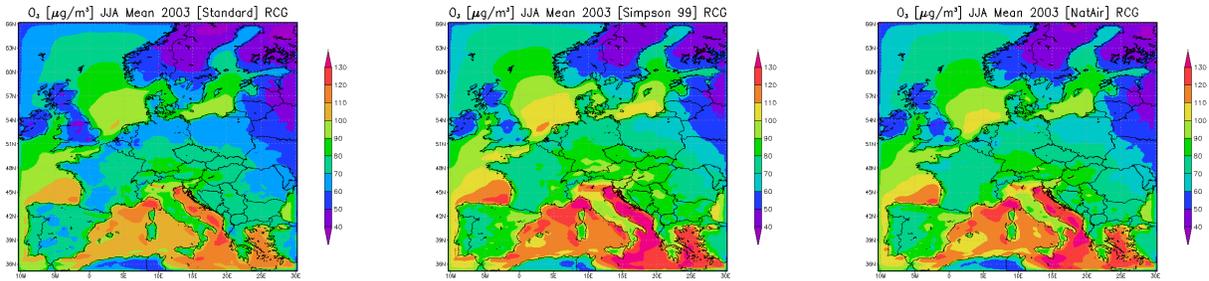
**Abbildung 18:** Prozentuale Änderung der Ozon-Wintermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim\_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



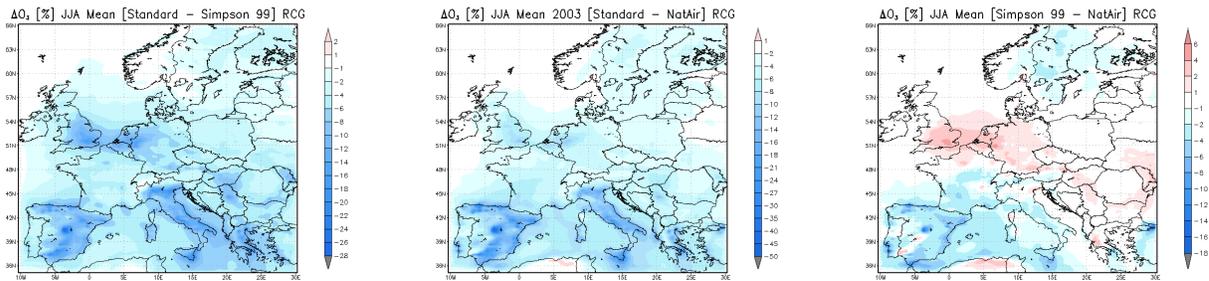
**Abbildung 19:** Ozon Frühlingmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim\_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



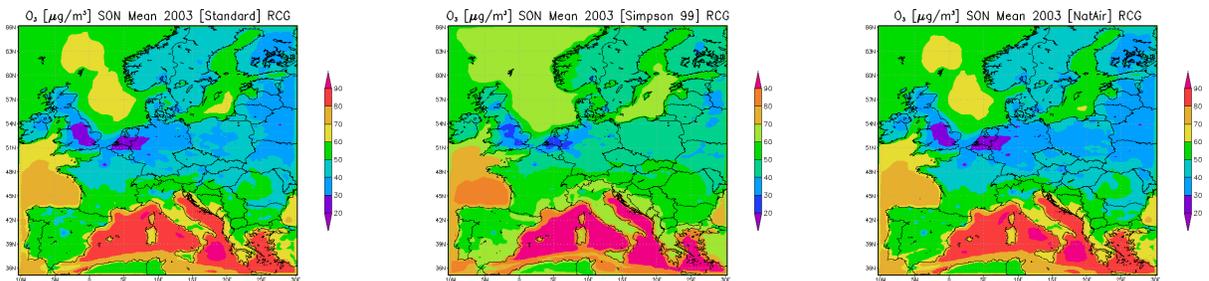
**Abbildung 20:** Prozentuale Änderung der Ozon-Frühlingmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim\_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



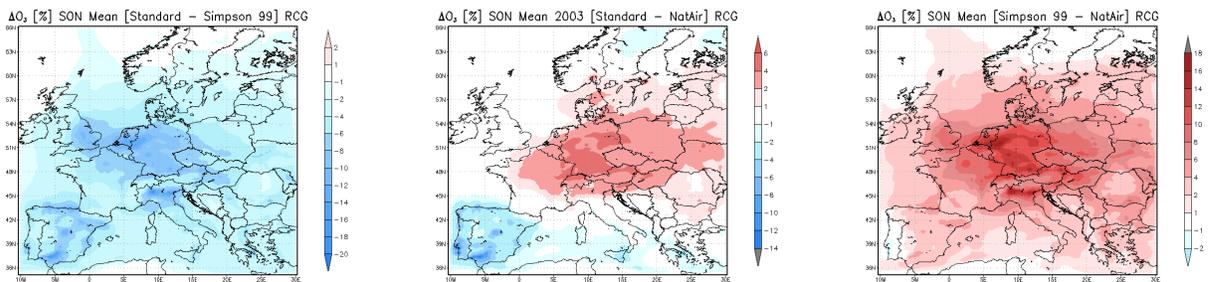
**Abbildung 21:** Ozon Sommermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim\_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



**Abbildung 22:** Prozentuale Änderung der Ozon-Sommermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim\_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



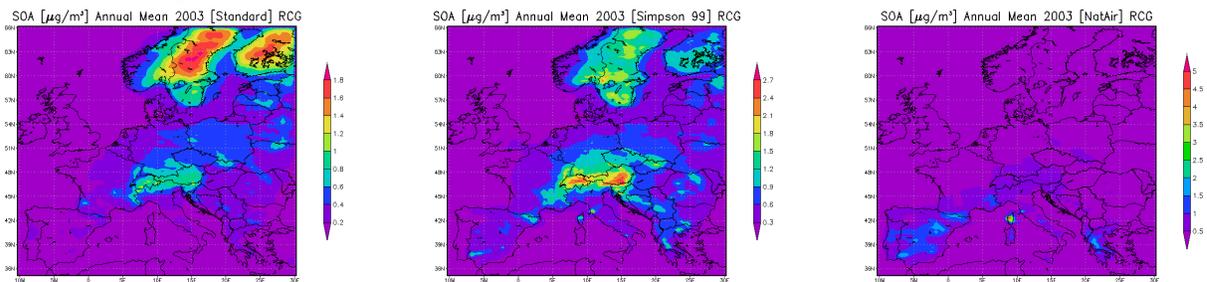
**Abbildung 23:** Ozon Herbstmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim\_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



**Abbildung 24:** Prozentuale Änderung der Ozon-Herbstmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard vs. RCG-Sim\_99), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Standard vs. RCG-NATAIR) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts – RCG-Sim\_99 vs. RCG-NATAIR).

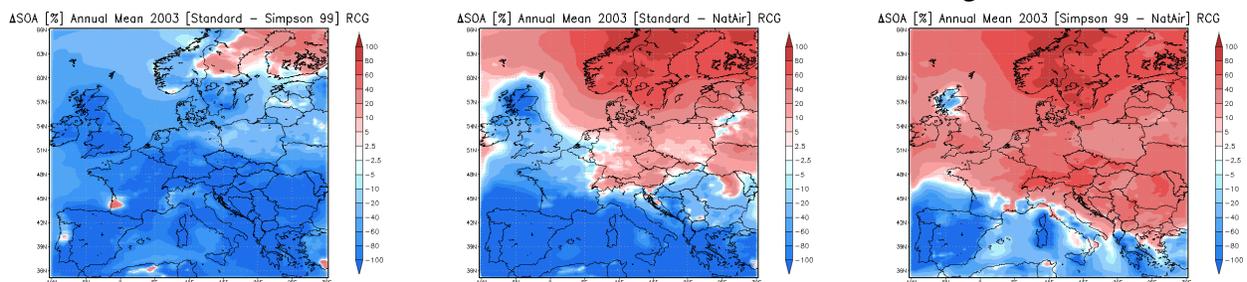
### 3.2 Sekundäre organische Aerosole (SOA)

Wie bereits erläutert, ist das Verständnis der Entstehung sekundärer organischer Aerosole (SOA) noch sehr lückenhaft. Biogene Vorläuferstoffe scheinen aber eine wesentliche Rolle in der Bildung von festen Teilchen zu bilden. Diese können aber auch sehr leicht wieder in den gasförmigen Zustand zurückfallen, wenn die Temperatur steigt oder die relative Feuchte zu niedrig wird. Die hier vorgestellte Studie soll deshalb vor allem auf die unterschiedlichen Ergebnisse aufgrund unterschiedlicher Eingangsdaten zur Bestimmung der biogenen VOC-Emissionen abzielen und keinen Versuch darstellen, die Güte der SOA-Simulation zu beurteilen. In einem weiteren Kapitel wird versucht werden, Anhaltspunkte für eine mögliche Evaluierung der zur Bildung von SOA benutzten Prozesse zu geben.



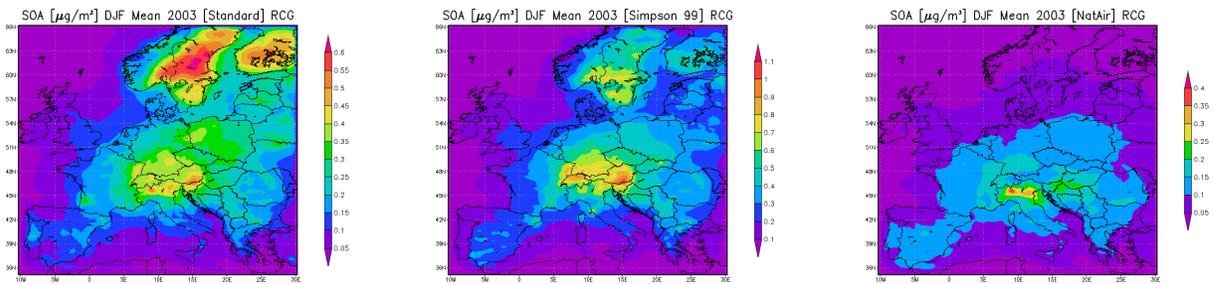
**Abbildung 25:** SOA Jahresmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).

Abbildung 25 zeigt die Jahresmittelwerte an simulierten SOA-Konzentrationen für das Jahr 2003. Deutlich sichtbar ist der wesentliche Unterschied der räumlichen Verteilung: wurden bei der RCG-Standardversion (links) die höchsten SOA-Werte in Skandinavien simuliert, so werden sie in der RCG-Simpson\_99-Version (Mitte) in den Alpen und bei der RCG-NATAIR-Konfiguration (rechts) auf Korsika, in Spanien und Griechenland berechnet. Schaut man sich dazu die prozentualen Änderungen aufgrund unterschiedlicher RCG-Konfigurationen an (Abbildung 26), so ist diese Verschiebung von Nord nach Süd noch viel deutlicher. Vor allem beim Vergleich der RCG-Standardkonfiguration mit der RCG-NATAIR-Konfiguration (Mitte) sieht man sehr deutlich, dass im Norden, aber auch über fast Gesamtdeutschland höhere SOA-Konzentrationen mit RCG-Standard produziert werden, und dass im Süden und auch über den britischen Inseln höhere SOA-Konzentrationen mit RCG-NATAIR generiert werden.

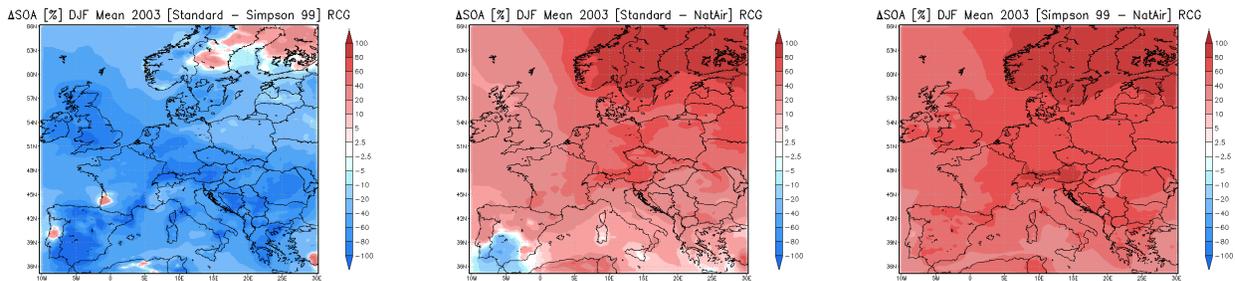


**Abbildung 26:** Prozentuale Änderung der SOA-Jahresmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).

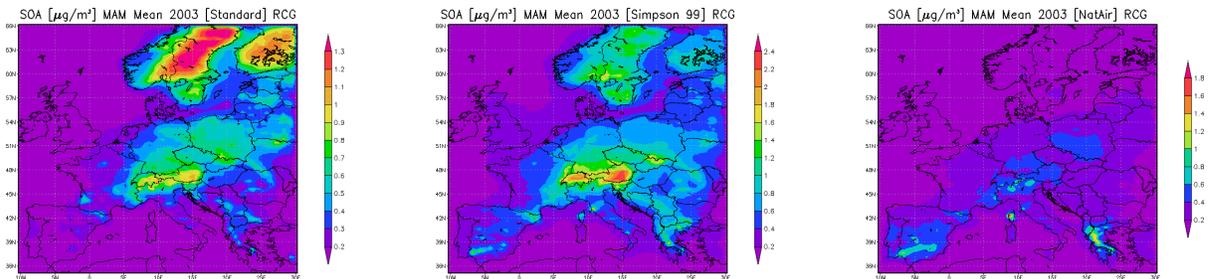
Auffallend ist auch der Absolutbetrag an SOA-Konzentrationen über Korsika bei der RCG-NATAIR-Konfiguration. Dort werden Werte von maximal  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  simuliert. Auch die Absolutmaxima über Spanien mit ca.  $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  sind doppelt so hoch wie bei der RCG-Simpson-99-Version. RCG-Standard produziert in Spanien fast kein biogenes SOA. Umgekehrt liefert RCG-NATAIR für Skandinavien vernachlässigbare SOA-Konzentrationen, RCG-Simpson\_99 und RCG-Standard hingegen beide annähernd  $1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Auch der Absolutwert der RCG-Simpson\_99-Version über den Alpen erstaunt: dort werden mit dieser Konfiguration bis zu  $2.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  SOA-Konzentrationen simuliert. Eine Validierung ist aufgrund der sehr unsicheren Messdaten nicht möglich. Die Jahreszeitenabhängigkeit der biogenen VOC-Emissionen ist sehr stark. Deshalb wurden auch die SOA-Konzentrationen hinsichtlich Saisonalität untersucht. Abbildung 27 stellt die Winter-Absolutwerte der SOA-Konzentrationen für die drei RCG-Konfigurationen dar, Abbildung 28 hingegen die prozentualen Änderungen, die sich aufgrund der unterschiedlichen biogenen VOC-Emissionen in der SOA-Simulation ergeben. Bei allen drei RCG-Konfigurationen werden im Winter sehr geringe SOA-Mittelwerte simuliert. Die räumliche Verteilung ist der des Jahresmittels ähnlich. So werden wiederum mit RCG-Standard die höchsten Winter-SOA-Werte in Skandinavien simuliert. Mit den anderen beiden Konfigurationen hat jedoch die Standardversion im Winter gemein, dass auch über den Alpen erhöhte Werte produziert werden. RCG-NATAIR simuliert im Winter die absolut geringsten Werte. Räumliche Maxima von aber nur knapp über  $0.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  werden in der Poebene und über den Karawanken berechnet. Prozentual sind aufgrund der sehr geringen Absolutwerte keine Aussagen zu treffen. Das Frühjahr (absolut: Abbildung 29 und relativ zueinander: Abbildung 30) und der Sommer (absolut: Abbildung 31 und relativ zueinander: Abbildung 32) hingegen werden von allen drei Konfigurationen mit deutlich höheren SOA-Konzentrationen simuliert. Wie bereits für das Jahresmittel erläutert, werden mit RCG-Standard im Sommer vor allem in Skandinavien SOA-Konzentrationen von über  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$  berechnet. Die RCG-Simpson\_99-Version liefert ähnliche Werte über Norwegen und Schweden (ca.  $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), deutlich niedrigere Werte für Finnland. Über den Alpen hingegen werden mit dieser Modellkonfiguration Werte von über  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  berechnet. Die Mittelmeerländer (Spanien, Italien, Griechenland und die Ostadriaanreinerstaaten) werden mit Werten von teilweise über  $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$  versehen. RCG-NATAIR zeigt ein erstaunliches Bild über Korsika. Dort werden im Sommer 2003 SOA-Konzentrationen von über  $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$  im Sommermittel berechnet. Der Sommer 2003 war sehr warm. Ob diese Konzentrationen realistisch sind oder nicht, ist nicht beweisbar, sie stehen jedoch den anderen beiden Modellläufen entgegen. In Spanien werden mit RCG-NATAIR Werte von über  $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  simuliert, der Norden Europas hingegen hat auch im Sommer kaum SOA-Werte aufzuweisen. Der Herbst (Abbildung 33 und Abbildung 34) wird annähernd wie der Frühling simuliert.



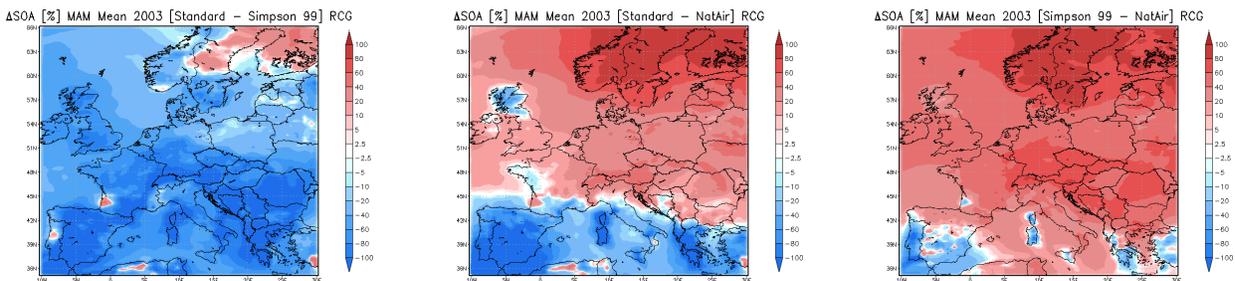
**Abbildung 27:** SOA Wintermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



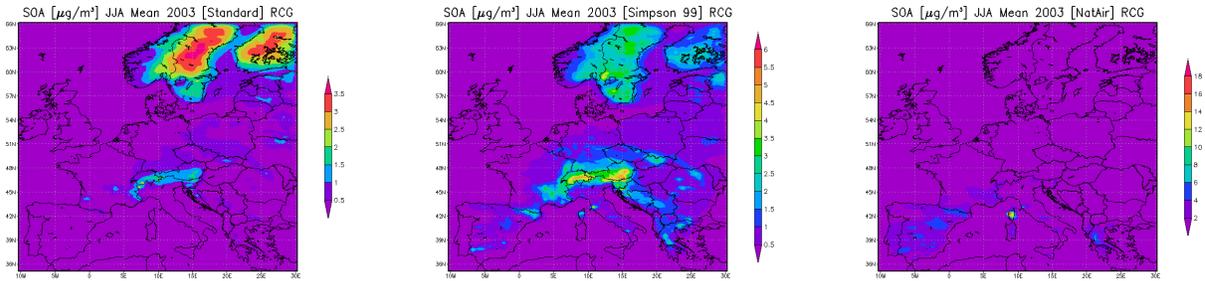
**Abbildung 28:** Prozentuale Änderung der SOA-Wintermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



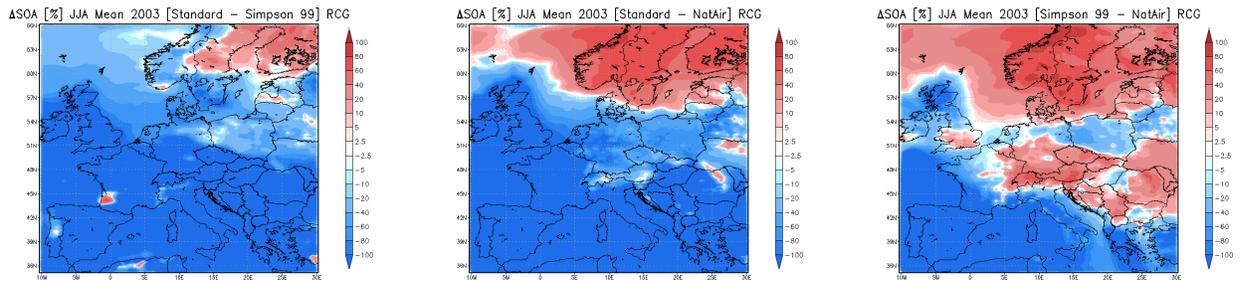
**Abbildung 29:** SOA Frühlingmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



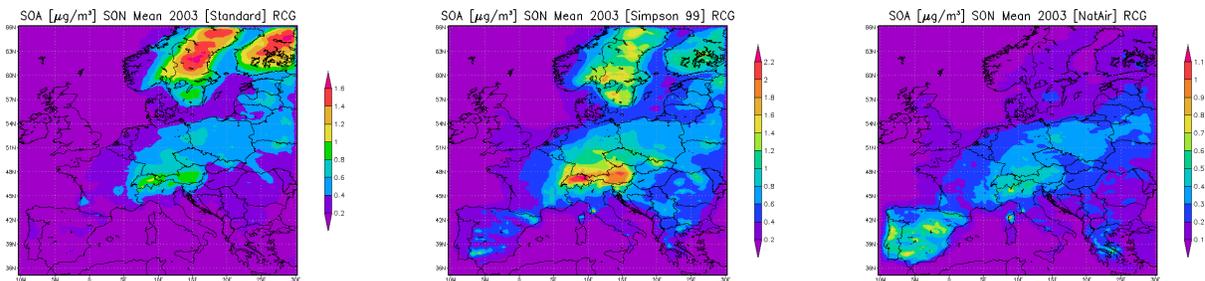
**Abbildung 30:** Prozentuale Änderung der SOA-Frühlingmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



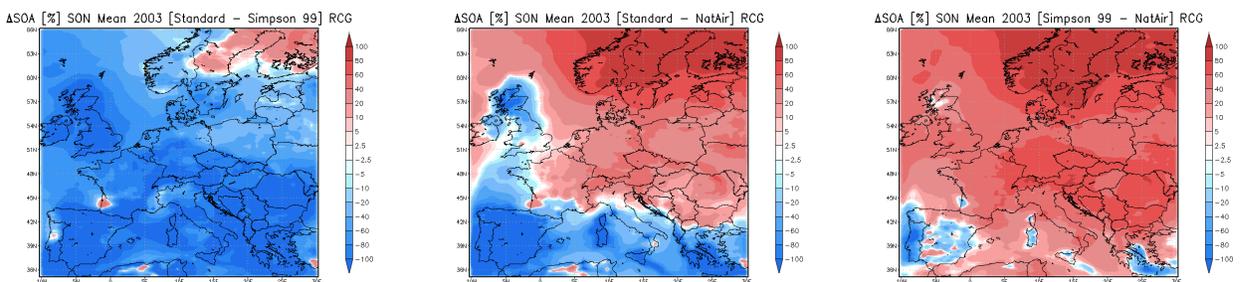
**Abbildung 31:** SOA Sommermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



**Abbildung 32:** Prozentuale Änderung der SOA-Sommermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



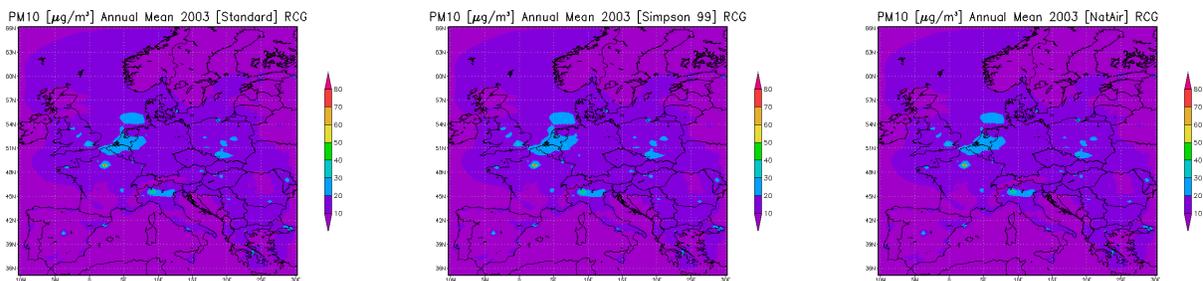
**Abbildung 33:** SOA Herbstmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



**Abbildung 34:** Prozentuale Änderung der SOA-Herbstmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).

### 3.3 PM10

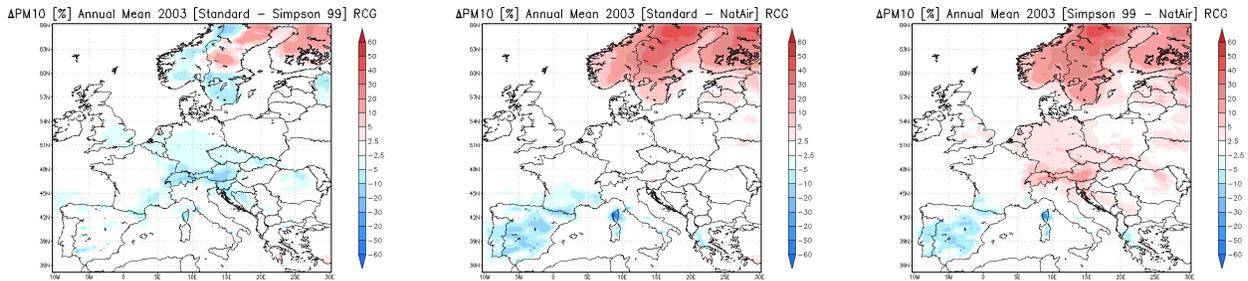
Sekundäre Aerosole teilen sich in anorganische und organische Stoffe. Während anorganische Partikel vor allem aus Nitraten, Sulphaten und Ammonium-Teilchen bestehen, die ihre Vorläuferstoffe zu einem Großteil in anthropogenen Emissionen von NO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub> und NH<sub>3</sub> finden, so sind organische sekundäre Aerosole sowohl anthropogenen als auch biogenen Ursprungs. Vor allem anthropogene VOC-Emissionen sind in den letzten Jahren stark zurückgegangen. Auch waren schon immer biogene VOC-Emissionen aufgrund der großen Flächen an Naturböden und an Wäldern eine wichtige Quelle für natürliche Aerosole. Im Zusammenspiel mit anthropogenen Schadstoffen beeinflussen jedoch die biogenen Emissionen stark das chemische Verhältnis, das zu erhöhten Ozon- und auch Aerosolkonzentrationen führen kann. Sekundäraerosole können dabei häufig weit über 50% des Gesamtaerosols ausmachen. Wiederum muss jedoch auch angemerkt werden, dass es aufgrund des unvollständigen Verständnisses der biogenen Aerosolaufbauprozesse sehr schwierig ist, den Anteil der biogenen SOA-Konzentrationen an den Gesamt-SOA-Konzentrationen abzuschätzen. Das im RCG verwendete Modul zur SOA-Simulation ist auf Gleichgewichtsannahmen zwischen gasförmiger und fester Phase der Vorläuferstoffe als Funktion der Temperatur und der Feuchte aufgebaut. Die biogenen Vorläuferstoffe werden mithilfe der meteorologischen TRAMPER-Felder und der Landnutzungsdatenbasis von Smiatek (1998) anhand der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode in der Standardversion online simuliert. Die RCG-Simpson\_99-Konfiguration hingegen benutzt die gleichen TRAMPER-Meteorologiefelder, aber die um 115 Baumarten erweiterte Köble et al. (2002)-Landnutzungsdatenbasis unter Verwendung der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode. RCG-NATAIR hingegen benutzt die extern erzeugte NATAIR-Datenbasis für VOC-Emissionen, die mit meteorologischen Feldern aus dem MM5-Modell generiert worden ist.



**Abbildung 35:** PM10 Jahresmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogene Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).

Abbildung 35 zeigt die PM10-Jahresmittelwerte 2003, die mit den drei unterschiedlichen RCG-Versionen simuliert worden sind. Unterschiede lassen sich nur sehr schwer erkennen. Maximalwerte werden über den anthropogen-dominierten Ballungsgebieten Paris, Poebene, Mittelengland – Niederlande – Ruhrgebiet und Südpolen berechnet. Auch die Nordsee, aufgrund der dort produzierten Seesalzaerosole, zeigt erhöhte PM10-Werte. Ansonsten werden weite Teile Europas mit unter 20 µg/m<sup>3</sup> berechnet. Geht man jedoch davon aus, dass der natürliche PM10-Gehalt der Luft bei ca. 5 µg/m<sup>3</sup> liegt (Andreae,

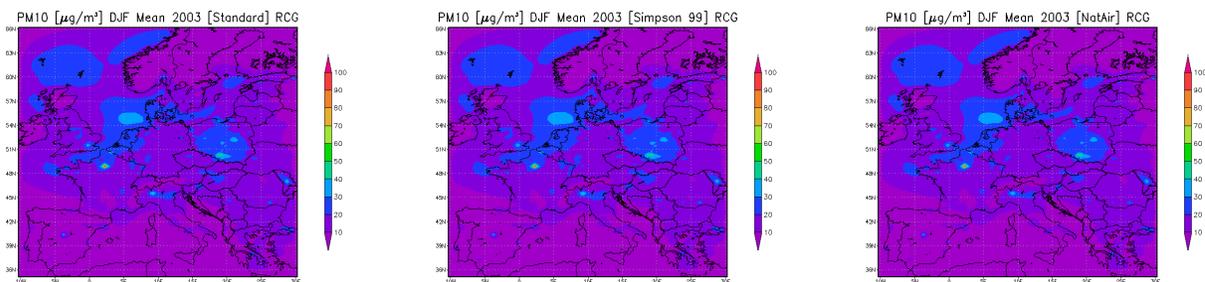
2007), sind weite Teile des Simulationsgebietes oberhalb dieser natürlichen Konzentration. Dennoch kann festgestellt werden, dass vor allem der Norden des Simulationsgebietes mit sehr geringen PM10-Konzentrationen simuliert wird.



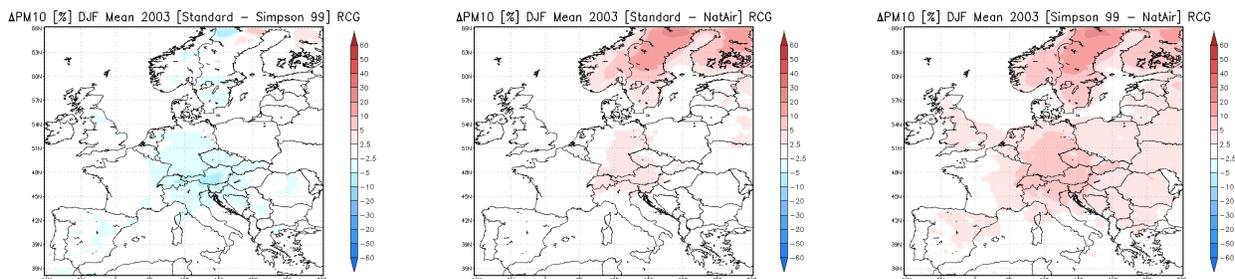
**Abbildung 36:** Prozentuale Änderung der PM10-Jahresmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard vs. RCG-Sim\_99), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte - RCG-Standard vs. RCG-NATAIR ) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).

Abbildung 36 zeigt die prozentualen Änderungen der PM10-Jahresmittel 2003 aufgrund unterschiedlicher Behandlung der biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern. Die Unterschiede in Mitteleuropa sind vernachlässigbar und liegen bei ca.  $\pm 5\%$  außer über den Alpen, wo Unterschiede auch bis 10% reichen können. Diese erhöhte Sensitivität über dieser Region hat jedoch auch mit der geringeren absoluten PM10-Belastung zu tun, was die prozentualen Änderungen natürlich stark beeinflusst. Die größten prozentualen Unterschiede – wiederum zum Teil auch aufgrund der niedrigen Absolutwerte – finden sich in Skandinavien. Im Jahresmittel werden für Spanien mit der RCG-Standardversion niedrigere PM10-Konzentrationen berechnet als mit der RCG-Simpson\_99- und mit der RCG-NATAIR-Version; vor allem in Schweden und Finnland ist dies umgekehrt. Korsika stellt wiederum einen Einzelfall dar mit sehr großen Änderungen aufgrund der unterschiedlichen Behandlung der biogenen VOC-Emissionen.

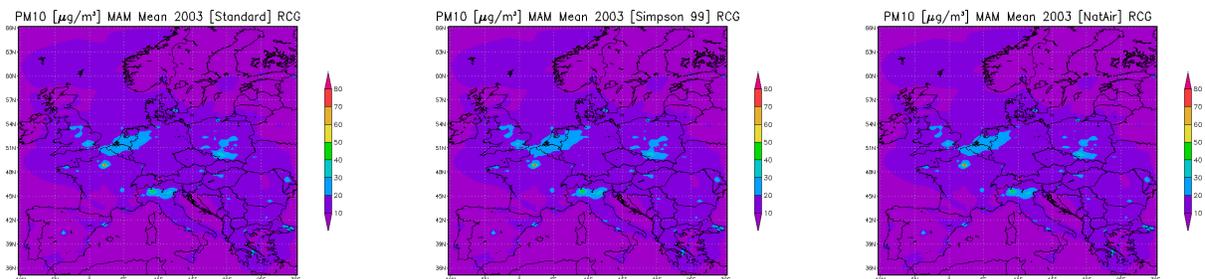
Abbildung 37 und Abbildung 38 stellen die PM10-Wintermittel aufgrund unterschiedlicher VOC-Emissionen und deren Änderungen dar, Abbildung 39 und Abbildung 40 zeigen die Frühjahrswerte, Abbildung 41 und Abbildung 42 die Sommerwerte und Abbildung 43 und Abbildung 44 die Herbstwerte. Wie bereits bei den Ozonsimulationen und bei den SOA-Simulationen, so ergeben sich auch für die Gesamt-PM10-Simulationen die größten Unterschiede im Sommer und die geringsten Unterschiede im Winter, wenn die biogenen VOC-Emissionen aufbauend auf einem unterschiedlichen Grad an Informationen hergeleitet werden. Im Sommer ist vor allem mit NatAir-Daten der Süden deutlich PM10-haltiger als mit Simatek-Daten, wohingegen Skandinavien und hier vor allem Schweden und Finnland deutlich niedrigere PM10-Konzentrationen aufweisen, wenn NATAIR als Grundlage für die SOA-Simulation und demzufolge der Gesamt-PM10-Konzentrationsberechnung genommen wird. Vor allem im Sommer kommt es jedoch auch über den Alpen zu Unterschieden zwischen RCG-Simpson\_99 und RCG-NATAIR: RCG-Simpson\_99 simuliert über den Alpen höhere PM10-Konzentrationen als RCG-NATAIR.



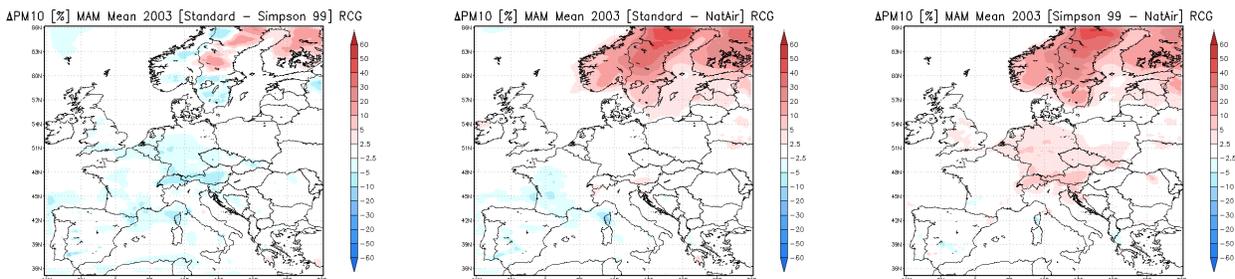
**Abbildung 37:** PM10 Wintermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



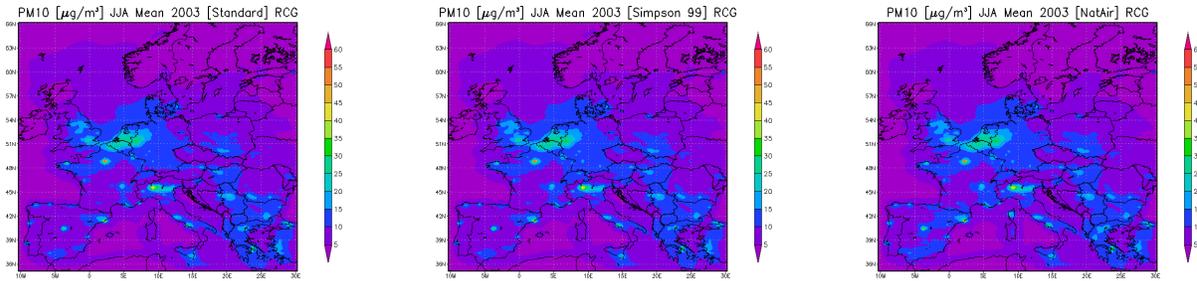
**Abbildung 38:** Prozentuale Änderung der PM10-Wintermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



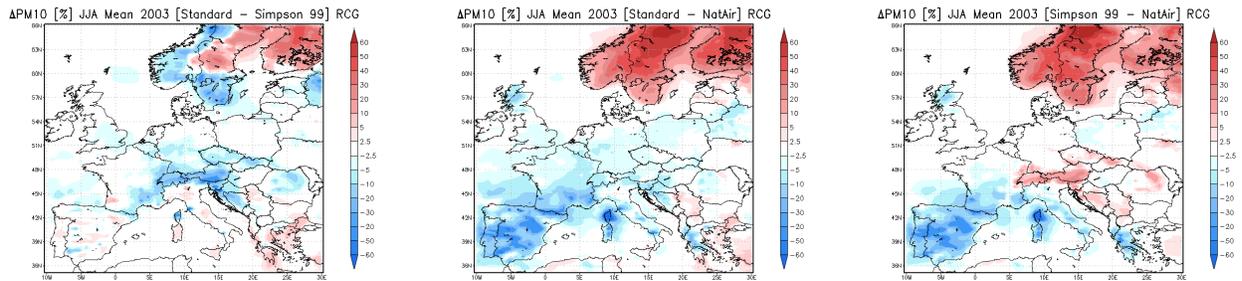
**Abbildung 39** PM10 Frühlingmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



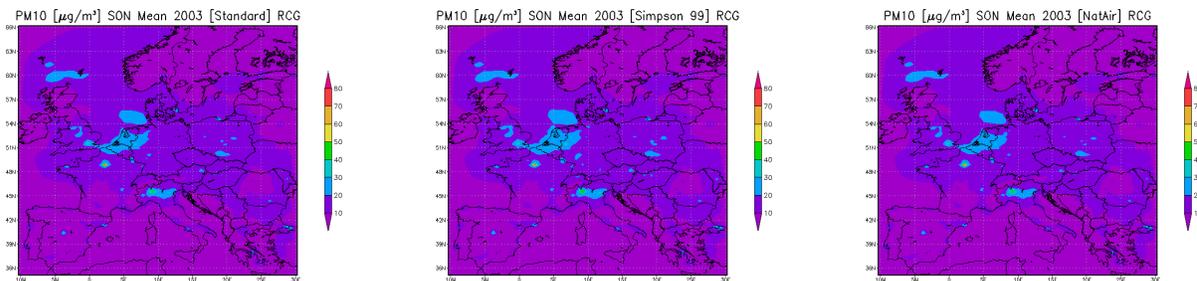
**Abbildung 40:** Prozentuale Änderung der PM10-Frühlingmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



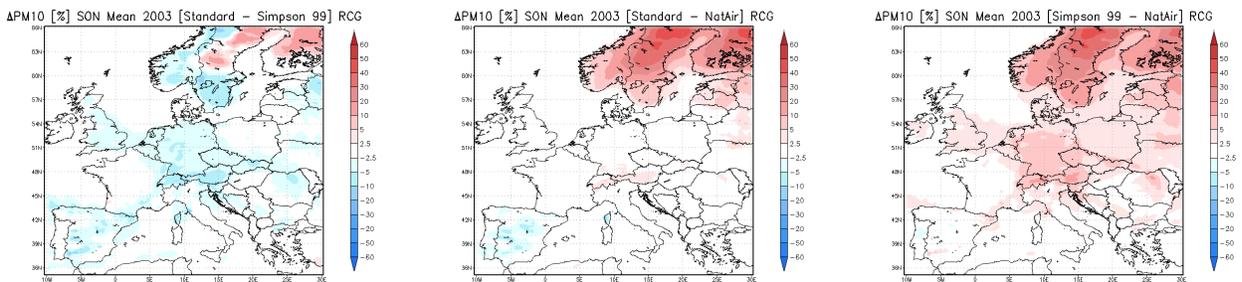
**Abbildung 41:** PM10 Sommermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



**Abbildung 42:** Prozentuale Änderung der PM10-Sommermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).



**Abbildung 43:** PM10 Herbstmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).



**Abbildung 44:** Prozentuale Änderung der PM10-Herbstmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).

### 3.4 Biogene VOC-Emissionen: Diskussion

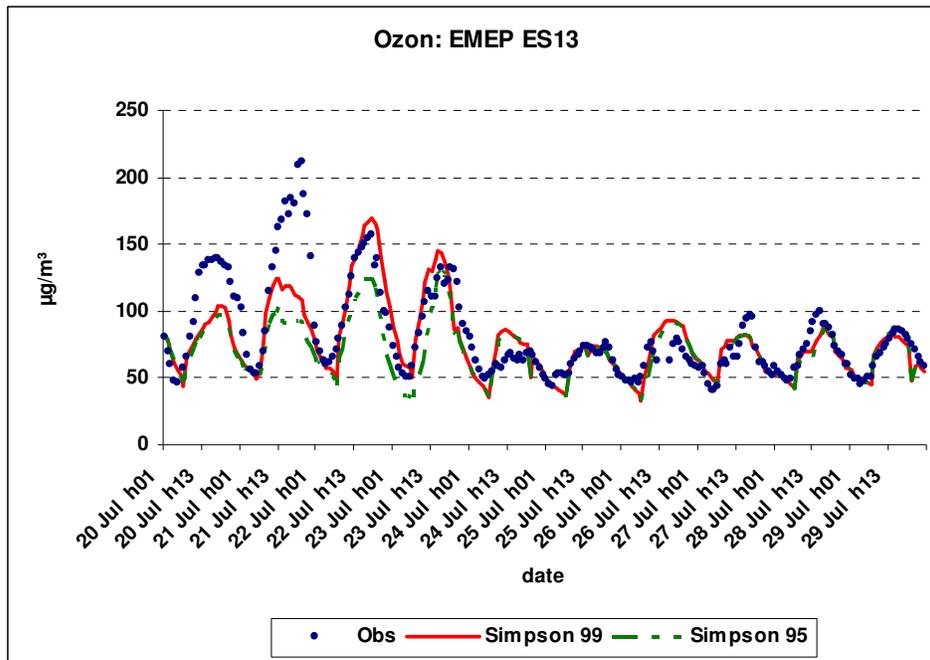
Wie bereits mehrmals erwähnt, ist es sehr schwierig, die Güte der VOC-Emissionen anhand von Messungen zu validieren. Unsicherheitsanalysen sind unter anderem von Steinbrecher et al. (2009) vorgenommen worden, und haben gezeigt, dass die Gesamtmengen an biogenen VOC-Emissionen aus unterschiedlichen Landnutzungsdatensätzen und mit unterschiedlichen Emissionsfaktoren innerhalb einer Marge von ca.  $\pm 13\%$  liegen, dass jedoch räumliche Unterschiede oder auch länderweite Unterschiede sehr viel höher sein können (bis zu  $\pm 100\%$ ). Deshalb wurde in dieser Studie auch nicht der Versuch unternommen, die Güte der Emissionsdaten zu beurteilen. Dennoch soll ein Vergleich mit gemessenen Ozonwerten in Spanien mit unterschiedlichen RCG-Konfigurationen einen Hinweis liefern, welche RCG-Version die besten Ozonkonzentrationen simuliert. Auch wurden die Anteile der biogenen sekundären organischen Aerosole den Gesamt-SOAs gegenübergestellt, um räumliche Unterschiede in der Zusammensetzung des Sekundäranteils der organischen Aerosole darstellen zu können.

Des Weiteren wurde mit dem Chemie-Transport-Modell RCG eine Budgetanalyse hinsichtlich der chemischen Produktion und des chemischen Abbaus von Ozon und von sekundären organischen Aerosolen über einem Gebiet in Südspanien durchgeführt, um den stündlichen Beitrag der chemischen Prozesse zur Gesamtkonzentration des Schadstoffes besser verfolgen zu können.

Es wurde dabei ein begrenzter Zeitraum vom 20. bis zum 30. Juli 2005 genauer betrachtet. Südspanien wurde deshalb gewählt, weil dort die Unterschiede zwischen den berechneten biogenen VOC-Emissionen aus unterschiedlichen Datenbasen am größten waren, und weil dort die Photochemie aufgrund der hohen Temperaturen und der großen Einstrahlung am deutlichsten zur Gesamtkonzentration von Ozon und SOA beiträgt.

Abbildung 45 zeigt den zeitlichen Verlauf der an der EMEP-Station ES13 in Südspanien gemessenen Ozonstundenwerte vom 20. Juli 2005, 1 Uhr bis zum 30. Juli 2005, 1 Uhr (blaue Punkte). Hier ist als rote durchgehende Linie die RCG-Simulation dargestellt, die unter Verwendung der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis unter Verwendung der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode zur Berechnung biogener VOC-Emissionen entstanden ist. Die grüne gestrichelte Linie zeigt die mit RCG-Standard berechnete Ozonkonzentration. Was sich deutlich zeigt, ist dass RCG die ersten beiden Simulationstage deutlich unterschätzt, den dritten Tag besser simuliert und ab dem 4. Tag den gemessenen Rückgang der sehr hohen Ozonwerte richtig wiedergibt. Schon am zweiten Simulationstag wurden Ozonwerte von über  $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$  gemessen, die von beiden RCG-Konfigurationen nicht annähernd reproduziert werden konnten. Während jedoch der erste Tag – aufgrund der Einschwingungsphase des Modells – noch von beiden Modellversionen gleich simuliert wurde, zeigt sich bereits am zweiten Simulationstag, dass RCG-Simpson\_99 höhere Ozonmaxima simuliert als die RCG-Standardversion. Obwohl auch RCG-Simpson\_99 nicht an das beobachtete Maximum herankommt, ist das Verhalten dieser Modellkonfiguration besser als das der Standardversion. Am dritten Tag ist die RCG-Simpson\_99-Variante sehr wohl in der Lage, das beobachtete Maximum von über  $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$  zu simulieren, RCG-Standard unterschätzt dieses Maximum wiederum, diesmal um ca. 20%. Den darauf folgenden beobachteten Rückgang der Ozonwerte, der wahrscheinlich mit einer Veränderung der meteorologischen Verhältnisse einherging,

wurde von beiden Modellkonfigurationen richtig wieder gegeben. Da sich zwischen den beiden RCG-Versionen nur die Berechnung der biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern geändert hatte, nicht aber die meteorologischen Eingangsfelder oder die Emissionen, kann davon ausgegangen werden, dass die Verbesserung der Ozonsimulation aufgrund der erhöhten VOC-Vorläuferstoffe aus Wäldern zustande gekommen ist.

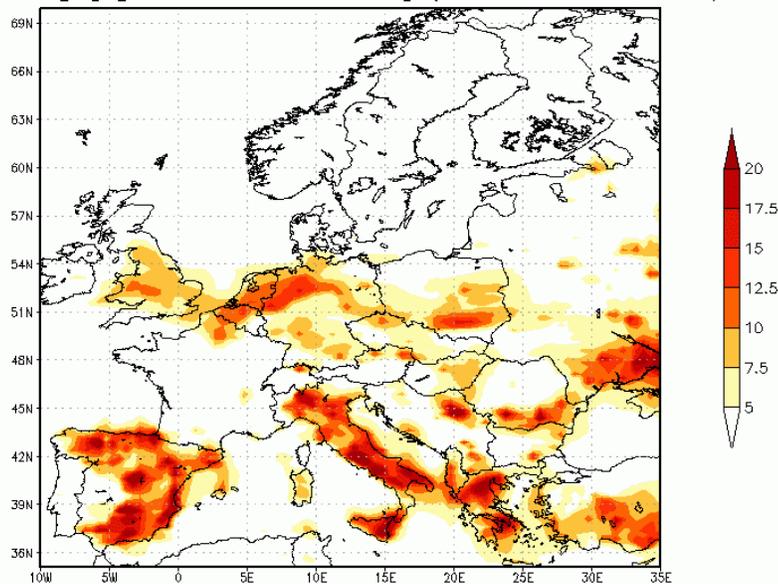


**Abbildung 45:** Ozon-Verlauf vom 20. Juli 2005 0 Uhr bis 30. Juli 2005 0 Uhr, gemessen und modelliert für den EMEP-Standort ES13 in Südspanien. Blaue Punkte: Beobachtungen; rote durchgehende Linie: RCG-Simulation mit VOC-Emissionen aus Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis und der Methode beschrieben in Simpson et al. (1999); grüne durchbrochene Linie: RCG-Simulation mit VOC-Emissionen aus Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis und der Methode beschrieben in Simpson et al. (1995).

Betrachten wir die prozentualen räumlichen Änderungen der Ozonkonzentrationen auf Europaebene (Abbildung 46), die aufgrund der unterschiedlichen Behandlung der biogenen VOC-Emissionen aus Wäldern zustande gekommen sind, so sieht man, dass über weiten Teilen Spaniens, Italiens und Griechenlands bis annähernd 20% höhere  $O_3$ -Werte mit RCG-Simpson\_99 simuliert wurden als mit der RCG-Standardversion. Diese 20% höhere Ozonkonzentrationen haben dann auch am zweiten Simulationstag zu der besseren Ozonprognose geführt. Weite Teile Europas, so zum Beispiel Frankreich und Skandinavien, waren unberührt von Ozonänderungen aufgrund veränderter VOC-Emissionen.  $NO_x$ -belastete Gebiete wie beispielsweise der Industriegürtel, der sich von Mittelengland über die Niederlande bis ins Ruhrgebiet zieht, oder auch Südpolen, wiesen hingegen auch erhöhte Ozonkonzentrationen von ca. 10% auf, wenn biogene VOC-Emissionen mit Hilfe der Köble et al. (2002) – Datenbasis unter Anwendung der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode online berechnet wurden. Der wesentliche Faktor ist natürlich die Meteorologie, die die strahlungsabhängigen und temperaturabhängigen Kohlenwasserstoffemissionen leitet. Als Fazit kann gefolgert werden, dass unter meteorologischen Schönwetterperioden im Sommer vor allem im Süden Europas, aber auch über  $NO_x$ -belasteten Gebieten im Allgemeinen, die höheren

VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Datenbasis unter Verwendung der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode zu besseren Ozonsimulationen führen, und dass dies auf eine höhere chemische Reaktivität der Atmosphäre zurückzuführen ist.

▲ O<sub>3</sub> [%] [ Simpson 99 - Simpson 95 ] (20. – 30. Jul. 2005)

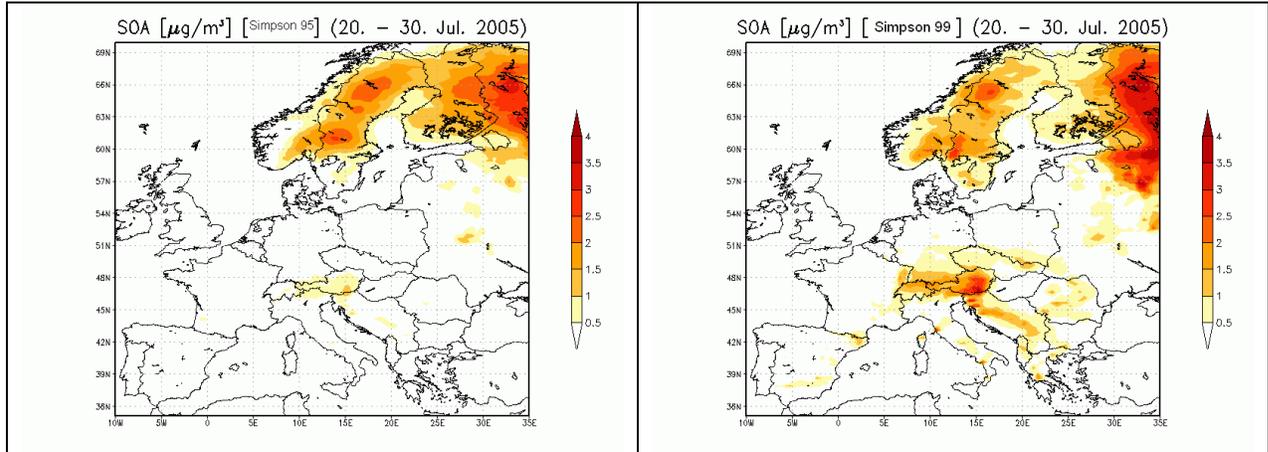


**Abbildung 46:** Simulierte Ozonänderung [%] aufgrund unterschiedlicher biogener VOC-Emissionsschätzungen: RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt mit der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode minus RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt mit der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode.

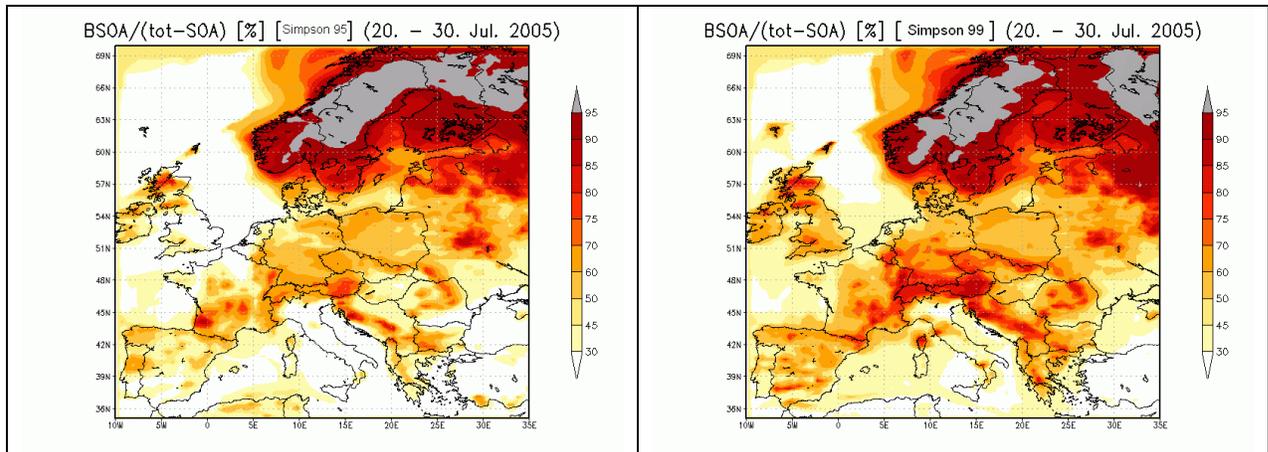
Aus der vorhergehenden Diskussion soll nun die Hypothese aufgestellt werden, dass eine reaktivere Atmosphäre die Wirklichkeit getreuer abbildet als eine weniger reaktive. Im Umkehrschluss kommt mehr VOC in der Luft bei heißen Tagen und bei wolkenlosem Himmel der Wahrheit näher als weniger VOC aus biogenen Emissionen.

Wenden wir diesen Satz auch auf die Bildung sekundärer Aerosole an, so ergibt sich folgendes Bild (Abbildung 47): die höheren simulierten SOA-Konzentrationen über den Alpen, dem Balkan und Teilen Spaniens und Italiens kommen der Ist-Situation näher. Dies wurde unter anderem auch von Andreani-Aksoyoglu et al. (2008) bestätigt, die für ihre Untersuchungen Beobachtungsdaten aus Schweizer Messungen analysiert hatten. Wie bereits mehrfach angeführt, sind jedoch Messungen immer noch sehr ungenau, weil man viele Auf- und Abbauprozesse der flüchtigen Kohlenwasserstoffe in festem Zustand noch nicht richtig erfasst hat. Dieser hier gezeigte Weg umgeht dieses Problem, muss jedoch darauf zurückgreifen, dass die Ozonproduktion mit der SOA-Produktion vergleichbar ist. Abbildung 48 zeigt das unter den zwei beschriebenen Arten, VOC-Emissionen aus unterschiedlichen Datensätzen im Chemie-Transport-Modell online zu berechnen, entstandene Verhältnis zwischen biogenen sekundären organischen Aerosolen und dem Gesamt-SOA-Gehalt der Luft. Im linken Teil der Abbildung wurden die VOC-Emissionen aus Wäldern anhand der Smiatek-Datenbasis und der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode berechnet, im rechten Teil wurden die VOCs hingegen

aufbauend auf der Köble et al.-Datenbasis mit der in Simpson et al (1999) beschriebenen Methode bestimmt.

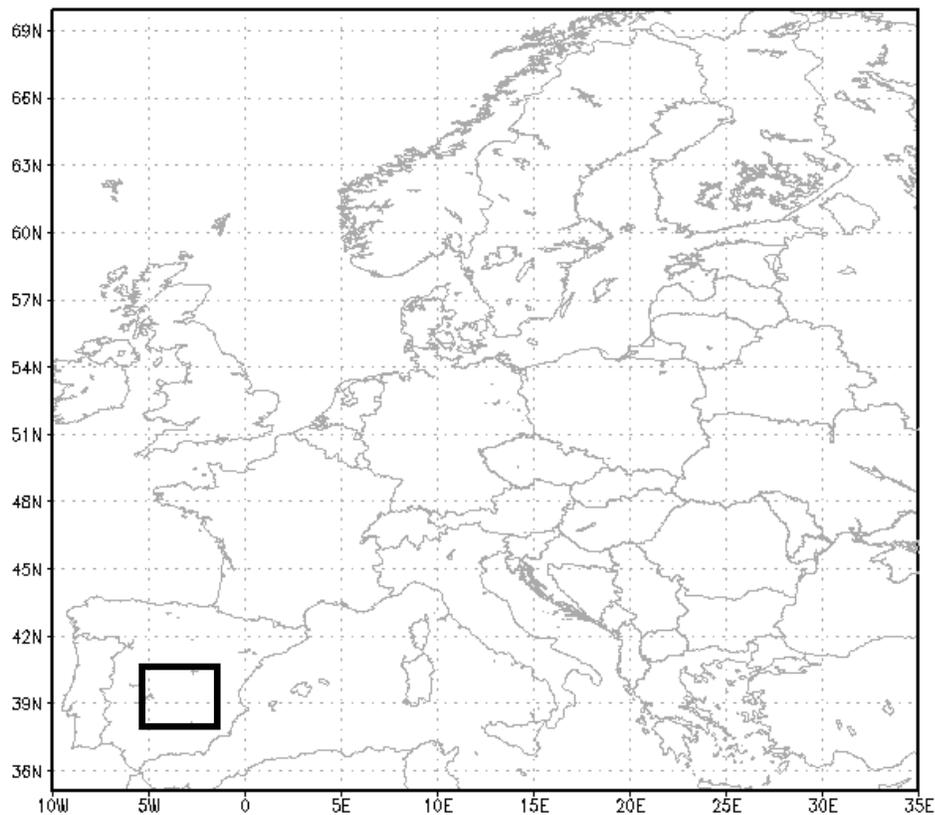


**Abbildung 47:** Simulierte mittlere SOA-Konzentration vom 20. 7. 2005, 0 Uhr bis 30.7.2005, 0 Uhr. Biogenen VOC: links:-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methodik und rechts: Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methodik



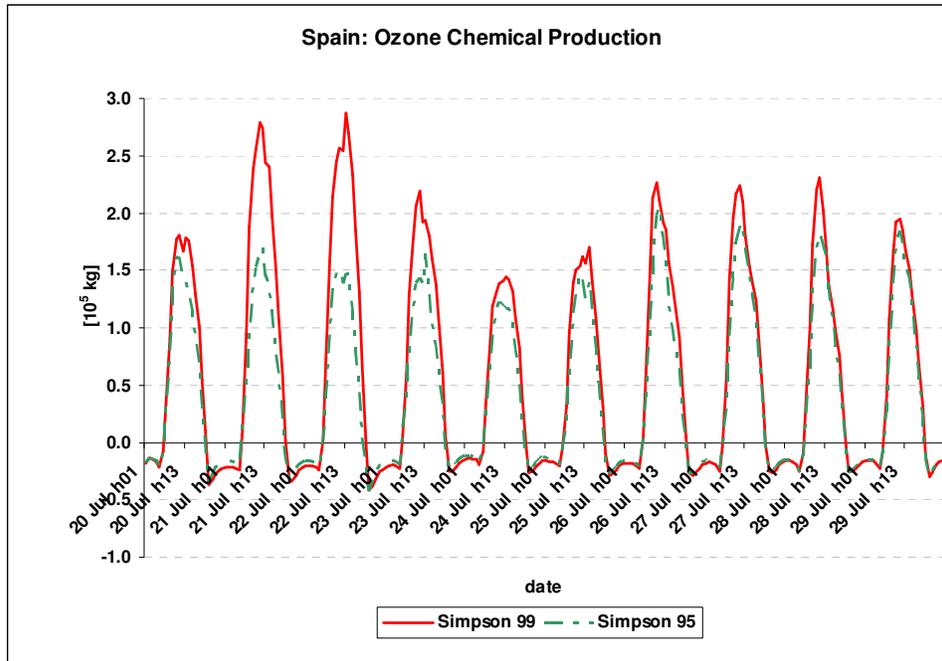
**Abbildung 48:** Anteil der berechneten biogenen sekundären Aerosolpartikel an den gesamten sekundären organischen Aerosolen in [%]. Biogene VOC-Emissionen wurden aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis anhand der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode berechnet (links). Rechts: Biogene VOC-Emissionen wurden aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis anhand der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode berechnet.

Deutlich wird vor allem die Verschiebung zu einem höheren biogenen SOA-Anteil über den Alpen und über dem Mittelmeerraum, wenn VOC-Emissionen aus Köble et al. (2002) abgeleitet werden. Das Verhältnis im Norden Europas ändert sich kaum, im Süden und vor allem über Gebirgen hingegen werden deutlich mehr Aerosole biogenen Ursprung berechnet als in der Standardversion.

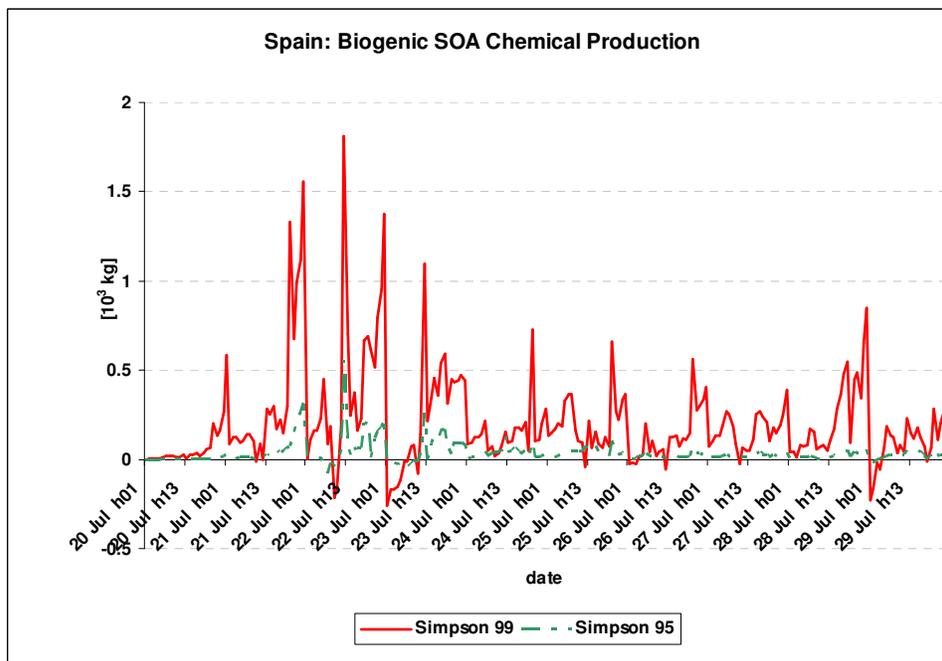


**Abbildung 49:** Europakarte. Das Viereck in Spanien zeigt das Gebiet, für welches die Produktions- und Verlustterme der Ozonkonzentrationen stündlich berechnet worden sind.

Für das in Abbildung 49 eingetragene Gebiet im Süden Spaniens wurde eine Budget-Analyse durchgeführt. Die Methodik ist in Kerschbaumer, 2007, beschrieben worden. Dabei werden mit dem Chemie-Transport-Modell pro Stunde die Beiträge der simulierten Prozesse zur Bildung von Schadstoffen aufgelistet und gegenübergestellt. Die hier dargestellte Studie berücksichtigt lediglich die chemischen Auf- und Abbauprozesse, die in der oben dargestellten Box zur Gesamtkonzentration an Ozon und an SOA beitragen. Die unterschiedliche Behandlung der VOC-Emissionen aus natürlichen Ökosystemen bildet dabei den einzigen Unterschied in der Simulation. Die Zeitperiode ist wiederum vom 20. Juli 2005 bis zum 30. Juli 2005 gewählt worden. Die EMEP-Station ES13 liegt in diesem Gebiet. Abbildung 50 zeigt die stündlichen Massenänderungen des in der Box enthaltenen Ozons. Positive Werte bedeuten einen Netto-Aufbau, negative Werte einen Netto-Abbau an Ozon in der betreffenden Stunde. Rot dargestellt ist der zeitliche Verlauf der Bilanzrechnung, der sich ergibt, wenn RCG mit VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002)-Datenbasis mit der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode betrieben wird, grün gestrichelt hingegen stellt die gleiche Bilanzrechnung dar, die sich ergibt, wenn RCG mit VOC-Emissionen betrieben wird, die aufgrund der älteren Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis unter Verwendung der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode berechnet worden sind.



**Abbildung 50:** simulierte stündliche Ozon- Produktion (positive) und Abbau (negative) [ $10^6$  kg / Box]. Rote durchgehende Linie: biogene VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, berechnet nach der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode. Simulationszeitraum: 20.7.2005, 0 Uhr bis 30.7.2005, 0 Uhr.



**Abbildung 51:** simulierte stündliche Biogenen Sekundäre Aerosol- Produktion (positive) und Abbau (negative) [ $10^3$  kg / Box]. Rote durchgehende Linie: biogene VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, berechnet nach der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode. Simulationszeitraum: 20.7.2005, 0 Uhr bis 30.7.2005, 0 Uhr.

Deutlich wird ersichtlich, dass die Abbauprozesse vor allem nachts, die Aufbauprozesse tagsüber erfolgen. Die beiden RCG-Konfigurationen liefern bis auf den 2. und 3. Tag sehr ähnliche Ergebnisse. Während jedoch RCG-Simpson\_99 - nur aufgrund erhöhter VOC-Emissionen – an diesen beiden Tagen deutliche höhere O<sub>3</sub>-Aufbauwerte simuliert, liegen diese bei der RCG-Standardversion über dem gesamten Zeitraum relativ gleich. Die Abbauprozesse werden von beiden RCG-Versionen mit der gleichen Stärke simuliert. Vergegenwärtigen wir uns wiederum den zeitlich gemessenen und modellierten Ozonverlauf an der EMEP-Station ES13 (Abbildung 45), so kann nun davon ausgegangen werden, dass RCG-Simpson\_99 den Verlauf besser simuliert, weil die chemische Produktionsrate höhere Werte liefert. Die Standardversion hatte zwar auch am dritten und auch noch am vierten Tag die erhöhten O<sub>3</sub>-Werte zumindest im Anstieg richtig erkannt; es kann jetzt aber entschieden werden, dass dieser Anstieg im Modell nicht aufgrund erhöhter chemischer Ozon-Produktion zustande gekommen ist, die wiederum vom Massenverhältnis der NO<sub>x</sub>- und VOC-Gase abhängig ist, sondern lediglich anhand der meteorologischen Verhältnisse. RCG-Simpson\_99, wie bereits erklärt, wurde unter denselben Bedingungen betrieben, - bis auf die erhöhten VOC-Werte. Höhere VOC-Bedingungen haben zu höheren Ozon-Werten geführt. Dies hat nun den Unterschied ausgemacht.

Abbildung 51 zeigt den gleichen zeitlichen Verlauf an Auf- und Abbauprozessen für die südspanische Box für sekundäres organisches Aerosol. Die rote Linie stellt wiederum die Budgetbeiträge aus dem RCG-Simpson\_99-Modell (VOC-Emissionen aus Köble (2002) und mithilfe der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode), die grüne gestrichelte Linie hingegen die Beiträge aus dem RCG-Standard-Lauf (VOC-Emissionen aus Smiatek (1998) unter Verwendung der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode) dar. Waren bei den Ozonbetrachtungen die zwei Modellkonfigurationen bis auf den zweiten und dritten Tag relativ ähnlich, so sieht man in der simulierten chemischen SOA-Produktion deutliche Unterschiede, die auf die unterschiedliche Behandlung der VOC-Emissionen zurückzuführen sind. Der SOA-Aufbau in der Standardversion ist im Vergleich zur RCG-Simpson\_99-Version sehr viel geringer. So sind zum Beispiel am 3. und 4. Simulationstag deutlich erhöhte Werte aus dem chemischen Aufbau an SOA im Vergleich zu den übrigen Tagen erkennbar, die in der Standardversion sehr viel schwächer ausfallen. Wiederum ist ein direkter Vergleich mit Messungen, sowohl der Aufbauprozesse als auch der absoluten Werte nicht möglich.

## 4. Windaufwirbelung: Feinstaub

Aufwirbelungsprozesse von Feinstaub, der am Boden liegt und wieder in die Atmosphäre gebracht wird, scheinen einen wichtigen Beitrag zu gemessenen PM10-Konzentrationen zu liefern. Der Anteil von Mineralstaub an Gesamt-PM10-Konzentrationen wird über weiten Teilen Europas auf zwischen 10% bis über 30% geschätzt. Dies hängt von der Lage und von der Jahreszeit bzw. der meteorologischen Situation ab (Putaud et al., 2004). Es kommt aber immer wieder vor, dass über weite Strecken Mineralstaub aus Wüstengebieten oder aus ariden Zonen transportiert wird. Auch innerhalb von Städten wurden erhöhte PM10-Werte bei starken Winden gemessen, die auf einen Beitrag von Windaufwirbelungen schließen lassen. Dieser Beitrag stammt aber vermutlich von Straßenstaub, was in diesem Bericht nicht berücksichtigt werden soll. Hauptaugenmerk hier sind Aufwirbelungsprozesse aus naturbelassenen Böden. Aufgewirbelter Mineralstaub findet sich vor allem in der groben Fraktion des PM10, also größer als 2.5 µm (John et al., 2004), und gelangt hauptsächlich durch mechanische Prozesse von Erdkrustenmaterial in die Atmosphäre. Landwirtschaftliche Aktivitäten spielen sicherlich auch eine wesentliche Rolle in der Menge der aufgewirbelten Feinstäube, vor allem von Ackerflächen, also semi-naturbelassenen Böden.

### 4.1 Online-Modellierung der Aufwirbelung von Staub aus naturbelassenen Böden in RCG

Im Chemie-Transport-Modell RCG werden Aufwirbelungsprozesse von Mineralstaub aus naturbelassenen Böden stündlich aufbauend auf der Landnutzungsdatenbasis von Smiatek (1998) über Emissionsfaktoren modelliert (Stern, 2009). Die Bewirtschaftung von Ackerflächen wird dabei aber nicht berücksichtigt. Für das RCG-Modell wurde ausgehend von den Untersuchungen von Claiborn et al. (1998) und Loosemore und Hunt (2000) ein Modul erstellt, das die Emission von aufgewirbeltem Staub auf Grund von zwei Prozessen berechnet die in Abbildung 52 schematisch dargestellt sind:

- Emission kleiner Partikel durch direkte Windaufwirbelung, und
- Emissionen von Partikeln durch die Aktion großer Partikel, die vom Wind aufgewirbelt werden, infolge ihres Gewichts aber wieder zum Boden zurückfallen und dadurch kleinere Partikel aufwirbeln

Die Aufwirbelung ist eine Funktion der Schubspannungsgeschwindigkeit und der Eigenschaften des Bodens sowie der Oberflächenbeschaffenheit, der Zusammensetzung des Bodens, der Feuchte und der Vegetationsbedeckung.

Loosemore und Hunt (2000) haben anhand von Experimenten folgende einfache Relation zwischen Schubspannungsgeschwindigkeit  $u^*$  und Emissionsfluss  $F_d$  [ $\mu\text{g}/(\text{m}\cdot\text{s})$ ] vorgeschlagen:

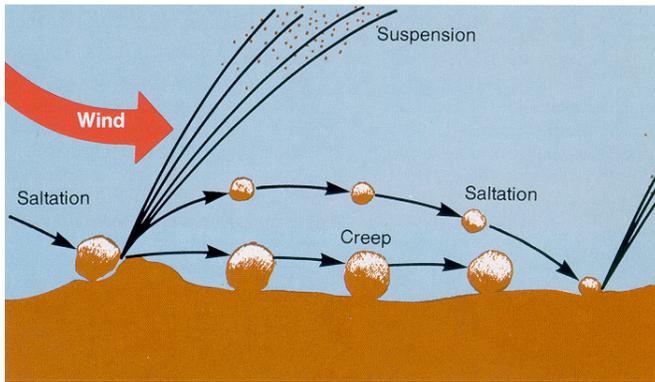
$$F_d = 3.6 (u^*)^3$$

Diese Parametrisierung beschreibt die Aufwirbelung relativ kleiner Partikel. Die indirekte Aufwirbelung durch die Wechselwirkung mit großen Partikeln wird von Claiborn et al.

(1998) nach folgendem Ansatz parametrisiert:

$$F_d = 12000 (u^*)^3 (u^* - u^*_{\text{thr}})$$

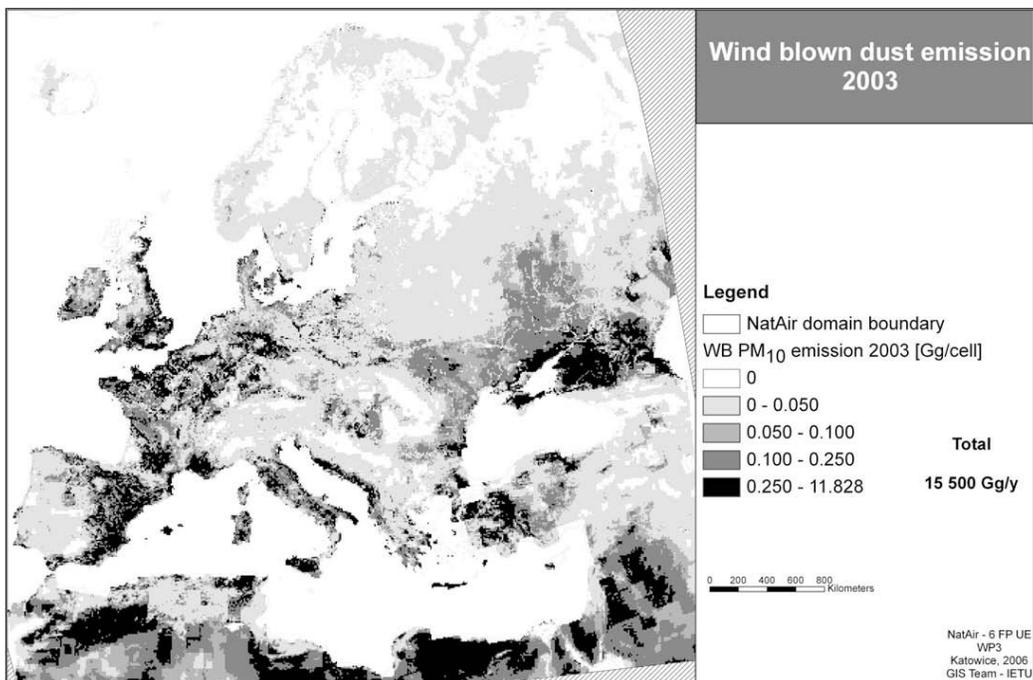
$u_{*thr}$  gibt die Schubspannungsgeschwindigkeitsschwelle an, über der der Prozess der Aufwirbelung beginnt. Diese Schwellengeschwindigkeit ist eine Funktion der Bodenbeschaffenheit und schwankt zwischen 0,4 m/s für trockene, erodierende Böden und 1,6 m/s für Weideland ohne Erosion. Der Vergleich der beiden Formeln zeigt, dass die indirekte Aufwirbelung von Partikeln durch die Kollision mit größeren Partikeln zu weitaus höheren Emissionsflüssen führt als die Emission verursacht durch die direkte Windeinwirkung. Gegenwärtig werden die von Claiborn et al. (1998) vorgeschlagenen Werte für mäßig feuchte und mäßig erodierende Böden genommen und auf die Landnutzungsklassen „Ackerland“ und „unbebauter Boden“ angewandt. Ein Vorteil der online-Berechnung der Staubaufwirbelung ist die Wechselwirkung zwischen Meteorologie und mineralischem Feinstaub und die relative Einfachheit der Parametrisierung. Diese wiederum ist aufgrund unzureichender Erkenntnisse über die Beiträge von Windaufwirbelungsprozessen zu PM10-Konzentrationen gerechtfertigt. Dennoch würden eine bessere Beschreibung des Untergrundes oder die Kenntnis der Bodenfeuchte, sowie das Einbringen eines Bebauungskalenders für Ackerflächen den Ansatz wesentlich verbessern. Es sei weiter angemerkt, dass die von fahrenden Kraftfahrzeugen auf Straßen verursachte Aufwirbelung mit den obigen Ansätzen nicht bestimmt werden kann.



**Abbildung 52:** Schematische Abbildung der zwei wichtigsten Prozesse, die die Staubaufwirbelung steuern. Saltation und Suspension.

## 4.2 NATAIR: Aufwirbelung von Feinstäuben

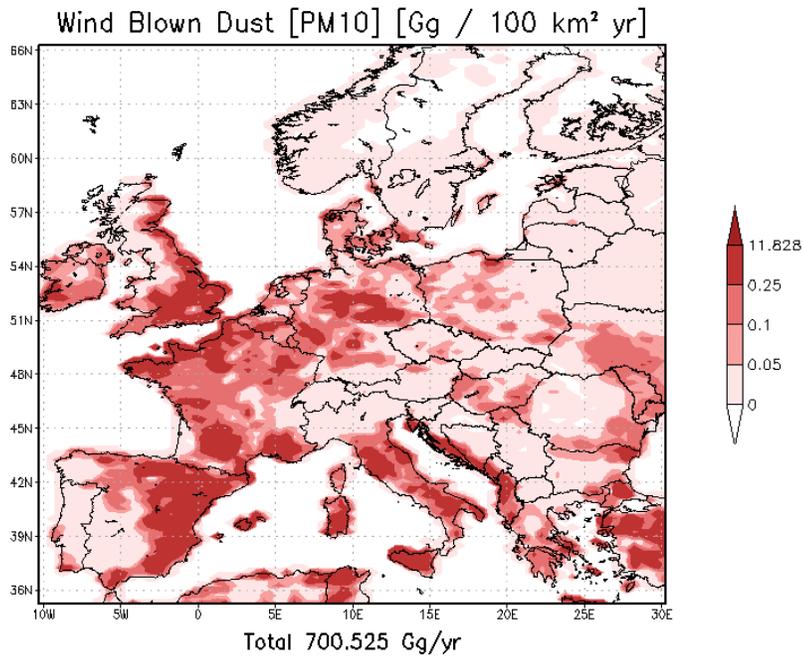
Während des NATAIR-Projektes wurden stündliche Abschätzungen von aufgewirbelten Feinstaubflüssen auf einem horizontalen Gitter von 10x10 km<sup>2</sup> durchgeführt. Es wurde dabei zwischen Mineralstäuben kleiner 10 µm und 2.5 µm unterschieden, in dem die feine Fraktion 10% der groben Fraktion ausmachte. Eine detaillierte Beschreibung kann in Korcz et al. (2009) gefunden werden. Die erstellte Datenbasis berücksichtigt als Aufwirbelungsquellen landwirtschaftlich benutzte Flächen, und natürliche und semi-natürliche Böden in Europa und in angrenzenden Ländern. Anthropogene Einflüsse durch Bodenbewirtschaftung wie Pflügen, Ernten und andere Aktivitäten wurden dabei in der Erstellung der Datenbasis zugelassen, sodass nicht nur von natürlichen Staubaufwirbelungsprozessen gesprochen werden kann. Die effektive Emissivität wird durch Bewuchs und Wasserverfügbarkeit des Bodens moduliert. Die zeitliche Variabilität hängt wesentlich von meteorologischen Feldern ab, die mit dem MM5-Modell erstellt worden sind. Die Unsicherheit des erzeugten Datensatzes wird von den Autoren sehr hoch eingeschätzt, unter anderem auch, weil der Prozess der Staubaufwirbelung räumlich und zeitlich sehr variabel und diskontinuierlich ist. Neben meteorologischen Feldern wurden Textureigenschaften der Boden berücksichtigt wie in Alfaro et al. (2001) beschreiben, und die funktionale Abhängigkeit der Emissionsflüsse von meteorologischen und pedologischen Eigenschaften wurde wie in Marticorana et al. (1995, 1997) und in Gilette et al. (1988) behandelt. Die verwendete Landnutzungsdatenbasis ist in Köble et al. (2006) beschrieben.



**Abbildung 53:** Emissionsfluss [Gg/100km<sup>2</sup> yr] im NATAIR-Gebiet: Staubaufwirbelung aus dem NATAIR-Projekt im Größenbereich bis 10µm. (aus Korcz et al., 2009, Fig. 4)

Abbildung 53 zeigt die berechneten Feinstaubmengen aus Aufwirbelungsprozessen für Europa und angrenzende Länder, wie sie aus dem NATAIR-Projekt für das Jahr 2003

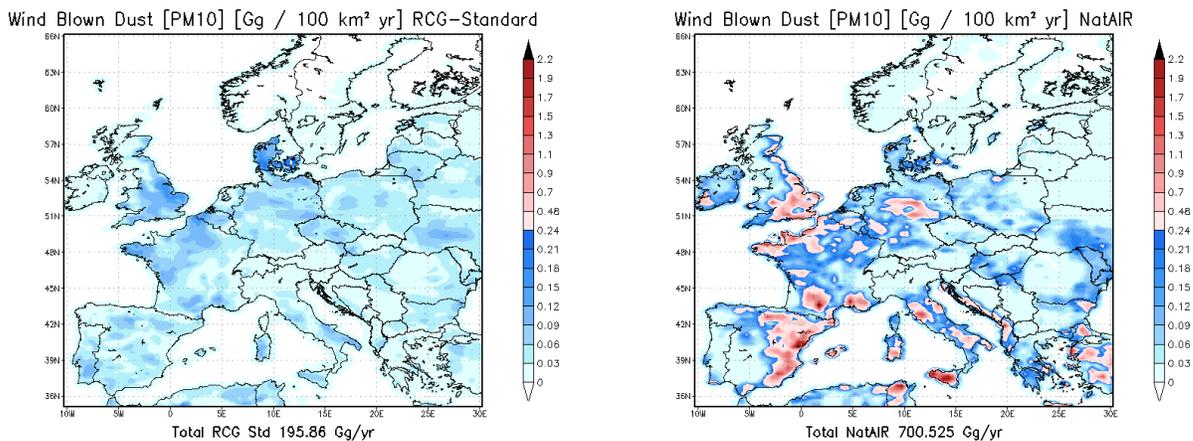
berechnet worden waren. Deutlich ersichtlich sind die räumlichen Maxima über dem nordafrikanischen Kontinent, über Kleinasien und über dem Kaukasus, sowie über Südwestspanien, Nordfrankreich und Mitteldeutschland, sowie über Sizilien und der Türkei.



**Abbildung 54:** Emissionsfluss [Gg/100km² yr] im RCG-Gebiet: Staubaufwirbelung aus dem NATAIR-Projekt im Größenbereich bis 10µm.

Abbildung 54 zeigt die auf das RCG-Gebiet reduzierte und umgerechnete Feinstaubemission aus Aufwirbelungsprozessen für das Jahr 2003 aus dem NATAIR-Projekt. Für das berücksichtigte Gebiet wurde eine jährliche Gesamtsumme von 700,52 Gg berechnet, für das gesamte NATAIR-Gebiet hingegen 15500 Gg, das sind ca. 22 mal so viel wie im RCG-Gebiet.

### 4.3 Vergleich: NATAIR – RCG-Standard.

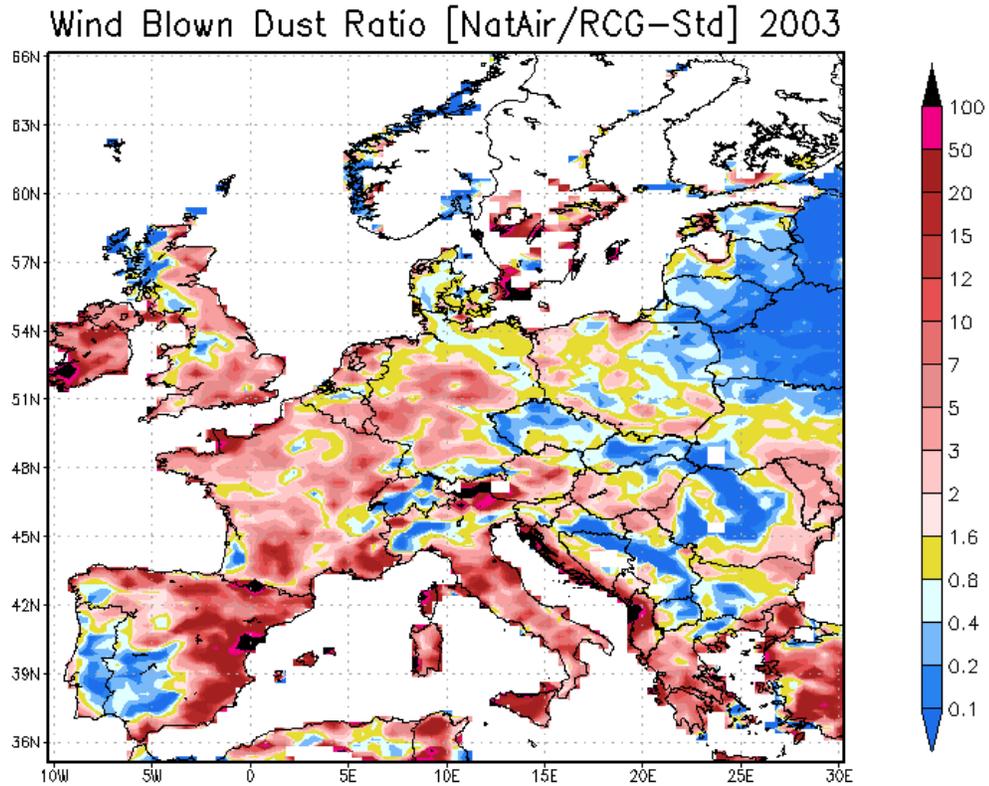


**Abbildung 55:** Emissionsfluss [Gg/100km<sup>2</sup> yr] im RCG-Gebiet: Staubaufwirbelung, berechnet mit der in RCG implementierten Methode, im Größenbereich bis 10µm (links) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).

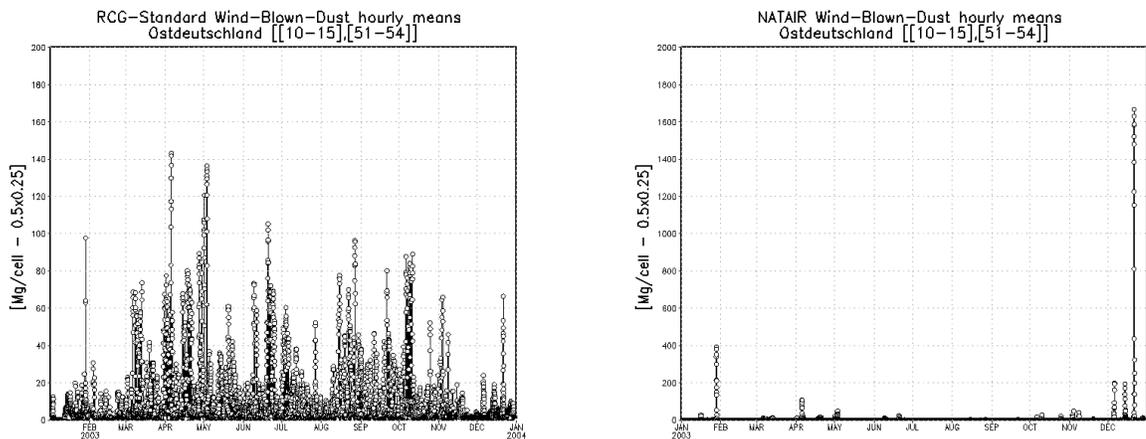
Abbildung 55 zeigt links die mit RCG online simulierten Jahresemissionen für Feinstäube aus Aufwirbelungsprozessen und rechts die aus dem NATAIR-Projekt. Fast im gesamten Gebiet sind die NATAIR-Daten wesentlich höher als die RCG-simulierten Daten. Über das RCG-Gebiet summiert liefert RCG einen Jahreswert von 195,7 Gg, während es bei NATAIR im gleichen Gebiet 700,5 Gg waren. Abbildung 56 zeigt das Verhältnis der beiden erstellten Jahresdatensätze an aufgewirbeltem Feinstaub im Simulationsgebiet. Die blaue Einfärbung bedeutet niedrigere Feinstaubmengen aus der NATAIR-Simulation gegenüber der RCG-Simulation, rote Farben höhere. Vor allem über Südostspanien, Mittelitalien und Griechenland liegt das Verhältnis zwischen den beiden Bearbeitungsarten für aufgewirbelten Feinstaub bei 1:20, lokal sogar noch deutlich höher bei bis zu 1:100. Über Deutschland liegt das Verhältnis NATAIR-RCG bei ca. 1: 10 über Mitteldeutschland – Thüringen – Sachsen. Im Nordosten Deutschland ist es relativ ausgeglichen, entlang der Elbe überwiegen sogar die RCG-Emissionsmengen. Vor allem über Nordosteuropa simuliert RCG fast 10-mal so hohe aufgewirbelte Feinstaubmengen wie NATAIR. Dies kann auch im Süden Spaniens und Portugals festgestellt werden. Dennoch, wenn die Absolutzahlen nochmals verglichen werden, so prognostiziert NATAIR über drei mal so hohe Emissionen aus aufgewirbelten Feinstäuben wie RCG. Dies liegt jedoch relativ gut in den von Korcz et al. (2009) angegebenen Unsicherheitsmargen.

Da über Mitteldeutschland die höchsten Unterschiede zwischen den beiden Datenbasen festgestellt werden konnten, ist für das Gebiet zwischen 10° Ost und 15° Ost und zwischen 51° Nord und 54° Nord auch der zeitliche Verlauf der Emissionsschätzungen analysiert worden (Abbildung 57). Während RCG maximale Stundenwerte von ca. 140 Mg/Zelle im definierten Gebiet simuliert, gehen diese Werte bei NATAIR an bestimmten Tagen auf das über 10-fache. Auch werden die Staubaufwirbelungen im zeitlichen Verlauf sehr unterschiedlich simuliert: RCG berechnet ziemlich gleich bleibend aufgewirbelten Staub mit einem leicht erkennbaren zeitlichen Maximum im April, während NATAIR diesen Prozess extrem inhomogen darstellt. So werden im

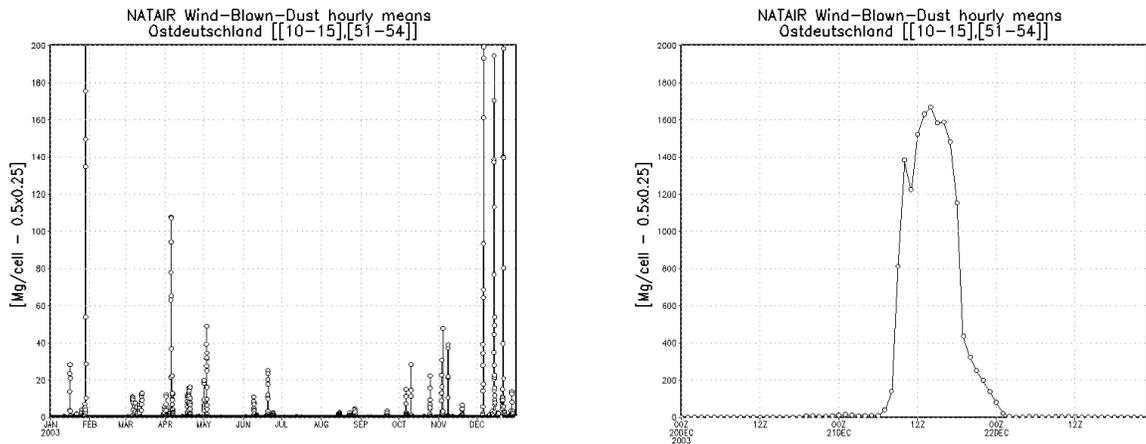
gesamten ostdeutschen Bereich außer an einzelnen Tagen im Februar, April, November und Dezember sehr niedrige Feinstaubemissionen aus Aufwirbelungsprozessen simuliert.



**Abbildung 56:** Verhältnis zwischen Emissionsflüssen aus Staubaufwirblung, berechnet im NatAir-Projekt und mit RCG.



**Abbildung 57:** Zeitlicher Verlauf der Staubaufwirbelungsflüsse in Ostdeutschland (von 10° Ost bis 15° Ost und von 51° Nord bis 54° Nord) in kg/Zelle. Auflösung 0.5°x0.25° berechnet mit RCG (links) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). Zeitspanne: 1.1.2003 – 31.12.2003.



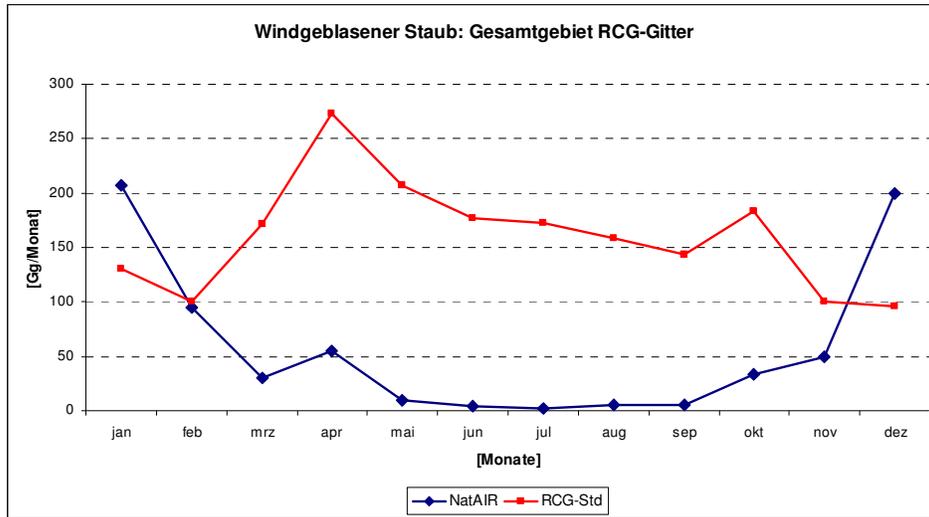
**Abbildung 58** Zeitlicher Verlauf der Staubaufwirbelungsflüsse in Ostdeutschland (von 10° Ost bis 15° Ost und von 51° Nord bis 54° Nord) in kg/Zelle. Auflösung 0,5°x0,25° aus dem NATAIR-Projekt. Zeitspanne: 1.1.2003 – 31.12.2003. y-Achsenobergrenze: 200 Mg/Zelle (links) und ohne obere y-Achsenlimitierung für die Zeitspanne: 20.12.2003 – 22.12.2003.

Um dies nochmals zu verdeutlichen und um die die beiden Zeitverläufe besser miteinander vergleichbar zu machen, wurde in Abbildung 58 links die y-Achse auf 200 Mg/Zelle limitiert. Dies war in der RCG-Simulation auch so. Wie bereits erwähnt, liefert NATAIR im zeitlichen Durchschnitt viel seltener nennenswerte Feinstaubemissionen aus Aufwirbelungsprozessen und wenn, dann hauptsächlich als Tageswerte im Dezember. In Abbildung 58 (rechts) ist so ein Tageswert aufgezeichnet. Am 21. Dezember 2003 simuliert NATAIR bis in die frühen Morgenstunden sehr geringe Feinstaubemissionen die dann um 7 Uhr morgens extrem ansteigen, einen Maximalwert von über 1600 Mg/Zelle im Gebiet erreichen und ab 14 Uhr wieder sehr stark abfallen. Ab 0 Uhr des Folgetages werden wiederum im ostdeutschen Raum vernachlässigbare Feinstaubemissionen aus Aufwirbelungsprozessen im NATAIR-Projekt vorhergesagt. Korcz et al. (2009) haben immer wieder den sehr diskontinuierlichen Charakter der aufgewirbelten Stäube in den Vordergrund gestellt. Dies ist im Vergleich zur RCG-Methode der Berechnung der Aufwirbelung sehr deutlich geworden.

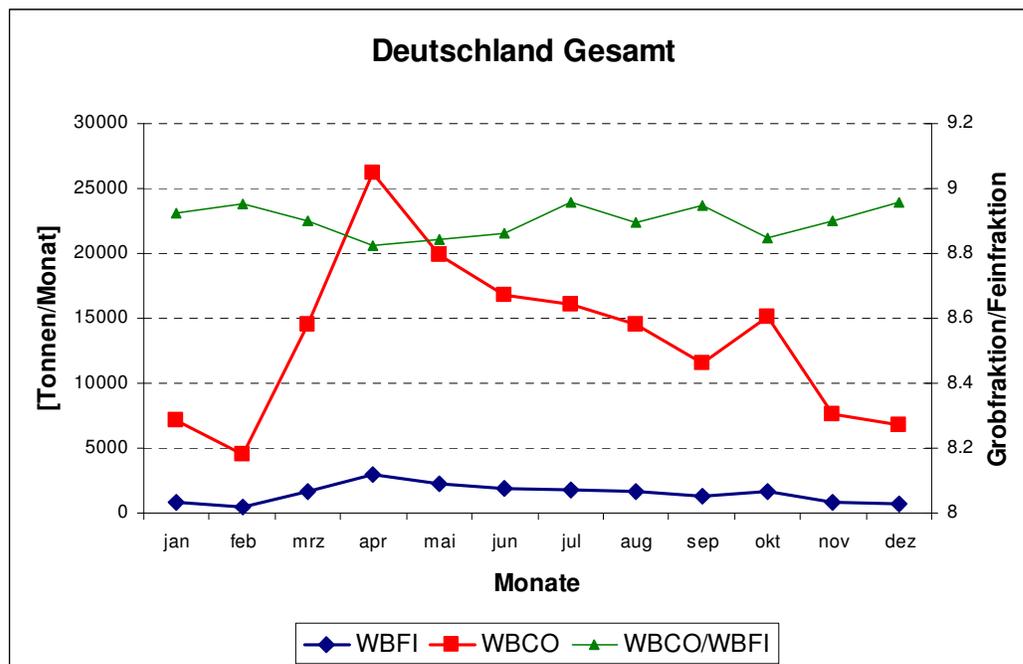
Abbildung 59 zeigt die Monatssummen der aufgewirbelten Feinstaubemissionen über das gesamte RCG-Gebiet, zum einen simuliert mit NATAIR (blaue Linie) und zum anderen mit RCG (rote Linie). Während RCG ein Minimum im Winter und ein Maximum im April simuliert, ist dies bei NATAIR genau umgekehrt. Dort werden die höchsten Werte im Januar und im Dezember und die Minima in den Sommermonaten berechnet. Der April bildet bei NATAIR ein sekundäres Maximum. Über das gesamte Gebiet aufsummiert, weichen die beiden Berechnungsarten in den kalten Monaten Januar, Februar, November und Dezember eher wenig, in den warmen Monaten hingegen sehr stark voneinander ab.

Wie bereits eingangs erwähnt, trennt NATAIR pauschal zwischen aufgewirbelten Feinstaubemissionen in der feinen und in der groben Fraktion: 10% des Gesamtanteils der aufgewirbelten Mineralstoffe liegen in der feinen Fraktion, 90% in der groben Fraktion. Aufgrund der Unterscheidung der Entstehungsweise der feinen und der groben Feinstäube aus Aufwirbelung werden hingegen mit RCG zeitlich variable Grobstaub-zu-Feinstaub-Verhältnisse simuliert (Abbildung 60). Die feine Fraktion ist im Jahresverlauf sehr homogen, mit etwas höheren Werten im April und niedrigeren Werten im Winter.

Dies kann auch in der groben Fraktion festgestellt werden. Das Verhältnis der beiden Größenfraktionen liegt ziemlich homogen bei 1:9 und bestätigt somit die Annahme, die im NATAIR-Projekt getroffen worden ist.



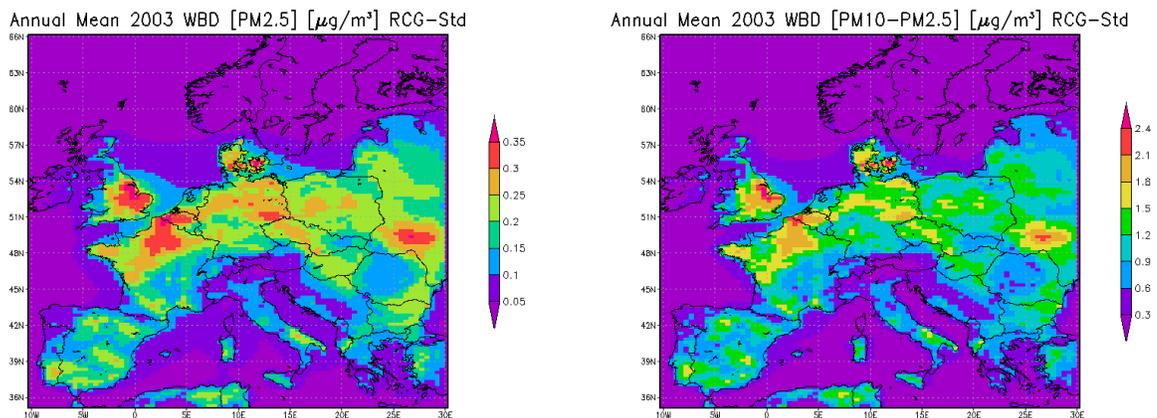
**Abbildung 59:** Monatssummen an Staubaufwirbelungsflüssen in [Gg/Monat] im RCG-Gebiet: Blau: aus dem NATAIR-Projekt, Rot: mit RCG berechnet.



**Abbildung 60:** Monatssummen an Staubaufwirbelungsflüssen in Tonnen/Monat [Mg/Monat] (linke y-Achse) in Deutschland: Blau: feine Fraktion [ $< 2.5 \mu\text{m}$ ] und rot: grobe Fraktion [ $2.5 \mu\text{m} - 10 \mu\text{m}$ ]. Grüne Linie: Verhältnis Grobfraction zu Feinfraktion (rechte y-Achse).

## 5. Ergebnisse: RCG mit Feinstaub aus Aufwirbelungsprozessen aus unterschiedlichen Datensätzen.

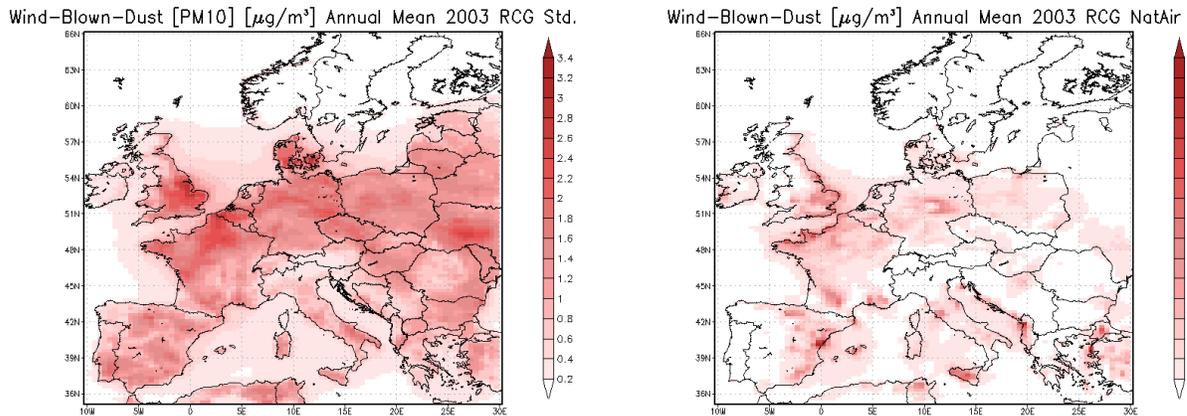
Im Folgenden werden die Jahresmittelwerte und die Mittelwerte über einzelne Jahreszeiten dargestellt. RCG-Standard berechnet dabei die Staubaufwirbelung online im Modell selbst anhand der Parametrisierungsvorschläge von Loosmore and Hunt (2000), ausgehend von der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis. RCG-NATAIR hingegen benutzt die im NATAIR-Projekt erstellten stündlichen Mineralstaubemissionen auf dem 10x10 km<sup>2</sup>-Gitter, das auf das RCG-Gitter umgerechnet worden ist. Das betrachtete Jahr ist das Jahr 2003. Sowohl RCG-Standard als auch RCG-NATAIR werden mit meteorologischen Daten aus dem TRAMPER – System angetrieben. Die Staubaufwirbelungsemissionen aus dem NATAIR-Projekt wurden jedoch mit dem meteorologischen Modell MM5 berechnet.



**Abbildung 61:** RCG-Rechnung. Jahresmittel 2003 Mineralstaub in der feinen (links) und in der groben (rechts) Fraktion. Staubaufwirbelungsfluss aus RCG-Standard.

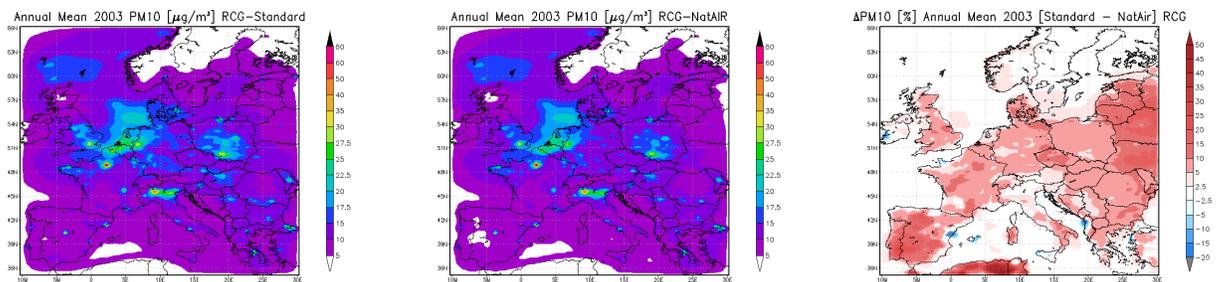
Abbildung 61 zeigt die beiden betrachteten Fraktionen des aufgewirbelten Feinstaubes im RCG-Modell. Links sind die Luftkonzentrationen der aufgewirbelten Mineralstäube kleiner 2,5 µm, rechts die zwischen 2,5 und 10 µm dargestellt. Die feine Fraktion liefert dabei im Jahresmittel Maximalwerte von knapp über 0,3 µg/m<sup>3</sup>, die grobe Fraktion bis über 2 µg/m<sup>3</sup>. Die räumliche Verteilung ist aufgrund des meteorologischen Parameters Schubspannungsgeschwindigkeit und aufgrund derselben zugrunde liegenden Landnutzungsdatenbasis (Smiatek, 1998) die gleiche, die Ausdehnung über den betroffenen Gebieten variiert jedoch stark. Mit der Standardversion des RCG werden maximale Aufwirbelungsstäube über der Ostküste Mittelenglands, in Nordfrankreich und Belgien, in der Ukraine, und in Mitteldeutschland bis Sachsen simuliert. Der Süden Europas wird mit geringeren Feinstaubkonzentrationen aus Aufwirbelungsprozessen berechnet, Skandinavien hat so gut wie keine PM10-Anteile aus aufgewirbeltem Mineralstoff.

Abbildung 62 stellt nun die mit RCG simulierten Feinstaubgehalte im Jahresmittel 2003 gegenüber: rechts wurde der Aufwirbelungsprozess im RCG-Modell direkt simuliert, links hingegen wurden die Emissionen aus dem NATAIR – Projekt genommen.



**Abbildung 62:** RCG-Rechnung. Jahresmittel 2003 Mineralstaub im PM10. Staubaufwirbelungsfluss aus RCG-Standard (links) und aus NATAIR (rechts)

Im Jahresmittel ist sehr gut erkennbar, dass RCG-NATAIR im allgemeinen über Gesamteuropa geringere Staubkonzentrationen aufgrund der Aufwirbelung berechnet als RCG-Standard. Die räumliche Verteilung stimmt überein: auch RCG-NATAIR hat ein räumliches Maximum im Jahresmittel über der Ostküste Mittelenglands und über Nordfrankreich. Der Süden Europas wird jedoch gerade um Valencia und über Sizilien, aber auch in Südfrankreich, Albanien und Italien mit höheren Werten berechnet als andere Gegenden Europas. In Deutschland zeichnet sich ein räumliches Maximum in Thüringen und Sachsen ab.



**Abbildung 63:** Berechnete Gesamt-PM10-Jahresmittelwerte in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.

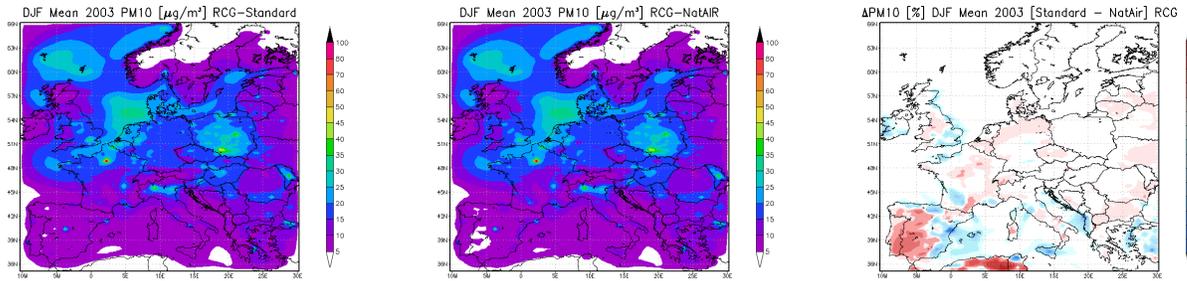
Abbildung 63 stellt die Jahresmittelwerte der simulierten Gesamt-PM10-Konzentrationen dar: links mit der RCG-Standardversion, in der Mitte mit der RCG-NATAIR-Version und rechts die prozentualen Änderungen aufgrund der unterschiedlichen RCG-Versionen. Deutlich ersichtlich wird, dass die Absolutwerte der Gesamt-Feinstaubkonzentrationen in den Ballungsgebieten Paris, Poebene, London, Niederlande, Ruhrgebiet und Südpolen deutlich über  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  liegen. Die berechneten Luftkonzentrationen der aufgewirbelten Feinstäube im Jahresmittel lagen bei maximal  $3.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , also ca. um den Faktor 10 kleiner. Sogar die Seesalzbeiträge über der Nordsee werden vom RCG-Modell mit über  $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$  simuliert, was 3mal so viel ist wie die Maximalwerte der Luftkonzentrationen aus Staubaufwirbelungsprozessen. Die prozentualen Unterschiede zwischen den beiden Modellversionen, die sich nur in der Aufwirbelungsdatenbasis unterscheiden, liegen bei

$\pm 20\%$  über weiten Teilen Mitteleuropas. Über Nordafrika werden sogar über 50% niedrigere PM10-Konzentrationen von RCG-NATAIR berechnet als von RCG-Standard. Dies hat damit zu tun, dass in diesem Gebiet nur Aufwirbelungsprozesse als Feinstaubemissionen in das Modell eingehen und diese dort von den beiden Berechnungsarten stark voneinander abweichen. Grundsätzlich kann bemerkt werden, dass prozentual die höchsten Abweichungen dort sichtbar sind, wo die geringsten anthropogenen Einflüsse sind. Wie bereits erwähnt, liegt der natürliche Hintergrund an Feinstaub ohne menschliches Zutun bei ca.  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Feinstaubemissionen aus Aufwirbelungsprozessen stammen nicht nur aus natürlichen Bruchgebieten, sondern häufig und vor allem auch aus Ackerflächen. Diese so genannten seminatürlichen Flächen können also zum einen den natürlichen Hintergrund an PM10 miterklären, zum anderen ist es wichtig, den – wenn auch geringen – Beitrag dieser Emissionsquellen am Gesamt-PM10-Gehalt der Luft abzuschätzen.

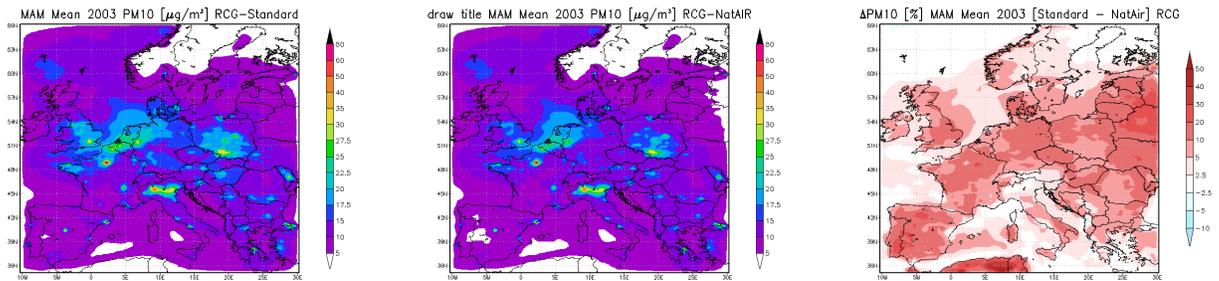
Abbildung 64 bis Abbildung 67 stellt die PM10-Konzentrationen aufgrund unterschiedlicher Aufwirbelungsparametrisierungen im saisonalen Mittel und deren prozentualen Abweichungen dar. Die Wintermonate werden von beiden Modellversionen am ähnlichsten simuliert. Die Abweichungen aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungsparametrisierungen liegen beim PM10-Wintermittel über Mittel-, Nord- und Osteuropa bei  $\pm 5\%$ . Nur im Südwesten Spaniens, in Portugal, Nordafrika und auf Sizilien werden Unterschiede von  $\pm 20\%$  berechnet, und dort wiederum nur in jenen Gebieten, die sehr geringe Gesamtkonzentrationen an PM10-Werten aufweisen.

Frühjahr, Sommer und Herbst hingegen zeigen deutlichere Unterschiede in den jeweiligen Jahreszeitenmittel an PM10-Konzentrationen. Vor allem im Sommer werden mit der RCG-Standardversionen in fast allen ländlichen, nicht direkt von anthropogenen Emissionen unmittelbar beeinflussten Gebieten, mit der RCG-Standardversion bis zu 20% höhere, in manchen Gebieten Osteuropas, Nordafrikas und an der portugiesisch-spanischen Grenze bis über 30% höhere PM10-Konzentrationen aufgrund unterschiedlicher Behandlung der Feinstäube aus Aufwirbelungsprozessen simuliert.

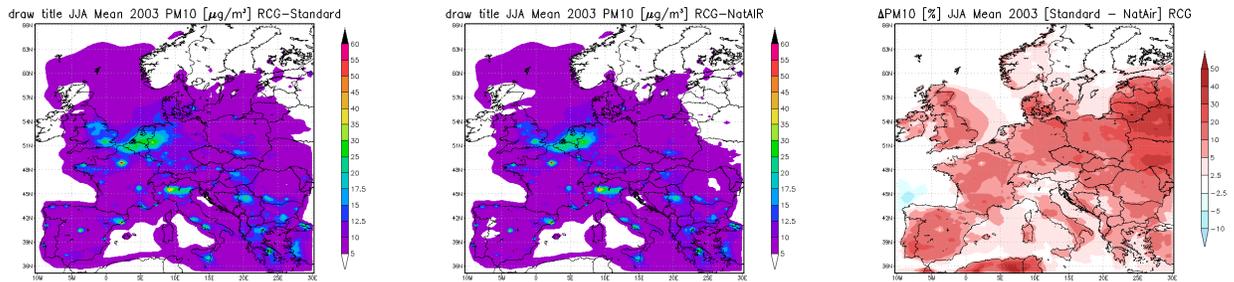
Der Unterschied für den Frühling ist etwas weniger ausgeprägt, noch geringer ist der Unterschied im Herbst. Gleich bleibt für alle drei Jahreszeiten, dass RCG-Standard höhere PM10-Konzentrationen berechnet als RCG-NATAIR.



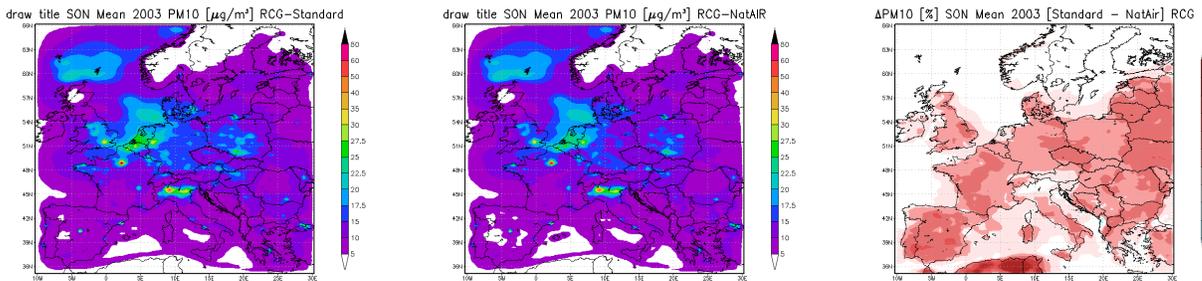
**Abbildung 64:** Berechnete Gesamt-PM10-Wintermittelwerte in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.



**Abbildung 65:** Berechnete Gesamt-PM10-Frühlingsmittelwerte in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.

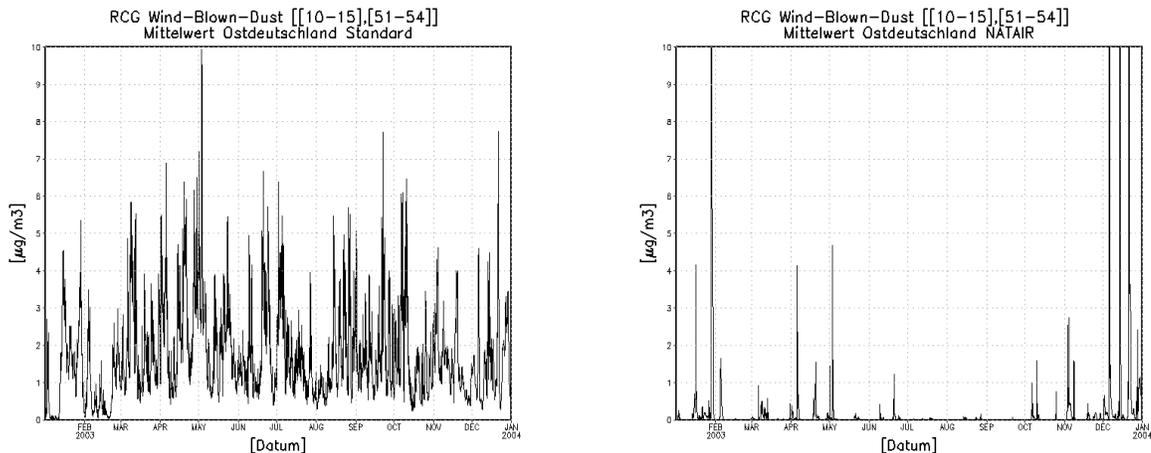


**Abbildung 66:** Berechnete Gesamt-PM10-Sommermittelwerte in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.



**Abbildung 67:** Berechnete Gesamt-PM10-Herbstmittelwerte in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.

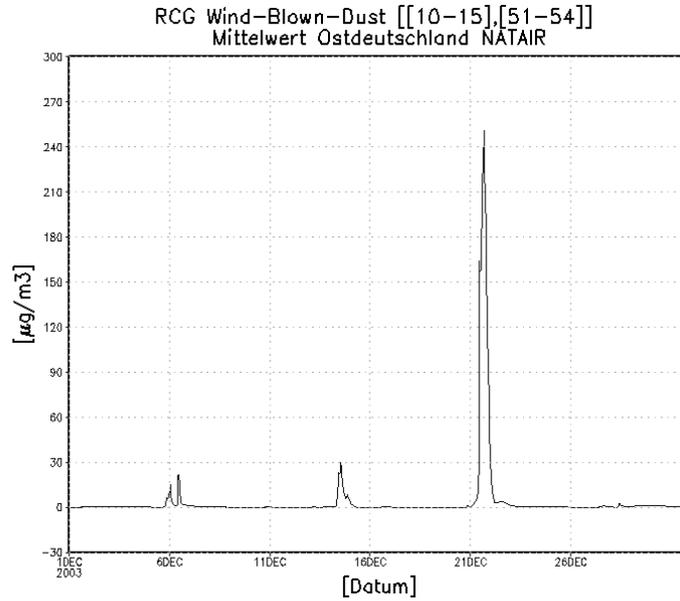
Für Ostdeutschland wurden die räumlichen Mittel über dem Gebiet von 10° Ost bis 15° Ost und von 51° Nord bis 54° Nord zeitlich für das gesamte Jahr 2003 dargestellt, um zum einen genauer den Einfluss unterschiedlicher Aufwirbelungsparametrisierungen auf deutsche PM10-Konzentrationen, zum Anderen die größten räumlichen Unterschiede in der Staubaufwirbelung genauer untersuchen zu können.



**Abbildung 68:** RCG-Rechnung. Stündliche Zeitreihe 2003 für Ostdeutschland [10° Ost – 15° Ost, 51° Nord – 54° Nord] Mineralstaub im PM10 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]. Staubaufwirbelungsfluss berechnet mit RCG (links) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).

Abbildung 68 zeigt den Vergleich zwischen den reinen simulierten Staubbeiträgen, die zum einen mit der Standardversion RCG (links) und zum anderen mit der RCG-Konfiguration mit Mineralstaub aus dem NATAIR-Projekt berechnet worden sind. Über das gesamte Jahr sieht man, dass die stündlichen ostdeutschen Mittelwerte aus RCG-Standard bis auf wenige Ausnahmen immer höher liegen als die mit RCG-NATAIR simulierten. RCG-NATAIR hat die höchsten Stundenmittel an Feinstaubkonzentrationen aus Aufwirbelungsprozessen im Januar und im Dezember, RCG-Standard hingegen im Mai, im Oktober und Dezember. Viel auffälliger jedoch ist das deutlich unterschiedliche Verhalten im Allgemeinen: RCG-Standard weist einheitlich über das gesamte Jahr Beiträge aus Aufwirbelungsprozessen in Ostdeutschland auf, RCG-NATAIR hingegen nicht. Dort werden fast immer weit unter  $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$  simuliert, außer zu bestimmten Terminen, wo diese Werte weit über  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  plötzlich ansteigen und auch rasch wieder abfallen. Abbildung 69 zeigt nochmals einen zeitlichen Ausschnitt der Stundenwerte vom 1. bis 31. Dezember 2003 für die räumlich gemittelten Feinstaubkonzentrationen aus Aufwirbelungsprozessen, wie sie mit RCG-NATAIR simuliert worden sind. An allen Tagen wurden sehr kleine Werte simuliert, außer am 6., am 14. und am 21. Dezember 2003. Während an den ersten beiden Tagen Spitzenwerte von knapp  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  aus reinen Mineralstaubkonzentrationen aus NATAIR-Aufwirbelungsprozessen simuliert wurden, stieg dieser am 21. Dezember auf über  $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$  an. Die Messungen zeigen diesen hohen Wert im Gesamt-PM10 nicht. Der sehr hohe Wert aus dem NATAIR-Projekt lässt auf eine Überschätzung der Beiträge aus Aufwirbelungsprozessen schließen. Der kontinuierliche Gang im RCG-Standard-Verfahren lässt hingegen auf einen zu schwachen Einfluss der Trockenperioden, der Bearbeitungszeiten der Äcker und des sprunghaften Charakters der Windböen schließen.

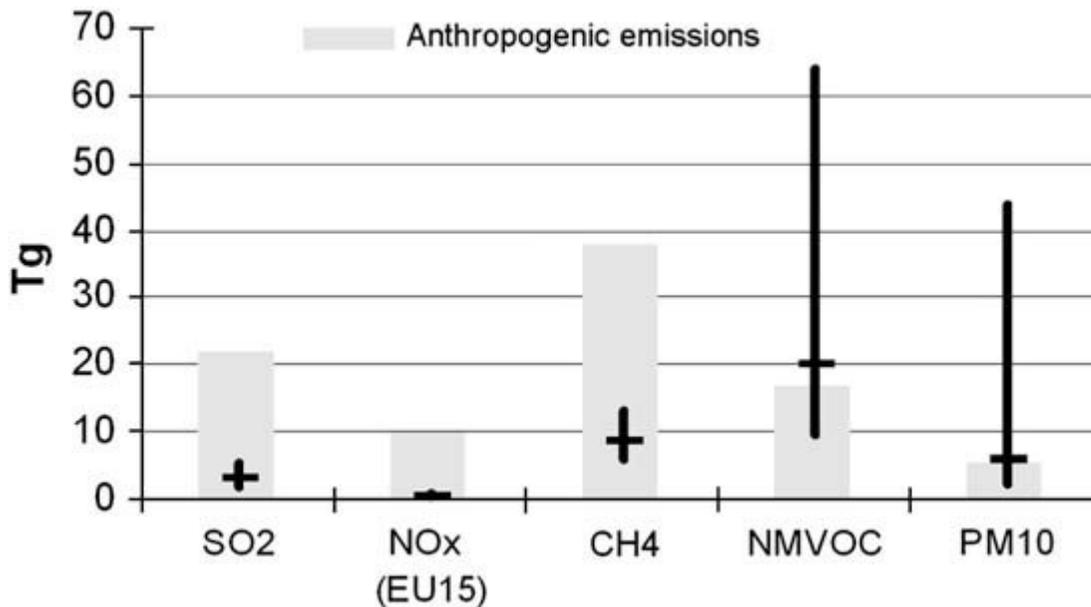
Es bedarf auf jeden Fall noch einiger Anstrengung, das Phänomen des aufgewirbelten Feinstaubes aus naturbelassenen oder seminatürlichen Böden zu erfassen.



**Abbildung 69:** RCG-Rechnung. Stündliche Zeitreihe 1.12.2003 – 31.12.2003 für Ostdeutschland [10° Ost – 15° Ost, 51° Nord – 54° Nord] Mineralstaub im PM10 [µg/m³]. Staubaufwirbelungsfluss aus dem NATAIR-Projekt.

## 6. Zusammenfassung

Das chemische Transportmodell REM\_Calgrid ist mit verschiedenen biogenen Emissionen betrieben worden. Dabei muss nochmals auf die Unsicherheiten der biogenen und natürlichen Emissionen hingewiesen werden.



**Abbildung 70:** Anthropogene Emissionen (graue Balken) und biogene Emissionen (schwarze Kreuze). Die Länge der Vertikalachse im schwarzen Kreuz gibt die Unsicherheit der biogenen Emissionen wieder (aus Friedrich, 2008).

Abbildung 70 zeigt anthropogene (graue Balken) und biogene (schwarze Kreuze) Emissionsmengen in 15 EU-Mitgliedstaaten. Die anthropogenen Emissionen wurden ohne Fehlermarge dargestellt, und sollen einen Anhaltspunkt für die jeweiligen Gesamtmengen aus menschlichen Tätigkeiten bieten, während für die biogenen Emissionen die Bandbreite der Unsicherheit anhand der Länge der vertikalen Linie dargestellt ist. Der Querbalken gibt den im NATAIR-Projekt abgeschätzten wahrscheinlichsten Wert an. Natürliche Emissionen an SO<sub>2</sub> und NO<sub>x</sub> sind mit einer relativ geringen Unsicherheit verknüpft und liegen, wie auch die CH<sub>4</sub> – Emissionen aus natürlichen Quellen, weit unter der anthropogen produzierten Menge. Für VOC und PM<sub>10</sub> hingegen sind die Anteile aus natürlichen Quellen gleich hoch oder höher als die Anteile aus menschengemachten Quellen. Die Unsicherheiten liegen dabei gerade bei diesen beiden Spezies am höchsten. So wurde im NATAIR-Projekt die Bandbreite an möglichen VOC-Emissionen aus natürlichen Quellen von ca. 10 Tg bis über 60 Tg angegeben, für PM<sub>10</sub> aus natürlichen Quellen von knapp 1 Tg bis weit über 40 Tg, aufsummiert über 15 EU-Mitgliedsländer. Wie schon häufiger beschrieben, ist die Unsicherheit dabei zeitlich und räumlich sehr variabel.

Die hier in diesem Beitrag beschriebenen Abschätzungen für biogene Emissionen an VOCs aus Wäldern wurden anhand von unterschiedlichen Landnutzungsdatenbasen, unterschiedlichen Waldbestandsdaten und unterschiedlichen Emissionsfaktoren gemacht

und mit den Daten aus dem NATAIR-Projekt vergleichen. Des Weiteren wurden PM10-Aufwirbelungsprozesse selbst simuliert und den Abschätzungen aus dem NATAIR-Projekt gegenübergestellt. Am Ende wurden jeweils die Auswirkungen auf die simulierten Ozon- SOA- und Gesamt-PM10-Konzentrationen analysiert.

Die für den im RCG verwendeten Gasphasenmechanismus (CBM-IV, Gery et al., 1989) wichtigen Spezies Olefine, Paraffine, Isoprene, Aldehyde und Terpene weichen unterschiedlich stark voneinander ab, werden die natürlichen VOC-Emissionen mit verschiedenen Methoden berechnet. Für alle Spezies werden aber mit der im RCG standardmäßig verwendeten Methode, die auf Simpson et al. (1995) unter Verwendung der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis aufbaut, die geringsten Mengen produziert. Eine alternative Methode, die innerhalb des PAREST-Projekts in das RCG eingebaut worden ist und auf die in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode unter Verwendung der Waldkataster aus Köble et al. (2002) aufbaut, berechnet – außer für Isopren - die höchsten Werte. Diese liegen auch den im NATAIR-Projekt abgeschätzten Mengen näher. Die neue RCG-Methode liefert ca. 30% höhere Emissionen als die NATAIR-Schätzungen, und ca. doppelt so viel wie die alte RCG-Methode. Isopren bildet eine Ausnahme: hier sind die NATAIR-Schätzungen die höchsten, gefolgt von der neuen RCG-Methode; die alte liefert 15% niedrigere Werte.

Demzufolge liegen die höchsten Unterschiede in den Ozonjahresmitteln zwischen RCG-Rechnungen mit biogenen VOC-Emissionen nach der alten Methode und aus NATAIR. Die Änderungen erreichen in Spanien maximal 20%, in Deutschland hingegen liefern die beiden RCG-Versionen sehr ähnliche Ergebnisse. In Deutschland werden aufgrund unterschiedlicher biogener VOC-Mengen maximale Ozonänderungen von ca. 10 bis 15 % im Jahresmittel prognostiziert. Im Sommer machen sich die Änderungen deutlicher bemerkbar als im Winter. Ein Vergleich mit Messungen in Spanien hat gezeigt, dass RCG Ozon-Maxima besser simuliert, wenn sich mehr VOC im System befinden, da die chemische Produktionsrate dadurch erhöht wird.

Bei der Simulation der organischen Sekundäraerosole treten vor allem räumliche Unterschiede auf, wenn die VOC-Emissionen aus natürlichen Quellen aus unterschiedlichen Datenbasen stammen. So wird in der Standardversion des RCG das meiste SOA in Skandinavien simuliert, in der modifizierten RCG-Version (Simpson et al. 1999 und Köble et al. (2002) hingegen in den Alpen und beim Verwenden der NATAIR-Daten in Korsika und in Spanien. Wiederum sind im Sommer weit höhere Unterschiede sichtbar als im Winter. Die Auswirkungen der verschiedenen biogenen Emissionen auf das Gesamt-PM10 sind in den Ballungsgebieten vernachlässigbar, können aber in ländlichen Gebieten mit sehr geringen anthropogenen Vorbelastungen bedeutsam werden. Auch verschiebt sich durch mehr VOC das Verhältnis von biogenen SOA zu Gesamt-SOAs und liegt dadurch näher an Beobachtungen (Andreani-Aksoyoglu et al., 2008).

Aufgewirbelter Staub wird im RCG-online-berechneten Modus relativ homogen und zeitlich konstanter berechnet, das NATAIR-Projekt simuliert eine sehr starke räumliche und vor allem zeitliche Variabilität. Vergleiche mit der Realität sind nicht möglich, da Messungen fehlen. Die Gesamtsummen der beiden Datensätze sind sehr unterschiedlich, liegen aber in den oben angeführten Fehlermargen. Auch die räumliche und jahreszeitliche Verteilung aus den beiden Berechnungsarten ist sehr verschieden. Das Verhältnis zwischen feiner und grober Fraktion im aufgewirbelten Staub hingegen stimmt sehr gut überein. Der Einfluss des Feinstaubes aus Aufwirbelungsprozessen auf das

Gesamt-PM10 in Europa ist im Jahresmittel sehr klein und liegt in der Größenordnung des natürlichen Hintergrundes. Bei starken Staubereignissen, die vor allem im Süden Europas relativ häufig geschehen, kann aber aufgewirbelter Staub zur Überschreitung der EU-Grenzwerte beitragen.

Abschließend sollte noch auf den enormen Forschungsbedarf sowohl der Emissionsquellen, als auch der Emissionsprozesse und der Umsetzung in für Menschen gefährliche Schadstoffe hingewiesen werden. Wie bereits mehrfach erwähnt, ist die Entstehung organischer Sekundärpartikel noch äußerst ungewiss. Auch sind Aufwirbelungsprozesse über Freiflächen, aber auch über Äckern immer noch mit hoher Unsicherheit behaftet.

## 7. Bibliographie

**Alfaro, S.C., Gomes, L. (2001).** Modelling mineral aerosol production by wind erosion: emission intensities and aerosol distributions in source areas. *Journal of Geophysical Research* 106 (D16), 18075–18084.

**Andreae, M. (2007).** Aerosols Before Pollution. *Science (Washington) [Science (Wash.)]*. Vol. 315, no. 5808, pp. 50-51.

**Andreani-Aksoyoglu, S., J. Keller, A. S. H. Prévôt, U. Baltensperger, and J. Flemming (2008),** Secondary aerosols in Switzerland and northern Italy: Modeling and sensitivity studies for summer 2003, *J. Geophys. Res.*, 113, D06303, doi:10.1029/2007JD009053.

**Builtjes P. J. H., A. Bleeker, H. A. C. Denier van der Gon, M. Schaap, A. J. H. Visschedijk (2006).** Summary of the contribution of TNO to the UBA-project FKZ 202 43270, TNO-report 2006-A-R0241/B, TNO, The Netherlands.

**Builtjes, P., W. Jörß, W., R. Stern, J. Theloke (2010)** Strategien zur Verminderung der Feinstaubbelastung . PAREST-Endbericht, Schlussbericht an das Umweltbundesamt zum Forschungsvorhabens FKZ 206 43 200/01

**Carter, W. (1996).** Condensed atmospheric photooxidation mechanisms for isoprene, *Atmos. Environ.* 30 (1996) 4275-4290.

**Claiborn et al. (1998).** Regional measurements and modeling of windblown agricultural dust: The Columbia Plateau PM10 program. *J.G.R. VOL 103, D16, 19753-19767 .*

**Friedrich, R. (Ed.) (2008).** NATAIR – Improving and Applying Methods for the Calculation of Natural and Biogenic Emissions and Assessment of Impacts to the Air Quality, Publishable final report. <http://natair.ier.uni-stuttgart.de>.

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

**Gillette, D.A., Passi, R. (1988).** Modelling dust emission caused by wind erosion. *Journal of Geophysical Research* 93, 14233–14242.

**Guenther, A. B., P. R. Zimmerman, P. C. Harley, R. K. Monson and R. Fall (1993).** Isoprene and monoterpene rate variability: Model evaluations and sensitivity analyses, *J. Geophys. Res.*, 98, 11509 – 11517.

**Hildebrandt, L., Donahue, N. M., and Pandis, S. N. (2009).** High formation of secondary organic aerosol from the photo-oxidation of toluene, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2973-2986, doi:10.5194/acp-9-2973-2009.

, A., T. Kuhlbusch (2004). Ursachenanalyse von Feinstaub(PM10)-Immissionen in Berlin auf der Basis von Messungen der Staubinhaltsstoffe am Stadtrand, in der Innenstadt und in einer Straßenschlucht Bericht an die Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin.

**Jörß, W., Kugler, U., Theloke, J. (2010).** Emissionen im PAREST-Referenzszenario 2005-2020. Parest-Endbericht.

**Karl M., Guenther A., Köble R., Seufert G. (2008).** A new European plant-specific emission inventory of biogenic volatile organic compounds for use in atmospheric transport models. *Biogeosci. Discuss.* 5: 4993-5059.

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

**Kerschbaumer, A. (2007).** On the Aerosol Budget over Berlin. PhD-Thesis. [http://www.diss.fu-berlin.de/diss/receive/FUDISS\\_thesis\\_000000002895](http://www.diss.fu-berlin.de/diss/receive/FUDISS_thesis_000000002895)

**Köble, R. and Seufert, G. (2002).** Novel maps for forest tree species in Europe, in: Proceedings of the 8th European Symposium on the Physico-Chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants, edited by: Hjorth, J., Raes, F., and Angeletti, G., published on CDROM by The Institute of Environment and Sustainability, JRC of Ispra, DG Research, European Commission, Ispra, Italy, Paper TP 35, online available at: <http://ies.jrc.ec.europa.eu/Units/cc/events/torino2001/torinocd/>.

**Koeble, R. (2006).** Pan-European land cover/land use mosaic based on CORINE 2000 and GLOBAL LAND COVER 2000 data: report of NatAir project. <http://natair.ier.uni-stuttgart.de>.

**Korcz, M., J. Fudala, C. Klis. (2009).** Estimation of wind blown dust emissions in Europe and its vicinity Atmospheric Environment 43 1410–1420.

**Loosmore and Hunt (2000),** Dust resuspension without saltation (2000). J. Geophys. Res. Vol 105, D16, 20,663 ff, August 27, 2000

**Martcorena, B., Bergametti, G. (1995).** Modeling the atmospheric dust cycle: 1– design of a soil derived dust production scheme. Journal of Geophysical Research 100, 16415–16430.

**Martcorena, B., Bergametti, G., Gillette, D., Belnap, J. (1997).** Factors controlling threshold friction velocity in semiarid and arid areas of the United States. Journal of Geophysical Research 102, 23277–23287.

**Schell B., I. J. Ackermann, H. Hass, F. S. Binkowski, and A. Ebel, (2001),** Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, J. Geophys. Res., 106, 28275-28293.

**Simpson, D., A. Guenther, C. N. Hewitt, and R. Steinbrecher (1995).** Biogenic emissions in Europe, 1, Estimates and uncertainties, J. Geophys. Res., 100, 22875–22890.

**Simpson, D., W. Winiwarter, G. Börjesson, S. Cinderby, A. Ferreiro, A. Guenther, C.N. Hewitt, R. Janson, M.A.K. Khalil, S. Owen, T.E. Pierce, H. Puxbaum, M. Shearer, U. Skiba, R. Steinbrecher, L. Tarrasón and M.G. Öquist (1999).** Inventorying emissions from nature in Europe, *Journal of Geophysical Research* **104** (D7), pp. 8113–8152.

**Smiatek, G. (1998).** Mapping land-use for modelling biogenic and anthropogenic emissions. Proceedings of the EUROTRAC2 Symposium, Garmisch-Partenkirchen

**Steinbrecher, R., Smiatek, G., Köble, R., Seufert, G., Theloke, J., Hauff, K., Ciccioli, P., Vautard, R., Curci, G. (2009).** Intra- and inter-annual variability of VOC emissions from natural and semi-natural vegetation for Europe and neighbouring countries. Atmospheric Environment 43, 1380–1391.

**Stern, R. (2009).** Das chemische Transportmodell REM-Calgrid. Modellbeschreibung. <http://www.geo.fu-berlin.de/met/ag/trumf/RCG/RCG-Beschreibung.pdf>.

**Tilmes S., Brandt J., Flatoy F., Bergström R., Flemming J., Langner J., Christensen J.H., Frohn L.M., Hov O., Jacobson I., Reimer E., Stern R., Zimmermann J. (2002).**

Comparison of five eulerian air pollution forecasting systems for the Summer of 1999 using the german Ozone monitoring data. Journal of Atmospheric Chemistry, Vol. 42, pp. 91-121.

**Umweltamt, NRW (2010).** “Die Entstehung von bodennahem Ozon“, Ministerium für Umwelt und Naturschutz, Landwirtschaft und Verbraucherschutz des Landes Nordrhein-Westfalen.

## 8. **Abbildungsverzeichnis**

- Abbildung 1: Abschätzung der natürlichen (grüne Balken) und der anthropogenen Emissionsmengen für das Jahr 2000 (gelber Balken) im NATAIR-Gebiet und Projektionen für das Jahr 2010 unter Annahme der Umsetzung der laufenden Gesetze (dunkelgelber Balken) und unter Annahme der Durchführung aller technischen Möglichkeiten (brauner Balken) (aus Friedrich, 2008). ..... 12
- Abbildung 2: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) mit 13 Landnutzungsklassen, von denen 3 für Wälder (Nadelwald, Laubwald, Mischwald)..... 14
- Abbildung 3: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998), verknüpft mit Walddaten von Köble et al. (2002) mit Informationen über 115 Baumspesies..... 15
- Abbildung 4: Vergleich der biogenen Isopren-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995) ..... 16
- Abbildung 5: Vergleich der biogenen Terpen-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995) ..... 17
- Abbildung 6: Vergleich der biogenen Terpen-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995), hellgrüne Balken: Köble-Bauminformationen (2002) und Simpson et al. (1999)-Methode zur Berechnung der Monoterpen-Emissionen, die aus der alleinigen Strahlungsabhängigkeit herrühren, dunkelgrüne Balken: Köble-Bauminformationen (2002) und Simpson et al. (1999)-Methode zur Berechnung der Monoterpen-Emissionen, die aus der alleinigen Biomassenabhängigkeit herrühren (Summe der grünen Balken = blauer Balken)..... 18
- Abbildung 7: Vergleich der biogenen NO-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995) ..... 19
- Abbildung 8: Vergleich der biogenen „OVOC“-Emissionen auf Länderebene in [kTonnen/Jahr]. Blaue Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Köble et al. (2002) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1999); rote Balken: Landnutzungsdatenbasis nach Smiatek (1998) und Emissionsfaktoren nach Simpson et al. (1995) ..... 20
- Abbildung 9: Vergleich der durch die verschiedenen Berechnungsarten erhaltenen biogenen VOC im RCG-Gebiet in kg/Jahr: OLE = Olefine Verbindungen, PAR = paraffine Verbindungen, ISOP = Isoprene, ALD2 = Aldehyde, NO = Stickstoffmonoxid aus Naturböden, TERP = Terpene (die Abkürzungen entsprechen dem CBIV-Mechanismus (Gery et al., 1995)). NATAIR: Emissionen aus dem

NATAIR-Projekt, RCG_SIM95: Emissionen aus der Smiatek-Datenbasis nach der Methode beschrieben in Simpson et al. (1995). RCG_SIM99: Emissionen aus der Köble et al.-Datenbasis nach der Methode beschrieben in Simpson et al. (1999)....	21
Abbildung 10: Biogene VOC-Emissionen aus Vegetation in Europa für das Jahr 2000 (aus Steinbrecher et al., 2009, Seite 1385).....	22
Abbildung 11: Jahresmittelwert der Ozonkonzentrationen, simuliert mit RCG für das meteorologische Jahr 2005. Biogene VOC-Emissionen aus Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1995 (links) und aus Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1999.....	24
Abbildung 12: Differenz der simulierten Ozonjahresmittelwerte in % zwischen RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1995 und RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1999.....	25
Abbildung 13: Jahresmittelwert der Ozonkonzentrationen, simuliert mit RCG für das meteorologische Jahr 2005 ohne biogene VOC-Emissionen.....	27
Abbildung 14: Differenz der simulierten Ozonjahresmittelwerte in % zwischen RCG-Referenzlauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1995 und RCG-Lauf ohne biogene Emissionen (links) und zwischen der simulierten Ozonjahresmittelwerte in % zwischen RCG-Referenzlauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach Simpson et al., 1999 und RCG-Lauf ohne biogene Emissionen (rechts). ....	27
Abbildung 15: Ozon Jahresmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). ....	28
Abbildung 16: Prozentuale Änderung der Ozonjahresmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). ....	28
Abbildung 17: Ozon Wintermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). ....	30
Abbildung 18: Prozentuale Änderung der Ozon-Wintermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). ....	30
Abbildung 19: Ozon Frühlingsmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). ....	30
Abbildung 20: Prozentuale Änderung der Ozon-Frühlingsmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs.	

115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	30
Abbildung 21: Ozon Sommermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	31
Abbildung 22: Prozentuale Änderung der Ozon-Sommermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Sim_99) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	31
Abbildung 23: Ozon Herbstmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte – RCG-Sim_99) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	31
Abbildung 24: Prozentuale Änderung der Ozon-Herbstmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard vs. RCG-Sim_99), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte – RCG-Standard vs RCG-NATAIR) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts – RCG-Sim_99 vs. RCG-NATAIR). .....	31
Abbildung 25: SOA Jahresmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	32
Abbildung 26: Prozentuale Änderung der SOA-Jahresmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	32
Abbildung 27: SOA Wintermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	34
Abbildung 28: Prozentuale Änderung der SOA-Wintermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	34
Abbildung 29: SOA Frühlingmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	34
Abbildung 30: Prozentuale Änderung der SOA-Frühlingmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	34
Abbildung 31: SOA Sommermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links	

– RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	35
Abbildung 32: Prozentuale Änderung der SOA-Sommermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).....	35
Abbildung 33: SOA Herbstmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	35
Abbildung 34: Prozentuale Änderung der SOA-Herbstmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).....	35
Abbildung 35: PM10 Jahresmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogene Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links – RCG-Standard), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	36
Abbildung 36: Prozentuale Änderung der PM10-Jahresmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links – RCG-Standard vs. RCG-Sim_99), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte - RCG-Standard vs. RCG-NATAIR ) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	37
Abbildung 37: PM10 Wintermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	38
Abbildung 38: Prozentuale Änderung der PM10-Wintermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	38
Abbildung 39 PM10 Frühlingmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	38
Abbildung 40: Prozentuale Änderung der PM10-Frühlingmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).....	38
Abbildung 41: PM10 Sommermittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	39
Abbildung 42: Prozentuale Änderung der PM10-Sommermittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts).....	39

Abbildung 43: PM10 Herbstmittelwerte 2003 simuliert mit RCG: biogenen Emissionsschätzungen aus Wäldern, durchgeführt anhand von 6 Baumklassen (links), von 115 Baumklassen (Mitte) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	39
Abbildung 44: Prozentuale Änderung der PM10-Herbstmittelwerte mit unterschiedlichen biogenen VOC-Waldemissionsschätzungen: „6 Baumklassen vs. 115 Baumklassen“ (links), „6 Baumklassen vs. NATAIR-Projekt“ (Mitte) und „115 Baumklassen vs. NATAIR“ (rechts). .....	39
Abbildung 45: Ozon-Verlauf vom 20. Juli 2005 0 Uhr bis 30. Juli 2005 0 Uhr, gemessen und modelliert für den EMEP-Standort ES13 in Südspanien. Blaue Punkte: Beobachtungen; rote durchgehende Linie: RCG-Simulation mit VOC-Emissionen aus Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis und der Methode beschrieben in Simpson et al. (1999); grüne durchbrochene Linie: RCG-Simulation mit VOC-Emissionen aus Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis und der Methode beschrieben in Simpson et al. (1995). .....	41
Abbildung 46: Simulierte Ozonänderung [%] aufgrund unterschiedlicher biogener VOC-Emissionsschätzungen: RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt mit der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode minus RCG-Lauf mit biogenen VOC-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt mit der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode. ....	42
Abbildung 47: Simulierte mittlere SOA-Konzentration vom 20. 7. 2005, 0 Uhr bis 30.7.2005, 0 Uhr. Biogenen VOC: links:-Emissionen aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methodik und rechts: Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, abgeschätzt nach der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methodik .....	43
Abbildung 48: Anteil der berechneten biogenen sekundären Aerosolpartikel an den gesamten sekundären organischen Aerosolen in [%]. Biogene VOC-Emissionen wurden aus der Smiatek (1998) – Landnutzungsdatenbasis anhand der in Simpson et al. (1995) beschriebenen Methode berechnet (links). Rechts: Biogene VOC-Emissionen wurden aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis anhand der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode berechnet. ....	43
Abbildung 49: Europakarte. Das Viereck in Spanien zeigt das Gebiet, für welches die Produktions- und Verlustterme der Ozonkonzentrationen stündlich berechnet worden sind. ....	44
Abbildung 50: simulierte stündliche Ozon- Produktion (positive) und Abbau (negative) [ $10^6$ kg / Box]. Rote durchgehende Linie: biogene VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, berechnet nach der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode. Simulationszeitraum: 20.7.2005, 0 Uhr bis 30.7.2005, 0 Uhr. ....	45
Abbildung 51: simulierte stündliche Biogenen Sekundäre Aerosol- Produktion (positive) und Abbau (negative) [ $10^3$ kg / Box]. Rote durchgehende Linie: biogene VOC-Emissionen aus der Köble et al. (2002) – Landnutzungsdatenbasis, berechnet nach der in Simpson et al. (1999) beschriebenen Methode. Simulationszeitraum: 20.7.2005, 0 Uhr bis 30.7.2005, 0 Uhr. ....	45

Abbildung 52: Schematische Abbildung der zwei wichtigsten Prozesse, die die Staubaufwirbelung steuern. Saltation und Suspension. ....	48
Abbildung 53: Emissionsfluss [Gg/100km <sup>2</sup> yr] im NATAIR-Gebiet: Staubaufwirbelung aus dem NATAIR-Projekt im Größenbereich bis 10µm. (aus Korcz et al., 2009, Fig. 4) .....	49
Abbildung 54: Emissionsfluss [Gg/100km <sup>2</sup> yr] im RCG-Gebiet: Staubaufwirbelung aus dem NATAIR-Projekt im Größenbereich bis 10µm.....	50
Abbildung 55: Emissionsfluss [Gg/100km <sup>2</sup> yr] im RCG-Gebiet: Staubaufwirbelung, berechnet mit der in RCG implementierten Methode, im Größenbereich bis 10µm (links) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts).....	51
Abbildung 56: Verhältnis zwischen Emissionsflüssen aus Staubaufwirbelung, berechnet im NatAir-Projekt und mit RCG.....	52
Abbildung 57: Zeitlicher Verlauf der Staubaufwirbelungsflüsse in Ostdeutschland (von 10° Ost bis 15° Ost und von 51° Nord bis 54° Nord) in kg/Zelle. Auflösung 0.5°x0.25° berechnet mit RCG (links) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). Zeitspanne: 1.1.2003 – 31.12.2003.....	52
Abbildung 58 Zeitlicher Verlauf der Staubaufwirbelungsflüsse in Ostdeutschland (von 10° Ost bis 15° Ost und von 51° Nord bis 54° Nord) in kg/Zelle. Auflösung 0.5°x0.25° aus dem NATAIR-Projekt. Zeitspanne: 1.1.2003 – 31.12.2003. y-Achsenobergrenze: 200 Mg/Zelle (links) und ohne obere y-Achsenlimitierung für die Zeitspanne: 20.12.2003 – 22.12.2003.....	53
Abbildung 59: Monatssummen an Staubaufwirbelungsflüssen in [Gg/Monat] im RCG-Gebiet: Blau: aus dem NATAIR-Projekt, Rot: mit RCG berechnet.....	54
Abbildung 60: Monatssummen an Staubaufwirbelungsflüssen in Tonnen/Monat [Mg/Monat] (linke y-Achse) in Deutschland: Blau: feine Fraktion [< 2.5 µm] und rot: grobe Fraktion [2.5 µm – 10 µm]. Grüne Linie: Verhältnis Grobfraktion zu Feinfraktion (rechte y-Achse).....	54
Abbildung 61: RCG-Rechnung. Jahresmittel 2003 Mineralstaub in der feinen (links) und in der groben (rechts) Fraktion. Staubaufwirbelungsfluss aus RCG-Standard.....	55
Abbildung 62: RCG-Rechnung. Jahresmittel 2003 Mineralstaub im PM10. Staubaufwirbelungsfluss aus RCG-Standard (links) und aus NATAIR (rechts).....	56
Abbildung 63: Berechnete Gesamt-PM10-Jahresmittelwerte in µg/m <sup>3</sup> . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.....	56
Abbildung 64: Berechnete Gesamt-PM10-Wintermittelwerte in µg/m <sup>3</sup> . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.....	58
Abbildung 65: Berechnete Gesamt-PM10-Frühlingsmittelwerte in µg/m <sup>3</sup> . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.....	58
Abbildung 66: Berechnete Gesamt-PM10-Sommermittelwerte in µg/m <sup>3</sup> . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt	

(Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.....	58
Abbildung 67: Berechnete Gesamt-PM10-Herbstmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Staubaufwirbelungsflüsse berechnet mit RCG (links), aus dem NatAir-Projekt (Mitte) und prozentuale PM10-Änderung aufgrund der unterschiedlichen Aufwirbelungswerten.....	58
Abbildung 68: RCG-Rechnung. Stündliche Zeitreihe 2003 für Ostdeutschland [10° Ost – 15° Ost, 51° Nord – 54° Nord] Mineralstaub im PM10 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]. Staubaufwirbelungsfluss berechnet mit RCG (links) und aus dem NATAIR-Projekt (rechts). .....	59
Abbildung 69: RCG-Rechnung. Stündliche Zeitreihe 1.12.2003 – 31.12.2003 für Ostdeutschland [10° Ost – 15° Ost, 51° Nord – 54° Nord] Mineralstaub im PM10 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]. Staubaufwirbelungsfluss aus dem NATAIR-Projekt. ....	60
Abbildung 70: Anthropogene Emissionen (graue Balken) und biogene Emissionen (schwarze Kreuze). Die Länge der Vertikalachse im schwarzen Kreuz gibt die Unsicherheit der biogenen Emissionen wieder (aus Friedrich, 2008). .....	61

## **9. Tabellenverzeichnis**

Tabelle 1: Landnutzungs- und Baumklassen, Biomassen und Emissionskoeffizienten nach Simpson et al. 1999.....	6
Tabelle 2: Zuweisung der in Simpson et al. (1999) aufgelisteten Baumklassen zu den in Köble et al. (2002) genannten Bäumen, bzw. zu den in Smiatek (1998) Landnutzungsklassen für Wälder: 4 = laubabwerfend, 5 = zapfentragend und 6 = Mischwald.....	8
Tabelle 3: Prozentuale Waldbestände in den europäischen Ländern nach Simpson et al., 1999.....	9