

TEXTE

99/2022

# Untersuchung der Herkunft des grenzüberschreitenden Feinstaubtransportes im Osten Deutschlands mit einem Chemie- Transportmodell



TEXTE 99/2022

Umweltforschungsplan des Bundesministeriums für Umwelt,  
Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz

Forschungskennzahl 3716 51 203 0  
FB000102

## **Untersuchung der Herkunft des grenzüberschreitenden Feinstaubtransportes im Osten Deutschlands mit einem Chemie- Transportmodell**

von

Martijn Schaap, Richard Kranenburg, Carlijn Hendriks, Renske  
Timmermans  
TNO, Utrecht, Niederlande

Markus Thürkow, Ingo Kirchner  
Freie Universität Berlin, Berlin


Dominik van Pinxteren, Hartmut Herrmann  
TROPOS, Leipzig

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

# Impressum

**Herausgeber:**

Umweltbundesamt  
Wörlitzer Platz 1  
06844 Dessau-Roßlau  
Tel: +49 340-2103-0  
Fax: +49 340-2103-2285  
buergerservice@uba.de  
Internet: www.umweltbundesamt.de

 /umweltbundesamt.de

 /umweltbundesamt

**Durchführung der Studie:**

TNO  
Princetonlaan 6  
3584 CB Utrecht  
Niederlande

**Abschlussdatum:**

März 2019

**Redaktion:**

Fachgebiet II 4.1 – Grundsatzfragen der Luftreinhaltung  
Dr. Marcel Langner

Publikationen als pdf:

<http://www.umweltbundesamt.de/publikationen>

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, September 2022

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autorinnen und Autoren.

## Kurzbeschreibung

Überschreitungen von Luftqualitätsgrenzwerten von Feinstaub (PM<sub>10</sub>) im Osten Deutschlands treten meist an Tagen mit kalten und stabilen Wetterlagen im Winter auf und sind oft verbunden mit dem Transport von belasteter Luft aus Polen und anderen osteuropäischen Ländern. Im Rahmen dieses Projekts wurde eine Studie zur Quellzuordnung durchgeführt, um den Beitrag des grenzüberschreitenden Transports aus unterschiedlichen Emissionsquellen an der erhöhten Feinstaubkonzentration im Osten Deutschlands zu bewerten. Die Studie wurde mit dem Chemie-Transportmodell LOTOS-EUROS und der darin implementierten Labelling-Technik zur Quellzuordnung durchgeführt. Die Ergebnisse wurden mit den PM<sub>10</sub>-Beobachtungen der PM-Ost-Kampagne und den Ergebnissen der darin durchgeführten messbasierten Quellzuordnung verglichen. Um die Qualität des Modells im Hinblick auf die Simulation von Episoden mit hoher PM Konzentration im Winter zu verbessern, wurden in der ersten Phase des Projekts Verbesserungen der Hausbrand- Emissionen und deren zeitlicher Variabilität vorgenommen. Zusätzlich wurde eine Optimierung der vom meteorologischen Modell COSMO simulierten Mischungsschichthöhen über Sensitivitätsläufe angestrebt.

Die Ergebnisse zeigen, dass der Hausbrand und die Landwirtschaft die dominierenden Faktoren für erhöhte PM<sub>10</sub>-Konzentrationen im Osten Deutschlands bei kalten und stabilen Wetterbedingungen sind. Für städtische Stationen ist auch der Verkehrsbeitrag von Bedeutung. Im Durchschnitt stammt der größte Feinstaubbeitrag aus Deutschland. Bei höheren PM-Konzentrationen übersteigt der grenzüberschreitende Beitrag Polens und anderer osteuropäischer Länder denjenigen Deutschlands selbst. Die dominierenden Quellen dieses über große Distanzen transportierten Feinstaubs sind Hausbrand und Landwirtschaft. Der Vergleich der modellbasierten Quellzuordnung aus den LOTOS-EUROS-Ergebnissen mit den auf Messungen basierenden Ergebnissen aus dem PM-Ost-Projekt zeigt eine gute Übereinstimmung für Ammoniumnitrat- und Verbrennungsquellen. Für den verkehrsbedingten Beitrag sind größere Unterschiede zu erkennen, die auf die zeitliche Variabilität der Emissionen, die Auflösung des LOTOS-EUROS-Modells, die Unterschätzung der Aufwirbelung und den Reifen- und Bremsenabrieb zurückzuführen sind. Die PM<sub>10</sub> Gesamtkonzentrationen aus dem LOTOS-EUROS Modell sind in der Regel niedriger als die gemessenen Werte, was auf nicht erfasste Quellen oder Prozesse im Modell zurückgeführt werden kann. Die Korrelation des nicht modellierten PM<sub>10</sub> Anteils mit den PMF-Quellen legt nahe, dass neben einer Unterschätzung der vertikalen Mischung, der Ausschluss der SOA-Bildung in LOTOS-EUROS und eine Unterschätzung der Sulfat-Bildung wahrscheinliche Gründe für die PM<sub>10</sub>-Unterschätzung sind.

## Abstract

In the Eastern part of Germany exceedances of particulate matter (PM) limit values often take place during cold and stable weather conditions in Winter with inflow of polluted air from Poland and other countries in Eastern Europe. Within this project we have performed a source apportionment study to assess the contribution of transboundary transport and different source sectors to elevated levels of PM<sub>10</sub> concentrations in the Eastern part of Germany. The study is performed with the chemistry transport model LOTOS-EUROS and its labelling source apportionment module. Results have been compared to speciated PM<sub>10</sub> observations from the PM-Ost campaign and the measurement based source apportionment carried out in PM-Ost. To improve the performance of the model simulation for the episodes with high PM concentrations in winter we have in the first stage of the project implemented improvements in the residential combustion emissions and their timing. In addition, an optimisation of the boundary layer height has been investigated via sensitivity runs with the meteorological model COSMO, but showed only limited changes.

It is found that residential combustion and agriculture are the dominant contributors to elevated PM10 concentrations in Eastern Germany during cold and stable weather conditions. For urban stations the traffic contribution is also significant. On average the largest contribution to the PM10 levels comes from Germany itself. However, at PM levels above  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  the contribution from transboundary transport exceeds the local contribution. The dominant sources in this transboundary transport are residential combustion and agriculture. Comparison of the results with the PMF results shows good agreements for ammonium nitrate and combustion sources. For the traffic contribution the comparison shows larger differences attributed to the temporal variability of the emissions, the resolution of the LOTOS-EUROS model, underestimation of traffic resuspension and tyre and break wear. The PM10 total concentrations from the LOTOS-EUROS model are typically lower than the measured values, which can be attributed to unrecognized sources or processes in the model. Correlating the non-modelled PM10 part with the PMF sources suggests that besides an underestimation of vertical mixing the exclusion of SOA formation in LOTOS-EUROS and enhanced formation of sulphate in polluted conditions, are probable reasons for the remaining PM10 underestimation.

## Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis .....	8
Tabellenverzeichnis .....	11
Abkürzungsverzeichnis .....	12
Zusammenfassung.....	13
Summary.....	19
1 Einleitung .....	24
1.1 Hintergrund.....	24
1.2 Quellzuordnung .....	25
1.3 Forschungsziele.....	27
1.4 Berichtsstruktur .....	27
2 Methodik .....	28
2.1 Modellbeschreibung .....	28
2.2 Modellaufbau.....	29
2.2.1 Meteorologie.....	29
2.2.2 Emissionen .....	29
2.2.3 Randbedingungen .....	29
2.2.4 Modelldomänen und räumliche Auflösung .....	29
2.3 Einrichtung der Quellzuordnung.....	30
2.4 PM-Ost Messdaten .....	32
3 Modelloptimierung.....	34
3.1 Ziele.....	34
3.2 Stabilität über Schneeflächen.....	34
3.3 Wissenschaftlich fundierte Emissionen aus der Holzverbrennung im Privathaushalt .....	34
3.4 Zeitliche Variabilität der Emissionen von Privathaushaltheizungen .....	35
3.5 Ergebnisse .....	35
3.6 Diskussion .....	40
3.7 Schlussfolgerungen .....	43
4 Optimierung der meteorologischen Eingangsdaten .....	44
5 Simulationen der Quellaufteilung für die PM-Ost-Kampagne.....	48
5.1 Ergebnisse.....	48
5.2 Schlussfolgerungen.....	58
6 Rezeptormodellierung mittels Positiver Matrixfaktorisierung.....	59
7 Vergleich von rezeptororientierter PMF- und quellorientierter CTM-Modellierung.....	62

7.1	Quellbeiträge durch Ammoniumnitrat .....	63
7.2	Quellbeiträge durch Verkehr .....	64
7.3	Quellbeiträge durch Verbrennung.....	67
7.4	Nicht modellierte PM-Masse .....	71
8	Diskussion .....	73
9	Quellenverzeichnis.....	75



## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Ursprung der PM10-Belastung des Berliner Raums. Rote und violette Gebiete: möglicher hoher Beitrag der dort existierenden Quellen an der Belastung; türkise Gebiete: mittlerer Beitrag; gelbe Gebiete: geringer Beitrag.....	25
Abbildung 2:	Überblick über die PM-Ost Messstationen. Der Farbcode gibt die Klassifizierung der Station als Verkehrsstation (rot), städtische Hintergrundstation (blau) oder ländliche Hintergrundstation (grün) wieder. Quelle der Karte: <a href="http://openstreetmap.org">openstreetmap.org</a> . ....	33
Abbildung 3:	Zeitreihen von modelliertem Gesamtkohlenstoff (EC+OC) (oberes Diagramm) und PM 10 (unteres Diagramm) am Standort Niesky aus den verschiedenen Modellsimulationen gegenüber stündlichen Beobachtungen aus der PM-Ost-Kampagne für September 2016 - März 2017. Grün: Basislauf, blau: inkl. Schneeanpassung, violett: inkl. Schneeanpassung und neue Emissionen (RWC=residential wood combustion), rosa: inkl. Schneeanpassung und neue Variabilitätsemissionen, gelb: inkl. aller drei Modellanpassungen ....	36
Abbildung 4:	Abweichung zwischen Modellläufen (Basislauf und Endgültiger Modelllauf mit allen drei Anpassungen) und PM-Ost-Kampagne Beobachtungen, pro Station und Durchschnitt über alle Stationen (ALL), oder über alle Hintergrundstationen (ALL-BG).....	39
Abbildung 5:	RMSE zwischen Modellläufen (Basislauf und endgültiger Modelllauf mit allen drei Anpassungen) und PM-Ost-Kampagne Beobachtungen, pro Station und Durchschnitt über alle Stationen (ALL), oder über alle Hintergrundstationen (ALL-BG). ....	39
Abbildung 6:	Zeitliche Korrelation zwischen Modellläufen (Basislauf und Endgültiger Modelllauf mit allen drei Anpassungen) und PM Ost Beobachtungen, pro Station und Durchschnitt über alle Stationen (ALL), oder über alle Hintergrundstationen (ALL-BG).....	40
Abbildung 7:	Modellierte EC-, OC- und SO <sub>4</sub> -Konzentrationen aus dem Lauf mit allen drei Anpassungen im Vergleich zu den Beobachtungswerten an der Station Melpitz.....	42
Abbildung 8:	Vergleich der COSMO Grenzschichthöhe und Grenzschichthöhe von Radiosonde Daten in Lindenberg. ....	46
Abbildung 9:	Streudiagramme von Schadstoffkonzentrationen der Simulationen mit COSMO-Meteorologie und ECMWF-Meteorologie gegenüber der Beobachtung für Melpitz. Oben links: Sulfat, oben rechts: Gesamtkohlenstoff und unten links: PM10. ....	46
Abbildung 10:	Zeitreihen der PM10-Masse in Melpitz (oben) und Niesky (unten) sowie Beiträge aus Deutschland, Polen und anderen Ländern. D2-Domäne. ....	49
Abbildung 11:	Länderbeiträge in verschiedenen modellierten PM10 Konzentrationsbereichen für Melpitz, September 2016 bis März 2017. ....	50

Abbildung 12:	Länderbeiträge für alle PM Ost-Stationen zu allen modellierten PM10- (oben links) und PM 2.5-Konzentrationen (oben rechts) und zu allen beobachteten PM10-Konzentrationen über $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (unten links) und allen beobachteten PM2.5-Konzentrationen über $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (unten rechts) im September 2016 bis März 2017 für den Lauf auf D1-Domäne. ....	52
Abbildung 13:	Länderbeiträge für alle Stationen auf einem Transekt von Westdeutschland nach Ostpolen (oberes Diagramm) zu allen modellierten PM10-Konzentrationen (mittleres Diagramm) und zu allen beobachteten PM10-Konzentrationen über $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (unteres Diagramm) zwischen September 2016 und März 2017. ....	53
Abbildung 14:	Zeitreihen der PM10-Masse in Melpitz (oben) und Niesky (unten) und Beiträge aus verschiedenen Quellsektoren. ....	54
Abbildung 15:	Sektorbeiträge in verschiedenen PM10 Konzentrationsbereichen für Melpitz für September 2016 bis März 2017. ....	55
Abbildung 16:	Sektor Beiträge für alle PM-Ost Stationen zu allen modellierten PM10 (oben links) und PM 2.5 (oben rechts) Konzentrationen und zu allen beobachteten PM10 Konzentrationen über $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (unten links) und allen beobachteten PM2.5 Konzentrationen über $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (unten rechts) zwischen September 2016 und März 2017. ....	56
Abbildung 17:	Sektorale Beiträge für alle PM Ost-Stationen zu allen beobachteten PM10-Konzentrationen über $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zwischen September 2016 und März 2017 für den COSMO D2 (linkes Diagramm) und zwischen Dezember 2016 und Februar 2017 für den COSMO D3 (rechtes Diagramm). ....	57
Abbildung 18:	Länder- und Sektorbeiträge in Abhängigkeit von der modellierten Konzentrationsbox für Melpitz für September 2016 bis März 2017. Verwendung von ECMWF (linke Diagramm) oder COSMO-Meteorologie (rechte Diagramm). ....	57
Abbildung 19:	Mittlere Quellbeiträge zu PM10 für A) PMF Stufe 1 (alle Messtage, Inhaltsstoffe Ionen und OC/EC), B) PMF Stufe 4 (Sondermesstage, + PAK, + Levoglucosan) und C) PMF Stufe 5 (Sondermesstage, + Metalle). Die schwarzen Zahlen geben die mittlere PM10 Massekonzentration in $\mu\text{g m}^{-3}$ an, die weißen Zahlen stellen den prozentualen Quellbeitrag dar. ....	61
Abbildung 20:	Vergleich der Quellkategorie „Ammoniumnitrat“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE. ....	63
Abbildung 21:	Vergleich der Quellkategorie „Verkehr“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE. ....	65

Abbildung 22:	Vergleich der Quellkategorie „Verkehr (Aufwirbelung)“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.....	66
Abbildung 23:	Vergleich der Quellkategorie „Verkehr (Abrieb)“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.....	66
Abbildung 24:	Vergleich der Quellkategorie „Verbrennung“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.....	68
Abbildung 25:	Vergleich der Quellkategorie „Verbrennung (Biomasse)“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.....	69
Abbildung 26:	Vergleich der Quellkategorie „Verbrennung (Kohle)“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.....	70
Abbildung 27:	Übersicht über nicht modellierte PM-Masse, d.h. Differenz zwischen gemessener und mit LOTOS-EUROS modellierter PM10 Konzentration. A) Konzentrations-Zeitreihen der nicht modellierten Masse an allen Stationen, B) mittlere nicht modellierte Masse im Untersuchungszeitraum, C) Korrelationskoeffizienten (nach Pearson) der nicht modellierten Masse mit PMF Quellbeiträgen an Verkehrsstation BEFRA, D) Korrelationskoeffizienten der nicht modellierten Masse mit PMF Quellbeiträgen an den ländlichen Hintergrundstationen (ohne SNBRO). ....	71

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Übersicht über die endgültigen Quellzuordnungsläufe, die im Projekt durchgeführt wurden, mit ihren Einstellungen. ....	30
Tabelle 2:	Übersicht über die 35 Kennzeichnungen, die für die Zuordnung von Quellen zu europäischen Ländern verwendet werden. ....	31
Tabelle 3:	Übersicht über die Kennzeichnungen zur Zuordnung von Quellen....	32
Tabelle 4:	Messstationen des PM-Ost Projektes.....	33
Tabelle 5:	Statistik aller Hintergrundstationen .....	40
Tabelle 6:	Übersicht über die Sektor- und Länderbeiträge, gemittelt über alle Hintergrund PM Ost Stationen (minus Brockau) für Episoden (mit beobachteten PM10-Konzentrationen über 40 µg/m <sup>3</sup> ). ....	58
Tabelle 8:	Mittels PMF identifizierte PM10 Quellkategorien.....	59
Tabelle 9:	Quellkategorien für den Modellvergleich.....	62

## Abkürzungsverzeichnis

<b>BC</b>	Black Carbon (schwarzer Kohlenstoff)
<b>C-IFS</b>	Integrated Forecasting System – including chemistry
<b>CAMS</b>	Copernicus Atmospheric Monitoring Service
<b>COSMO</b>	Consortium for Small-scale Modeling
<b>CTM</b>	Chemistry transport model
<b>EC</b>	Elemental Carbon (elementarer Kohlenstoff)
<b>ECMWF</b>	European Centre for Medium-range Weather Forecasts
<b>C-IFS</b>	Integrated Forecasting System – including chemistry
<b>GRETA</b>	Gridding Emission Tool for ArcGIS
<b>HDD</b>	Heating Degree Day (Heizgradtage)
<b>LOTOS-EU-ROS</b>	Long Term Ozone Simulation (LOTOS) European Operational Smog (EUROS).
<b>PM</b>	Particulate Matter (Feinstaub)
<b>PM2.5</b>	Feinstaub mit einem aerodynamischen Durchmesser von weniger als 2,5 µm
<b>PM10</b>	Feinstaub mit einem aerodynamischen Durchmesser von weniger als 10 µm
<b>PMF</b>	Positive Matrix Faktorisierung
<b>TC</b>	Total Carbon (Gesamtkohlenstoff)
<b>TKE</b>	Turbulente Kinetische Energie

## Zusammenfassung

Die Luftverschmutzung verursacht jährlich etwa 3 Millionen vorzeitige Todesfälle (WHO, 2016). Angenommen wird, dass Feinstaub (engl. Particulate matter, PM) als der wichtigste Luftschadstoff für gesundheitliche Auswirkungen angesehen werden kann. In Deutschland werden PM rund 62.000 vorzeitige Todesfälle zugeschrieben (EEA, 2018). Zum Schutz der menschlichen Gesundheit sind in der EU-Luftqualitätsrichtlinie 2008/50/EG und der deutschen Umsetzung in der 39.BImSchV, Grenzwerte für den Jahres- und Tagesdurchschnitt von PM<sub>10</sub> festgelegt. Innerhalb dieser Richtlinien wird auch der Beitrag des grenzüberschreitenden Transports zur Überschreitung von Grenzwerten thematisiert. Im Falle eines erhöhten Beitrages des grenzüberschreitenden Transportes, sollten durch Zusammenarbeit ggf. gemeinsame Maßnahmen zur Verringerung der Schadstoffbelastung gefunden werden. Überschreitungen von Grenzwerten im Osten Deutschlands treten meist an Tagen mit kalten und stabilen Wetterlagen auf und sind oft verbunden mit dem Transport von belasteter Luft aus Polen und weiter (süd)östlich von Deutschland gelegenen Ländern. Diese Luftverunreinigungen können in Verbindung mit der lokalen Luftverschmutzung in der niedrigen Grenzschicht zu hohen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen und damit zu Überschreitungen von Grenzwerten führen.

Im Rahmen dieses Projekts wurde eine Studie zur Quellzuordnung durchgeführt, um den Beitrag des grenzüberschreitenden Transports an den erhöhten PM<sub>10</sub>-Werten im Osten Deutschlands zu bewerten. Für dieses Projekt wurden die folgenden Forschungsziele festgelegt:

- ▶ Quantifizierung des Beitrags des grenzüberschreitenden Transports zu den PM<sub>10</sub>-Konzentrationen in Ostdeutschland während Episoden mit Überschreitungen des Tagesgrenzwertes mittels Modellrechnungen mit Fokus auf Beiträge aus Deutschland, Polen und anderen Nachbarländern
- ▶ Verbesserung der Modellierung von PM<sub>10</sub> Episoden mit östlichen Windrichtungen durch Optimierung der simulierten Grenzschichthöhen und verwendeten Emissionsinformationen
- ▶ Auswertung der modellbasierten Quellzuordnung anhand und Vergleich mit den Ergebnissen eines Rezeptormodells für mehrere Standorte im Osten Deutschlands
- ▶ Identifizierung der Methoden und Quellbeiträge mit der geringsten Unsicherheit und Bereitstellung von Verbesserungsvorschlägen auf der Grundlage des Vergleichs von modellierten und empirischen Daten

Die Studie wird mit dem Chemietransportmodell (CTM) LOTOS-EUROS und einem Modul zur Quellzuordnung auf Basis der Kennzeichnungstechnik (Labeling) durchgeführt. Der Untersuchungszeitraum umfasst die Monate September 2016 bis März 2017, die mit einer Messkampagne von PM<sub>10</sub>-Beobachtungen (PM-Ost (van Pinxteren et al., 2017)) einhergehen. Charakterisiert ist der Zeitraum durch kalte Temperaturen, Ostwinde und erhöhte PM<sub>10</sub>-Werte in Ostdeutschland von Ende Januar bis Anfang Februar. Im Rahmen der PM-Ost-Kampagne wurden detaillierte Informationen zur PM<sub>10</sub>-Zusammensetzung durch Filterprobenahme und chemische Analyse an 10 Standorten im Osten Deutschlands gewonnen. Auf der Grundlage dieser Beobachtungen führte das PM-Ost-Projekt eine experimentelle Quellzuordnung mittels Positiver Matrixfaktorisierung (PMF) durch. Die PM-OST Messungen und Ergebnisse der Quellzuordnung wurden in dieser Studie verwendet, um die Qualität der Quellzuordnung der LOTOS-EUROS Ergebnisse zu bewerten.

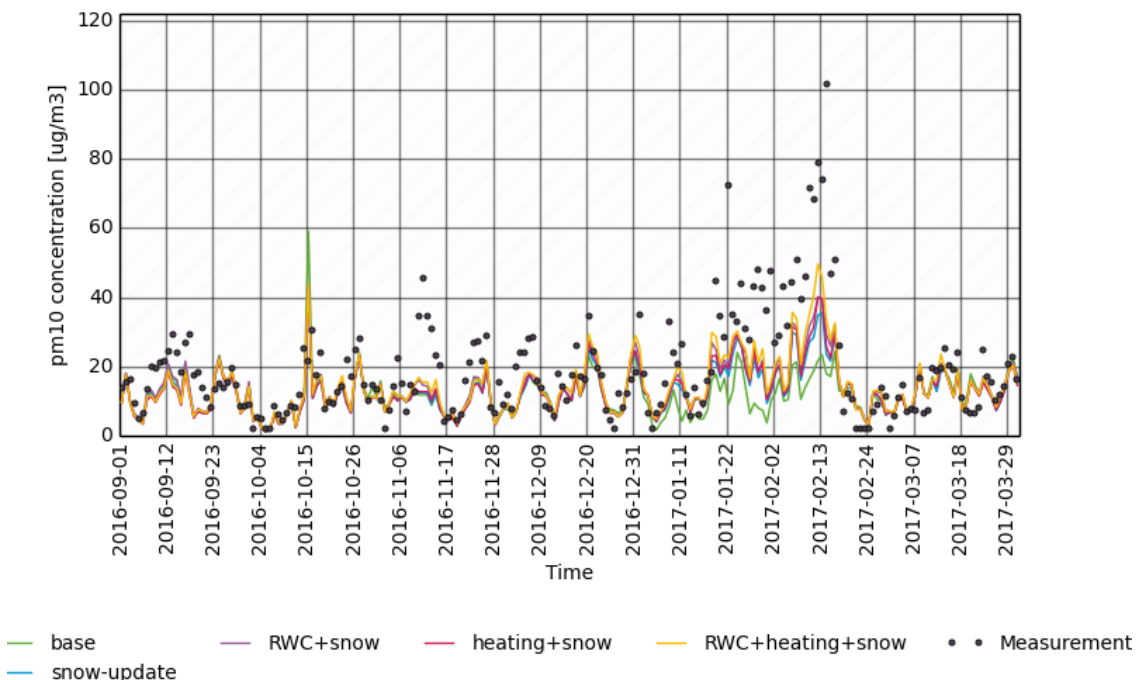
Wie viele andere CTM hat auch LOTOS-EUROS Schwierigkeiten, die hohen Schadstoffkonzentrationen bei Kälte und stabilen Wetterbedingungen im Winter zu reproduzieren. Bereits Stern et al. (2008) zeigte, dass Modelle Probleme bei der Modellierung ähnlicher meteorologischer Bedingungen haben. Darüber hinaus sind Emissionen der Holzverbrennung in Haushalten und deren Einfluss auf die PM-Konzentration bei Kälteepisoden in den Modellen nur unzureichend dargestellt. Dies wird durch die

Tatsache gestützt, dass insbesondere elementarer Kohlenstoff (EC) und organischer Kohlenstoff (OC) einen großen Fehler zwischen Modell und beobachteten Konzentrationen aufweisen. Um die Qualität des Modells im Hinblick auf hohe PM-Episoden im Winter zu verbessern, wurden in der ersten Phase des Projekts mehrere Modell-(Input-)Anpassungen auf ihre Auswirkungen hin untersucht. Mit drei Anpassungen konnte die Modellqualität deutlich verbessert werden. Die Anpassungen bestehen aus:

- ▶ Verbesserung der Stabilität und Deposition über Schneeflächen
- ▶ Verwendung eines wissenschaftlichen Emissionsinventars für die Holzverbrennung in Haushalten, einschließlich der Emissionen von kondensierbaren Stoffen
- ▶ Zeitliche Anpassung der Variabilität von Emissionen aus Heizungsanlagen basierend auf der tatsächlichen Temperatur und damit Heizungsbedarf

Die drei Anpassungen führen zu einem Anstieg der modellierten PM10-Konzentration und damit zu einer Reduzierung des Modellfehlers während der Episode im Januar-Februar 2017 um etwa 50% (siehe Abbildung 1). Mögliche Ursachen für die verbleibenden Fehler sind: überschätzte vertikale Durchmischung, Unterschätzung spezifischer Emissionsquellen oder Aerosolbildungsprozesse, Vernachlässigung von sekundären organischen Aerosolen (SOA) und Streusalzemissionen sowie Fehler bei zeitlichen Emissionsschwankungen.

Abbildung 1: Zeitreihen von modellierten PM10 Konzentrationen am Standort Niesky aus verschiedenen Modellsimulationen gegenüber stündlichen Beobachtungen aus der PM-Ost-Kampagne für September 2016 - März 2017. Grün: Basislauf, blau: inklusive Schnee-Anpassung, violett: inklusive Schnee-Anpassung und neue Emissionen, rosa: inklusive Schnee-Anpassung und neue zeitlich variable Emissionen, gelb: inklusive aller drei Anpassungen



Quelle: TNO, dieses Projekt

Parallel dazu wurde die Möglichkeit untersucht die Meteorologie mit dem nicht-hydrostatischen meteorologischen Modell COSMO-CLM (Consortium for Small-scale Modeling - Climate Limited-Area Modelling) besser zu repräsentieren. Die Grenzschichthöhe hat einen großen Einfluss auf die vertikale Durchmischung von Schadstoffen und Luftschadstoffkonzentrationen nahe der Oberfläche. Dazu wur-

den mit dem COSMO-CLM verschiedenste Sensitivitätsläufe gerechnet. Die Sensitivitätsläufe berücksichtigen unterschiedliche Berechnungen der Grenzschichthöhe im COSMO-CLM. Durch Kombination 3 verschiedener Schließungsansätze der vertikalen Diffusion und 2 verschiedene Schemata für die Oberflächenflüsse sowie zusätzlicher Steuerparameter ergaben sich so verschiedenste Ansätze der Grenzschichthöhen-Parametrisierung. Darüber hinaus wurde das Modell mittels dynamischen Downscalings auf eine Auflösung auf 2,8km skaliert, um mögliche Verbesserungen der Simulation bei höherer Auflösung zu untersuchen.

Die im Projekt simulierten Sensitivitätsläufe wurden anschließend mit meteorologischen Beobachtungen, wie Temperatur und Windgeschwindigkeit aus Radiosondendaten verglichen und bewertet. Im Vergleich zu ERA-Interim Reanalysedaten ergibt die COSMO-CLM Modellierung eine signifikant verbesserte Darstellung des Temperaturprofils. Die unterschätzten Extrema konnten hingegen nicht verbessert werden. Die höhere Modellauflösung von 2,8 km führte nur zu einer geringfügigen Verbesserung der betrachteten thermodynamischen Variablen. Auswirkungen der Sensitivitätsstudien sind vor allem in den Temperaturprofilen ersichtlich. Basierend auf einer statistischen Auswertung wurde als bessere Grenzschicht Konfiguration des COSMO-CLM der 1-D TKE Schließungsansatz, das TKE-basierte Schema für den Oberflächenfluss, eine turbulente Länge von 50 m und ein minimaler vertikaler Diffusionskoeffizient von  $0,1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$  ausgewählt.

Die Sensitivitätssimulationen mit modifizierter Berechnung der Grenzschichthöhe führten aber nur zu geringen Änderungen der modellierten Grenzschichthöhe. Der Vergleich der COSMO-CLM Grenzschichthöhe mit Grenzschichthöhe-Werten, berechnet aus Beobachtungen von Radiosonden aufstiegen, zeigte vor allem im zeitlichen Muster eine gute Übereinstimmung und schafft Vertrauen in die vom COSMO-CLM berechneten Werten. Die COSMO-CLM Grenzschichthöhe kann demnach als Input für das Modell LOTOS-EUROS verwendet werden.

Es wurde eine Schnittstelle entwickelt mit der die COSMO-CLM Daten als Antrieb für LOTOS-EUROS verwendet werden können. Diese Schnittstelle wurde erfolgreich getestet und zur Berechnung der Feinstaubbelastung anhand der Basis Version und der optimierten Modelkonfiguration eingesetzt. Die Meteorologie der COSMO-Simulation verbessert die Darstellung der Sekundäraerosole gegenüber der ECMWF-Meteorologie. Die Modellierung der primären PM-Komponenten verschlechtert sich hingegen teilweise. Dieser gegenläufige Effekt führt zu einer nahezu ähnlichen PM10-Gesamtkonzentration. Auch die Ergebnisse der Quellenzuordnung mit beiden meteorologischen Datensätzen sind sehr ähnlich.

Bei der Bewertung und Analyse der Grenzschichthöhe ist darauf zu achten, welche Ableitungsmethode verwendet wird. Es handelt sich bei der Grenzschichthöhe um eine diagnostische Größe, somit wäre es besser anstelle der Höhe der Grenzschicht einen physikalischen Parameter an das LOTOS-EUROS-Modell zu übergeben. In der Zukunft wäre es sinnvoll, die gleiche vertikale Gitter-Struktur von COSMO-CLM im LOTOS-EUROS zu verwenden. LOTOS-EUROS kann dann auf dem gleichen vertikalen Gitter wie COSMO-CLM gerechnet werden, welche die Übertragung von meteorologischen Variablen wie die vertikalen Austauschkoeffizienten vereinfacht.

Die Ergebnisse weisen darauf hin, dass die Qualität der meteorologischen Eingangsdaten nicht der limitierende Faktor ist. Die weitere Verbesserung der Modellierung sollte sich auf die Entwicklung von Modellierungsansätzen, Berücksichtigung fehlender Quellen und die weitere Detaillierung der Emissionsdaten konzentrieren.



Auf Basis der gewonnenen Erkenntnisse wurden mit dem Modell LOTOS-EUROS Simulationen der Quellzuordnung durchgeführt. Die Simulationen wurden entweder mit ECMWF- oder COSMO-Meteorologie für drei verschiedene Gebiete und Auflösungen durchgeführt (Europa bei 25x25km (D1); Deutschland und Polen bei 7x7km (D2); Ostdeutschland bei 2x2km (D3)).

Die Ergebnisse (siehe Abbildung 2) zeigen, dass Deutschland selbst im Untersuchungszeitraum den größten Beitrag zu den PM10-Konzentrationen im Osten Deutschlands leistet (~40% der modellierten Werte gemittelt über den Untersuchungszeitraum und ~36% der Episoden mit gemessenem PM10 über 40 µg/m<sup>3</sup> für Hintergrund Stationen). Bei höheren PM-Konzentrationen übersteigt der grenzüberschreitende Beitrag Polens und anderer osteuropäischer Länder denjenigen Deutschlands selbst. Polen trägt im Allgemeinen mehr Schadstoffkonzentrationen bei als andere osteuropäische Länder zusammen (ca. 23% bei PM10 Konzentrationen >40 µg/m<sup>3</sup>).

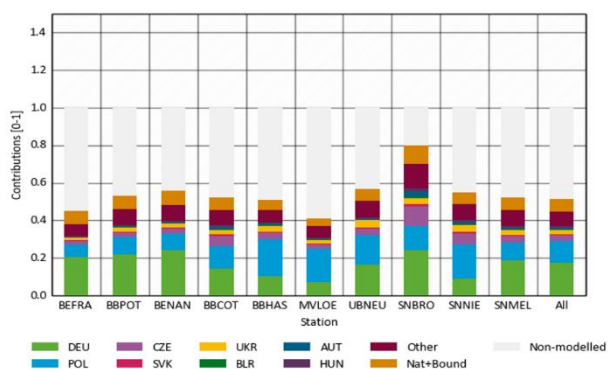
Für PM2.5 ist der lokale deutsche Beitrag größer als für PM10. Andererseits sind der Beitrag natürlicher Quellen und der Schadstoffeintrag durch die Grenzen des Modellgebiets geringer. Letzteres lässt sich durch den Einflüsse von Seesalz und Wüstenstaub erklären, die stärker zu PM10 beitragen als zu PM2.5.

Die größten Beiträge zum modellierten PM leisten die Bereiche Landwirtschaft und Hausfeuerung. Sekundäre Beiträge kommen von Kraftwerken, Industrie und Verkehr (Straße und Non-Road). Bei Episoden mit PM über 40 µg/m<sup>3</sup> steigt der relative Beitrag der Verbrennung in Haushalten. Die relativen Sektor Beiträge sind für alle Standorte weitgehend einheitlich. Die Zeitreihen veranschaulichen die großen saisonalen Schwankungen für die unterschiedlichen Quellgruppen. Der Einfluss von Kleinfeuerungsanlagen ist beispielsweise in den modellierten (und gemessenen) Zeitreihen im September kaum präsent. Auch der Energiesektor trägt variabel bei, da sein Beitrag in Zeiträumen mit aus Osteuropa kommenden Luftmassen deutlich größer ist. Insgesamt ist der Beitrag der Landwirtschaft, der überwiegend aus Ammoniumnitrat besteht, der größte Beitrag und zwischen September und April immer deutlich ausgeprägt.

Abbildung 2: Länder- (linke Abbildung, D1-Domäne) und Sektorbeiträge (rechte Abbildung, D2-Domäne) aller PM-Ost Standorte zu allen beobachteten PM10-Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup> zwischen September 2016 und März 2017.

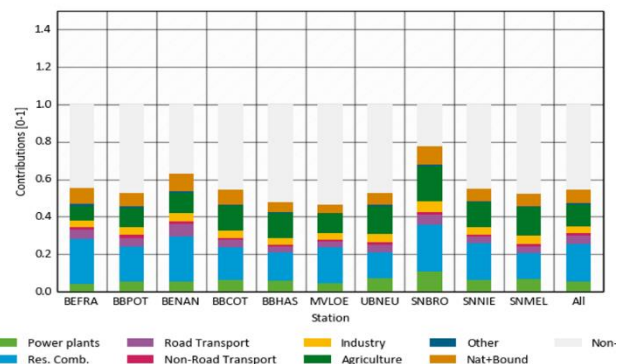
Source contributions per station, run domain: D1; tracer: pm10 [ug/m3]

Country contributions during episodes including non-modelled mass



Source contributions per station, run domain: D2; tracer: pm10 [ug/m3]

Sector contributions during episodes including non-modelled mass



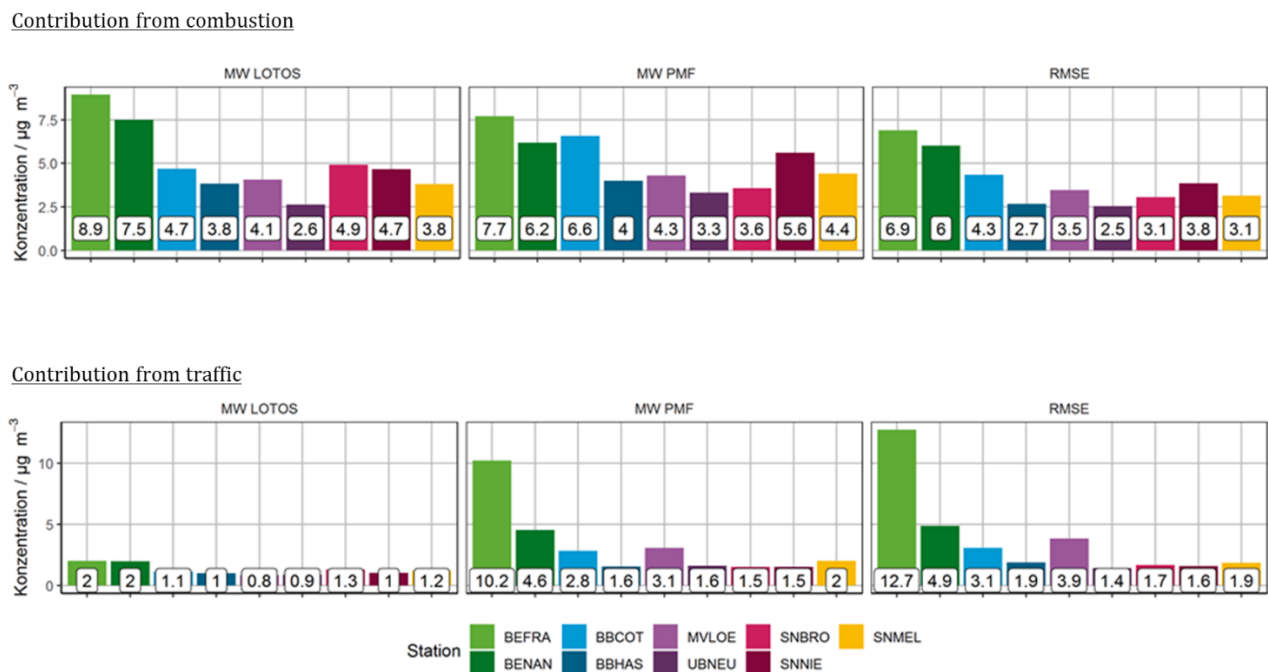
Quelle: TNO, dieses Projekt

Der Vergleich der Quellzuordnung aus den LOTOS-EUROS-Ergebnissen mit den PMF-Analysen aus dem PM-Ost-Projekt zeigt mit Ausnahmen eine gute Übereinstimmung für die meisten Sektoren (siehe Abbildung 3). Der Beitrag von Ammoniumnitrat und der Gesamtbeitrag aus Verbrennungsquellen zeigen eine sehr gute Übereinstimmung zwischen beiden Verfahren, sowohl in absoluten Werten als auch in deren zeitlicher Variabilität. Ähnliches gilt für die Verbrennung von Biomasse, da dies die dominierende Quelle der Verbrennungsemission für den Untersuchungszeitraum und der Region darstellt. Einige Diskrepanzen zeigen sich in der räumlichen Variation des Beitrags der Verbrennung, z.B. an dem Standort Berlin. Dort übersteigen die Konzentrationen aus der (Biomassen-)Verbrennung in LOTOS-EUROS die von der PMF ermittelten Werte, insbesondere in den ersten Wochen des Jahres 2017. Eine Ursache könnte ein Fehler in der räumlichen Verteilung der Emissionen (von Kleinf Feuerungsanlagen) sein.

Im Vergleich des verkehrsbedingten Beitrags der Konzentrationen zwischen LOTOS-EUROS und der PMF-Ergebnisse sind große Unstimmigkeiten zu erkennen. An städtischen Standorten ist die PMF-Konzentration des Verkehrs 2-5-mal höher als der Beitrag von LOTOS-EUROS. Dies hängt zum Teil mit der Auflösung des Modells (7x7 km) zusammen. Hier ist die Auflösung zu gering, um die Spitzenkonzentrationen an lokalen Standorten von Städten aufzulösen. Darüber hinaus unterschätzt das Modell LOTOS-EUROS die PMF-Beiträge aus Aufwirbelungsprozessen, hervorgerufen durch den Verkehr und dem Reifen- sowie Bremsverschleiß. An den Hintergrundstandorten ist der Fehler zwischen den Beiträgen von LOTOS-EUROS und PMF kleiner, aber immer noch vorhanden. Auch die zeitliche Korrelation ist gering. Offensichtlich erschweren die komplexen lokalen (Verkehrsstandorte) oder die diffusen Quellen (Hintergrundstandorte), als Merkmale des Beitrags des Verkehrsquellensektors, das Erzielen von konsistenten Ergebnissen mit den in dieser Studie angewandten Methoden.

Um die Ursachen für die verbleibenden Fehler der LOTOS-EUROS PM10-Konzentrationen und den Beobachtungen zu identifizieren, haben wir die vom Modell nicht erfasste Masse mit den verschiedenen in der PMF-Studie identifizierten Quellen korreliert. An einem Verkehrsstandort in Berlin ist die Korrelation der nicht-modellierten Masse mit der Quellkategorie Verkehr am höchsten. Wie vorstehend beschrieben, sind die lokalen Emissionen aufgrund ihrer Auflösung in LOTOS-EUROS nicht ausreichend dargestellt. Daneben wird die Aufwirbelung von Staub nicht in der Modellierung erfasst. Eine weitere Ursache für die allgemeine Unterschätzung von PM10 könnten fehlende Emissionen aus der Verbrennung oder die sekundäre Bildung von Partikeln aus Verbrennungsemissionen sein, da auch für sekundäres Ammoniumsulfat + organisches Material und Verbrennung hohe Korrelationen gefunden werden.

Abbildung 3: Vergleich der Quellkategorie „Verbrennung“ und Verkehr. Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



Quelle: TROPOS/TNO, dieses Projekt

Für den ländlichen Hintergrundstandort werden die höchsten Korrelationen für die nicht-modellierte PM<sub>10</sub>-Masse mit Quellbeiträgen aus sekundärem Ammoniumsulfat + organischem Material gefunden, gefolgt von der Verbrennung und Ammoniumnitrat. Dies deutet darauf hin, dass der Ausschluss der SOA Bildung im Modell von den Verbrennungsemissionen flüchtiger organischer Verbindungen (VOCs) oder die verstärkte Bildung von Sulfat unter verschmutzten Bedingungen, die nicht berücksichtigt wird, wahrscheinlich Gründe für die Unterschätzung des Modells durch PM<sub>10</sub> sind.

Insgesamt können wir feststellen, dass die Ergebnisse dieser Studie einen Einblick in die dominanten Quellsektoren und -regionen für PM<sub>10</sub>-Überschreitungen in Ostdeutschland bei stabilen und kalten Wetterbedingungen mit Ostwinden geben. Der Vergleich mit den PMF-Ergebnissen legt nahe, dass der LOTOS-EUROS-Beitrag des Verkehrs unterschätzt wird, insbesondere an den städtischen (Verkehrs-) Standorten. An diesen Standorten können die Auswirkungen des grenzüberschreitenden Transports daher geringer sein als in dieser Studie berechnet. Andererseits untermauern die Ergebnisse des Vergleichs die Qualität der angewandten wissenschaftlichen Datenbasis für Holzverbrennungsemissionen aus Wohngebieten einschließlich kondensierbarer Partikel und in die abgeleiteten LOTOS-EUROS-Beiträge aus (Biomasse-)Verbrennung und Landwirtschaft.

Es werden Modell- und Emissionsverbesserungen und die Verlängerung der Studie auf mehrere Jahre vorgeschlagen, um eine detaillierte Bewertung der Quellbeiträge für verschiedene Arten von Episoden zu ermöglichen.

## Summary

Outdoor air pollution causes about 3 million premature deaths per year (WHO, 2016). Particulate matter (PM) is believed to be the main air pollutant responsible for this negative health impact. In Germany about 62.000 premature deaths are attributed to PM (EEA, 2018). To protect human health, the EU air quality directive has set limit values for the yearly and daily average PM<sub>10</sub>. Within the same directive the assessment of the contribution of transboundary transport to exceedances of limit values is promoted. These assessments can support coordinated efforts between neighbouring countries for reduction of pollution levels. In the Eastern part of Germany, exceedances of limit values often take place during cold and stable weather conditions with inflow of polluted air from Poland, and other countries situated (south)eastward of Germany. This polluted air combined with the build-up of local air pollution in the shallow boundary layer can lead to high concentrations of PM<sub>10</sub> and exceedances of limit values.

Within this project we have performed a source apportionment study to assess the contribution of transboundary transport to elevated levels of PM<sub>10</sub> in the Eastern part of Germany. The following research goals have been defined for this project:

- ▶ To quantify the contribution of transboundary transport to PM<sub>10</sub> concentrations in eastern parts of Germany during episodes with exceedances of the daily limit value using model calculations. The contributions of Germany, Poland and other neighbouring countries will be quantified.
- ▶ To improve the model performance for PM<sub>10</sub> episodes with easterly wind directions by improving the modelling of the mixing layer depth and by improving the emission information.
- ▶ To generate a source apportionment analysis using a receptor model for sites in eastern Germany.
- ▶ To identify the methods and source contributions with the lowest uncertainty and provide recommendations for improvement based on the comparison of modelled and empirical data

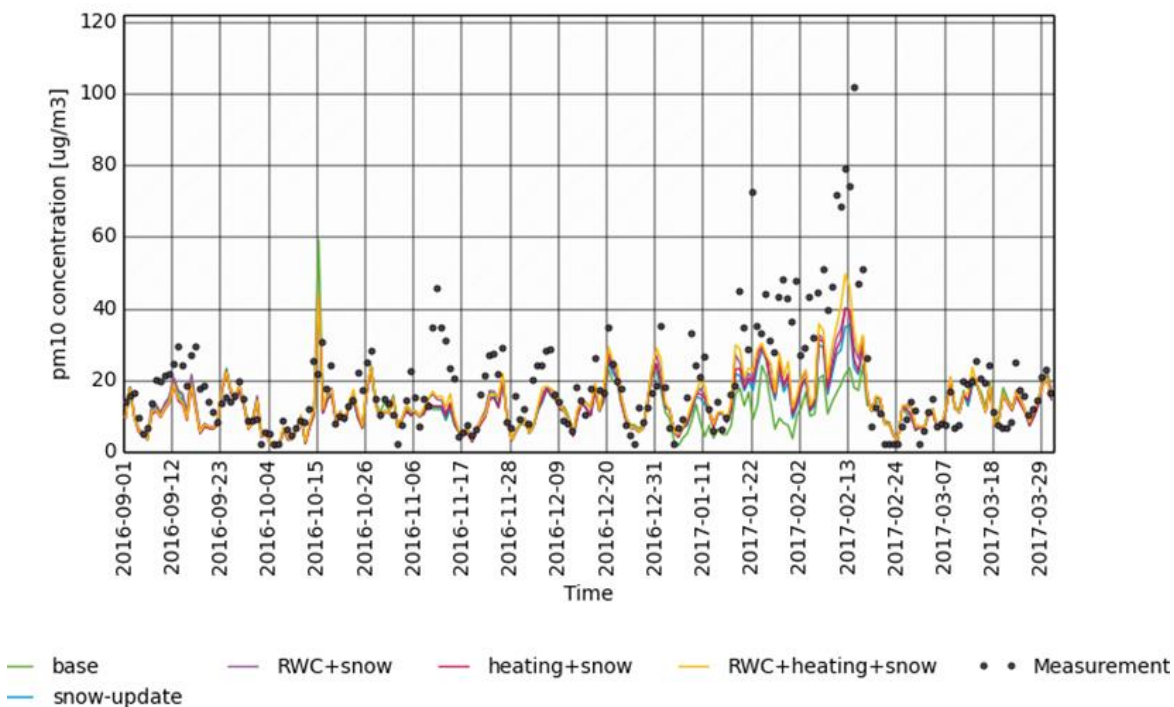
The study is performed with the chemistry transport model (CTM) LOTOS-EUROS and its source apportionment module based on a labelling technique. The study period covers the months of September 2016 to March 2017 coinciding with a measurement campaign providing speciated PM<sub>10</sub> observations (PM-Ost). The period includes a period at the end of January and beginning of February with cold temperatures, easterly winds and increased PM<sub>10</sub> levels in Eastern Germany. Within the PM-Ost campaign detailed PM<sub>10</sub> composition information was obtained through filter observations at 10 stations in the Eastern part of Germany. Using these observations, the adjoining PM-Ost project performed an experimental based source apportionment using Positive Matrix Factorisation (PMF). The PM-Ost observations and source apportionment results have been used in this study to assess the robustness of the LOTOS-EUROS source apportionment results.

Like most models, LOTOS-EUROS has difficulty in reproducing the elevated pollution levels during cold and stable weather conditions in the winter. Stern et al. (2008) illustrated that models have problems in modelling the complex meteorological conditions occurring during these events. In addition residential wood combustion emissions and their enhancement during cold spells are poorly represented in the models. This is supported by the fact that especially EC and OC show large biases between model and observed concentrations. To improve the performance of the model for the high PM episodes in winter we have in the first stage of the project examined several model (input) adaptations for their impact on the modelled concentrations. With three updates we were able to considerably improve the model performance. The updates consist of:

- ▶ Improvement of stability and deposition over snow surfaces.
- ▶ Use of a scientific emission inventory for residential wood burning including the emissions of condensables.
- ▶ Update of temporal variability of domestic heating emissions based on actual temperature, and therefore heating needs

The three updates together lead to an increase in modelled PM10 concentrations and a reduction of the model bias during the episode in January-February 2017 by about 50% (see Figure 1). Possible causes for the remaining bias are: overestimated vertical mixing, underestimation of specific emission sources or aerosol formation processes, omission of secondary organic aerosols (SOA) and road salting emissions and errors in temporal emission variations.

Figure 1: Timeseries of modelled PM 10 at the station of Niesky from different model simulations versus hourly observations from the PM-Ost campaign for September 2016 – March 2017. Green: base run, blue: including snow update, purple: including snow update and new emissions, pink: including snow update and new variability emissions, yellow: including all three updates



Source: TNO, own research

In parallel, we have examined the possibility to improve the representation of the meteorology with the non-hydrostatic meteorological model, COSMO-CLM (Consortium for Small-scale Modelling - Climate Limited-Area Modelling). The boundary layer height (BLH) has a large influence on the vertical mixing of pollution and concentrations at the surface. For this purpose, a wide variety of sensitivity runs were calculated with the COSMO-CLM. The sensitivity runs consider different calculations of the boundary layer height through a combination of 3 different approaches to vertical diffusion and 2 different surface flow schemes as well as additional control parameters.

The sensitivity runs simulated in the project are compared and evaluated with meteorological observations, such as temperature and wind speed from radiosondes.

The main differences in the modeled meteorological variables were found in the near-surface lower planetary boundary layer. Compared to ERA interim reanalysis data, the COSMO-CLM modeling results in a significantly improved representation of the temperature profile associated with cooling throughout the model area, especially during cold periods. The underestimated Extrema, however, could not be improved. The improvement of the downscaling to 2.8 km of the observed thermodynamic variables proved to be rather small. The effects of the sensitivity studies are especially evident in the temperature profiles. Based on a statistical evaluation, the better PBL-COSMO-CLM configuration was the 1-D TKE closure approach, the TKE-based surface flow scheme, a turbulent length of 50 m and a minimum vertical diffusion coefficient of 0.1

However, the sensitivity simulations with modified calculation of the boundary layer height only led to small changes in the modelled boundary layer height. The comparison of the COSMO-CLM boundary layer height with boundary layer height values, calculated from observations of radiosondes, showed a good agreement especially in the temporal pattern and creates confidence in the values calculated by the COSMO-CLM. The COSMO-CLM boundary layer height can therefore be used as input for the model LOTOS-EUROS.

An interface has been developed with which the COSMO-CLM data can be used as input data for LOTOS-EUROS. This interface has been successfully tested and used to calculate the particulate matter concentrations based on the base and optimized model configuration. The meteorology of the COSMO simulation improves the representation of the secondary aerosols compared to the ECMWF meteorology. The representation of the primary PM components, however deteriorates. This opposite effect leads to a very similar overall PM<sub>10</sub> concentration. The results of the source apportionment on the basis of both meteorological datasets are also very similar.

When evaluating and analysing the mixed layer height, attention should be paid to which derivation method is used. The mixing layer height is a diagnostic value, hence it would be better to pass a physical parameter to the LOTOS EUROS model. In the future, it might be worthwhile to use a more detailed vertical stratification of LOTOS-EUROS and to link the vertical grid structure from COSMO-CLM to LOTOS-EUROS. LOTOS-EUROS can then be calculated on the same vertical grid as COSMO-CLM, which simplifies the transmission of meteorological variables such as the vertical exchange coefficients.

The results indicate that the quality of the meteorological input data is not the limiting factor. The further improvement of the modelling should aim at the development of modelling approaches of the missing sources and the further detailing of the emission data.

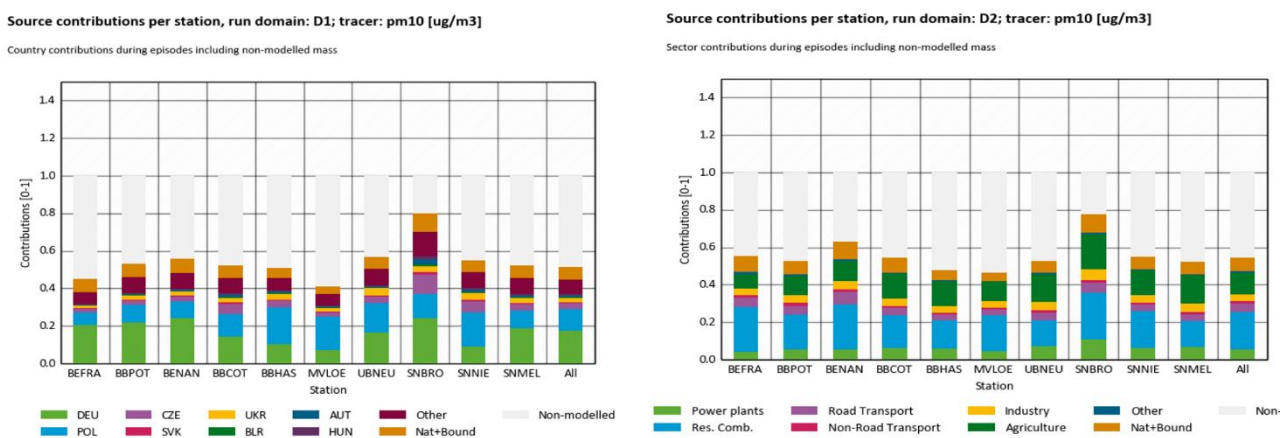
With the improved LOTOS-EUROS model the source apportionment runs were performed. Runs have been performed with either ECMWF or COSMO meteorology on three different domains and resolutions (Europe at 25x25km (D1); Germany and Poland at 7x 7 km (D2); Eastern Germany at 2x2 km (D3)).

The results (see Figure 2) show that in the study period Germany is the largest contributor to its PM<sub>10</sub> levels in Eastern Germany (~40% of modelled values averaged over study period, and ~36% for episodes with measured PM<sub>10</sub> above 40 µg/m<sup>3</sup> at background stations). At higher PM concentrations the transboundary contributions from Poland and other eastern European countries exceeds those of Germany itself. Poland contributes (~23% above 40 µg/m<sup>3</sup>) generally equal or more than other eastern European countries combined.

For PM<sub>2.5</sub>, the relative local German contribution is larger than for PM<sub>10</sub>. On the other hand, the contribution of natural sources and the entry of pollutants through the boundaries of the model domain are lower. The latter can be explained by the effects of sea salt and desert dust, which contribute more to PM<sub>10</sub> than to PM<sub>2.5</sub>.

The largest sector contributors to modelled PM are agriculture and residential combustion. Secondary contributions come from power plants, industry and transport (road and non-road). For episodes with PM above  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  the residential combustion contribution increases. The relative sector contributions are rather uniform for all stations. The time series illustrate the large seasonal fluctuations for the different source sectors. For example, the influence of domestic heating is logically barely present in modeled (and measured) time series in September. The energy sector also makes a variable contribution, as its contribution is significantly greater in periods with air masses coming from Eastern Europe. Overall, agriculture's contribution, which is predominantly made up of ammonium nitrate, is the largest contributor and is increasingly present between September and April.

Figure 2: Country (left plot, D1 domain) and sector (right plot, D2 domain) contributions for all PM Ost stations to all observed PM10 concentrations above  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  during September 2016 to March 2017.



Source: TNO, own research

Comparison of the LOTOS-EUROS source attributions with the PMF results from the PM-Ost project shows good agreements for some source sectors and poor agreement for others (see Figure 3). The contribution from ammonium nitrate and the total contribution from combustion sources show a very good agreement between both methods both in absolute values as in temporal variability. The same holds for combustion of biomass as this is the dominant source of total combustion emissions for this study period and region. Some discrepancies are seen in the spatial variation of the combustion contribution, e.g. at the stations in Berlin the concentrations from (biomass) combustion in LOTOS-EUROS are largely exceeding those from PMF, particularly in the first weeks of 2017. This could be caused by errors in the spatial distribution of (residential combustion) emissions.

For the traffic contribution the comparison between LOTOS-EUROS and PMF results shows large disagreements. At the urban stations the PMF concentration from traffic is 2-5 times higher than the contribution from LOTOS-EUROS. This is partly related to the resolution of the LOTOS-EUROS model ( $7 \times 7 \text{ km}$ ) which is too coarse to resolve the peak concentrations at smaller urban scales. Moreover, the LOTOS-EUROS model is underestimating the PMF contributions from traffic resuspension and tyre and break wear. At background stations the bias between the LOTOS-EUROS and PMF contributions is smaller but still present. Also the temporal correlation is low. Apparently the complex local (traffic stations) or diffuse (background stations) characteristics of the traffic source sector contribution make it hard to achieve consistent results with both methods applied in this study.

To identify the most probable causes of the remaining bias between LOTOS-EUROS PM10 concentrations and the observations, we have correlated the non-modelled mass with the different sources identified in the PMF study. At the traffic station in Berlin, the correlation of the non-modelled mass is

highest with the source category traffic. As described above, the very local emissions and the non-exhaust emissions are not adequately represented in LOTOS-EUROS due to its resolution. Additionally the resuspension of dust is not taken into account in the model. Another cause for the general bias in PM10 at this traffic station could be missing emissions from combustion or secondary formation of particulate matter from combustion emissions, as high correlations are also found for secondary ammonium sulphate + organic material and combustion.

Figure 3: Comparison for source categories combustion (upper plots) and traffic (bottom plots) . Mean source contributions from both methods averaged over study period and their RMSE.



Source: TROPOS/TNO, own research

For the rural background stations largest correlation for the non-modelled PM10 mass is found with source contributions from secondary ammonium sulphate + organic material, followed by second highest correlations with combustion and ammonium nitrate. This suggests that the exclusion of SOA formation in the model from combustion emissions of volatile organic compounds (VOCs) or the enhanced formation of sulphate in polluted conditions, which is not taken into account, are probable reasons for the PM10 underestimation of the model.

Overall we can conclude that the results of this study provide insight into the dominant source sectors and regions for PM10 exceedances in Eastern Germany during cold stable weather conditions with easterly winds. The comparison with PMF results suggests that the LOTOS-EUROS contribution from traffic is underestimated, especially at the urban (traffic) stations. At these stations the impact of transboundary transport may therefore be smaller than calculated in this study. On the other hand, the results of the comparison provide confidence in the applied scientific residential combustion emission database including condensables and provide confidence in the derived LOTOS-EUROS contributions from (biomass) combustion and agriculture.

Model and emission improvements and extension of the study to multiple years are suggested to allow detailed evaluation of the source contributions for different types of episodes.



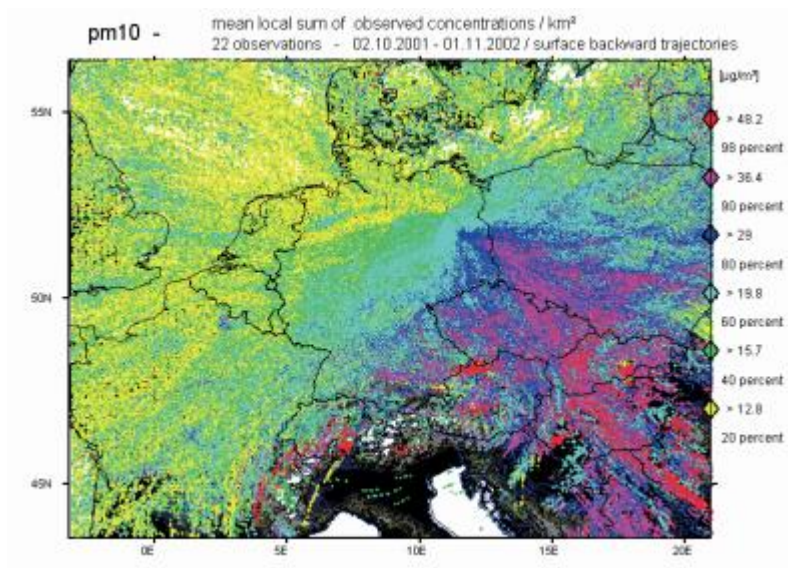
## 1 Einleitung

### 1.1 Hintergrund

Feinstaub ist physikalisch gesehen die Gesamtheit an Partikeln in der Luft, die einer definierten Größenklasse entsprechen (typischerweise  $<2.5$  (PM<sub>2.5</sub>) oder  $<10$   $\mu\text{m}$  (PM<sub>10</sub>) Diameter). Feinstaubbelastung wird mit erhöhter Sterblichkeit infolge von Atemwegs- und Herz-Kreislauf-Erkrankungen, reduzierter Lungenfunktion und chronischen Lungenerkrankungen in Verbindung gebracht. Die Schätzungen kommen zum Ergebnis, dass in 2015 etwa 41.500 vorzeitige Todesfälle in Deutschland durch Feinstaub verursacht wurde (UBA, 2017a).

Zum Schutz der menschlichen Gesundheit gelten seit dem 1. Januar 2005 europaweit entsprechend der Luftqualitätsrichtlinie (2008/50/EG) Grenzwerte für die PM<sub>10</sub>. Der Tagesgrenzwert beträgt  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  und darf nicht öfter als 35mal im Jahr überschritten werden. Der zulässige Jahresmittelwert beträgt  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . In Deutschland sind die Tage mit Überschreitungen des Grenzwertes von PM<sub>10</sub> in den letzten Jahren zurückgegangen (UBA, 2018). In 2017 wird der Tagesgrenzwert nur an der verkehrsnahen Messstation am Stuttgarter Neckartor überschritten, allerdings sollen laut Weltgesundheitsorganisation (WHO) die Werte an höchstens drei Tagen pro Jahr über  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  liegen. Dieses Ziel überschreiten 87% aller Messstationen in Deutschland (UBA, 2018). Die Häufigkeit der Überschreitungen des Tagesgrenzwertes hängt eng mit den auftretenden meteorologischen Bedingungen in einem Jahr zusammen. Die meteorologischen Bedingungen, die im Osten Deutschlands oft zu Überschreitungstagen führen sind schon lange bekannt. Abbildung 1 zeigt Ergebnisse des AFO-2000 Projektes HoVert (Reimer et al., 2005) und zeigt für den Zeitraum 1. Okt. 2001 bis 1. Nov. 2002 die mittlere Einflussmatrix für PM<sub>10</sub> bezogen auf den Berliner Raum. Dabei zeigt sich ein eindeutiger Bezug zwischen hohen gemessenen Konzentrationen in Berlin und dem Transport von Luftmassen aus dem südwestpolnischen und osttschechischen Raum, in dem Kohle- und Schwerindustrie mit entsprechenden Emissionen konzentriert sind. Diese Transporte addieren sich in Berlin zu den eigenen städtischen Emissionen und führen zu erhöhten lokalen Konzentrationen. Meteorologisch ursächlich sind Hochdruckwetterlagen über Osteuropa, die im Winter (und Sommer) eine konstante (Süd-)Ostströmung nach Berlin erzeugen. Die mittlere Belastung durch Transporte von Westeuropa her ist dominiert durch Wetterlagen mit starker Durchmischung, so dass in diesem Fall eine generelle Verdünnung der Schadstoffe zu beobachten ist.

Abbildung 1: Ursprung der PM10-Belastung des Berliner Raums. Rote und violette Gebiete: möglicher hoher Beitrag der dort existierenden Quellen an der Belastung; türkise Gebiete: mittlerer Beitrag; gelbe Gebiete: geringer Beitrag.



Quelle: Freie Universität Berlin, Trajektorie Model [www.trumf.de](http://www.trumf.de)

Die Auswertung von Messdaten mit einem einfachen regionalen Gradientenmodell (Lenschow-Ansatz) zeigt, dass im Durchschnitt ca. 50 % der Feinstaubbelastung eines Belastungsschwerpunktes aus dem großräumigen Hintergrund stammen, aber auf der anderen Seite auch 50 % aus dem direkten Umfeld (<100 km) (Pesch et al., 2007). Anhand einer Anwendung dieses Ansatzes für Dresden konnte festgestellt werden, dass bei östlicher Anströmung etwa 80 % der PM10-Konzentration, die in der Stadt Dresden gemessen wurde, aus dem Ferntransport über die polnisch-deutsche Grenze stammte (Brüggemann et al., 2007). Weiterhin wurde deutlich, dass die aus dieser Richtung stammenden Partikel doppelt so hohe Sulfat- und Kohlenstoffanteile wie Partikel aus westlichen Richtungen aufwiesen, jedoch nur ein Viertel des Nitratanteils. Der Ferntransportanteil kann also, zumindest bei bestimmten Herkunftsregionen der Luftmassen, den Hauptteil der städtischen Partikelbelastung ausmachen (Brüggemann et al., 2007).

Die Luftqualitätsrichtlinie fordert dazu auf, den Beitrag des grenzüberschreitenden Transports von Luftschadstoffen zur Grenzwertüberschreitung zu bestimmen und sich darüber mit den verursachenden Nachbarstaaten auszutauschen. Leider ist die Aufteilung zwischen nationalen und grenzüberschreitenden Beiträgen sowie zwischen unterschiedliche Quellgruppen durch Schadstoffmessungen in Kombination mit Trajektorien allein kaum zu bewerten. Dafür braucht man detailliertere Ansätze wie rezeptororientierte Quellzuordnungstechniken auf Basis von detaillierten Messungen in Kombination mit Chemie-Transport-Modellen.

## 1.2 Quellzuordnung

Für eine wirksame Weiterentwicklung von Maßnahmen zur Verbesserung der Luftqualität bedarf es genauer Informationen über die Herkunft und die Quellen der Luftverschmutzung. Neben der statistischen Auswertung von Messdaten gibt es zwei Ansätze zur Identifizierung von Quellen, die zur Luftverschmutzung in einem bestimmten Gebiet beitragen. Die erste auf Beobachtungen basierende Methode ist die Rezeptormodellierung (z. B. PMF). Diese Art von Modellen suchen nach internen Korrelationen in den Beobachtungsdaten, meist auf PM-Komponentenebene. Die Analyse ergibt mehrere Faktoren, die in einigen Fällen auf Quellkategorien zurückgeführt werden können.

Ein anderer Ansatz zur Herkunftsbestimmung der PM-Konzentration an einem bestimmten Ort besteht in der Verwendung von CTM und gerasterten Emissionsdaten. Dies geschieht häufig in Szenarienrechnungen, in denen die Emissionen eines Sektors oder einer Region einzeln reduziert werden, um den Quellbeitrag zur Gesamtkonzentration für jede Quellkategorie zu bestimmen. Andere Modelle, wie z.B. LOTOS-EUROS, haben einen Kennzeichnungsansatz implementiert (Kranenburg et al., 2013), um die Quantifizierung von Quellbeiträgen für eine Reihe von Quellsektoren/regionen in einem Modelllauf zu ermöglichen (Hendriks et al., 2013). Die Qualität der Informationen über die Quellzuordnung, die von CTM bereitgestellt werden, hängt davon ab, wie gut die beobachteten PM-Konzentrationen reproduziert werden. Daher ist es wichtig, einen Vergleich mit detaillierten Messungen zur PM-Zusammensetzung durchzuführen, um mögliche Fehlerquellen im Modell zu identifizieren und die Qualität der Ergebnisse der Quellzuordnung zu beurteilen.

Zur Quantifizierung der Quellbeiträge von PM<sub>10</sub> im Osten Deutschlands kommen in diesem Projekt sowohl Rezeptormodellierung als auch chemische Transportmodellierung zum Einsatz. Dieser kombinierte Ansatz bietet die Möglichkeit, die modellierte Quellzuordnung für eine Auswahl von Quellkategorien zu validieren. Die PMF-Methode erfordert eine umfassende Beobachtung des gesamten PM sowie seiner Komponenten und mehrerer Tracer (Metalle und organische Verbindungen). Dieser Datensatz bietet auch die Möglichkeit, Unterschiede zwischen modellierten und beobachteten Konzentrationen näher zu untersuchen, um festzustellen, welche Quellen im für die Modellrechnungen verwendeten Emissionsdatensatz noch nicht ausreichend repräsentiert sind. Anhand dieser Informationen können sowohl das Emissionsinventar- als auch das CTM verbessert werden, was zu einer besseren Quellzuordnung führt.

Das Projekt steht in engem Zusammenhang zum jetzt abgeschlossenen PM-Ost Projekt (van Pinxteren et al., 2017). Bei diesem Projekt wurde ein detaillierter Datensatz der chemischen Zusammensetzung durch Probenahme von Filtern an 10 Standorten in mehreren Bundesländern in Deutschland gewonnen. Für die 10 Standorte wurde eine Rezeptormodellierung (PMF) durchgeführt, um experimentell die Feinstaubquellen zuzuordnen. Meteorologische Informationen (Windrichtung, Temperatur, Grenzschichthöhe und Niederschlag) und ein Rückwärtstrajektorienmodell wurden verwendet, um die Quellenbeiträge der PMF mit bestimmten Wetterkategorien zu verbinden und mögliche Quellregionen zu identifizieren. In der Studie konnte gezeigt werden, dass der grenzüberschreitende Transport von PM<sub>10</sub> eine Zusatzbelastung bis zu 50 µg/m<sup>3</sup> an einzelnen Stationen unter bestimmten meteorologischen Bedingungen zur Folge haben kann. An ländlichen Hintergrundstationen stammen etwa 50% der hohen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen (> 30 µg/m<sup>3</sup>) aus dem grenzüberschreitenden Transport. Primäre und sekundäre (prozessierte) Emissionen aus Verbrennung von Holz und Kohle zur Gebäudeheizung sind die Hauptverursacher des Ferneintrags. Der Eintrag kommt von direkten Nachbarländern, aber auch von weiter entfernten osteuropäischen Regionen.

In diesem Projekt werden die Ergebnisse der chemischen Transportmodellierung mit denen der PMF verglichen, um Rückschlüsse auf die Qualität der Ergebnisse zu ziehen.

Ein gemeinsames Merkmal von CTM ist die große Unterschätzung hoher Feinstaub-/Partikelkonzentrationen bei kalten, stagnierenden Bedingungen mit niedrigen Grenzschichthöhen (Stern et al., 2008). Dies dürfte zum Teil auf die Schwierigkeiten bei der Modellierung der mit dieser Art von Ereignissen verbundenen meteorologischen Bedingungen (niedrige Grenzschicht, sehr stabile Atmosphäre mit reduzierter vertikaler Vermischung) zurückzuführen sein. Eine weitere wichtige Ursache für die Unterschätzung bei kalten Episoden ist die Unterschätzung von Emissionen. Insbesondere die gemeldeten Emissionen aus der Holzverbrennung in Privathaushalten, die eine große Rolle im Winter spielen, sind sehr unsicher (Denier Van Der Gon et al., 2015). Neben den Unsicherheiten der absoluten Werte der

jährlichen Emissionen ist auch die zeitliche Variation der Emissionen entscheidend. Traditionell verwenden Modelle statische Zeitprofile, um die jährlichen Emissionen auf die verschiedenen Monate, Tage und Stunden im Jahr zu verteilen. Solche statischen Profile basieren jedoch auf klimatologischen Temperaturdaten und berücksichtigen keine Schwankungen der tatsächlichen Temperatur. Bei Kleinfeuerungsanlagen von Privathaushalten kann dies zu großen Unterschätzungen der Emissionen während Kälteperioden führen.

Im Rahmen dieses Projekts haben wir uns auf die oben genannten möglichen Ursachen von Unterschätzungen konzentriert, mit dem Ziel, die Darstellung erhöhter PM-Konzentrationen während kalter und stabiler Episoden zu verbessern und die Robustheit der Ergebnisse der Quellzuordnung zu verbessern.

### 1.3 Forschungsziele

Unter Berücksichtigung der im vorangegangenen Abschnitte dargestellten Hintergründe und Herausforderungen wurden für dieses Projekt die folgenden Forschungsziele festgelegt:

- ▶ Quantifizierung des Beitrags des grenzüberschreitenden Transports zu den PM<sub>10</sub>-Konzentrationen in Ostdeutschland während Episoden mit Überschreitungen des Tagesgrenzwertes mittels Modellrechnungen mit Fokus auf Beiträge aus Deutschland, Polen und anderen Nachbarländern
- ▶ Verbesserung der Modellierung von PM<sub>10</sub> Episoden mit östlichen Windrichtungen durch Optimierung der simulierten Grenzschichthöhen und verwendeten Emissionsinformationen
- ▶ Auswertung der modellbasierten Quellzuordnung anhand und Vergleich mit den Ergebnissen eines Rezeptormodells für mehrere Standorte im Osten Deutschlands
- ▶ Identifizierung der Methoden und Quellbeiträge mit der geringsten Unsicherheit und Bereitstellung von Verbesserungsvorschlägen auf der Grundlage des Vergleichs von modellierten und empirischen Daten

### 1.4 Berichtsstruktur

In diesem Bericht präsentieren wir die Ergebnisse des Projekts. Abschnitt 2 stellt das angewandte Modell und die Quellzuordnungsmethode dar. In Abschnitt 3 werden die Ergebnisse mehrerer Modellverbesserungen diskutiert, die darauf abzielen, die Differenz zwischen modelliertem PM und beobachteten Werten in Zeitabschnitten zu verringern. Abschnitt 4 stellt die durchgeführte Optimierungsstudie mit dem Ziel vor, die modellierte Grenzschichthöhe zu verbessern. Die Ergebnisse der Quellzuordnung, die auf dem verbesserten Modell basieren, werden in Abschnitt 5 dargestellt und diskutiert. Diese Ergebnisse werden mit den Ergebnissen der PMF Quellzuordnungsstudie in Abschnitt 7 verglichen. Im letzten Abschnitt (Abschnitt 8) diskutieren wir die allgemeinen Schlussfolgerungen und Einschränkungen der Studie und geben Empfehlungen für Folgearbeiten.

## 2 Methodik

### 2.1 Modellbeschreibung

LOTOS-EUROS ist ein Open-Source 3D-Chemie-Transportmodell. Das Modell wurde am TNO in Zusammenarbeit mit Partnern wie der Freien Universität Berlin entwickelt. Das Modell ist Teil des regionalen Ensembles Copernicus Atmospheric Monitoring Service (CAMS), das operative Prognosen und Analysen für ganz Europa liefert. In diesem Zusammenhang wird das Modell regelmäßig aktualisiert und validiert, indem Daten aus Boden- und Satellitenbeobachtungen verwendet werden. Im CAMS werden auch richtlinienrelevante Produkte zur Quellzuordnung sowohl mit LOTOS-EUROS als auch mit den EMEP-Modellen bereitgestellt.

Das LOTOS-EUROS-Modell simuliert Luftschadstoffkonzentrationen in der unteren Troposphäre auf einem regelmäßigen Euler-Gitter mit variabler Auflösung über Europa (Manders et al., 2017). Das vertikale Gitter basiert auf geländefolgenden Koordinaten und erstreckt sich in dieser Anwendung bis zu 5 km über dem Meeresspiegel. Das Modell verwendet dynamische Grenzschichthöhen zur Bestimmung der vertikalen Struktur, d. h. die vertikalen Schichten variieren in Raum und Zeit.

Für die Bildung sekundärer anorganischer Stoffe (Sulfat, Nitrat, Ammonium) wird die Bildung von Schwefelsäure und Salpetersäure aus den Vorläufern in der Gasphase und Wasserphase berechnet. Die Gasphasenchemie wird mit dem TNO CBM-IV-Schema simuliert, das eine komprimierte Version des ursprünglichen Schemas (Whitten et al., 1980) ist. Die Hydrolyse von  $N_2O_5$  wird explizit beschrieben (Schaap et al., 2004). LOTOS-EUROS berücksichtigt explizit die Wolkenchemie, die die Sulfatbildung in Abhängigkeit vom Flüssigwassergehalt von Wolken und dem pH-Wert der Wolkentropfen berechnet (Banzhaf et al., 2012). Ammoniak neutralisiert vorzugsweise Schwefelsäure aufgrund dessen extrem geringen Dampfdrucks. Weiteres verfügbares Ammoniak neutralisiert Salpetersäure wobei der semi-volatile Stoff Ammoniumnitrat gebildet wird. Das heißt, dass es unter kühlen Wetterbedingungen, zur effektiven Bildung von Ammoniumnitrat kommt. Für die Beschreibung der Aerosolchemie wird das thermodynamische Gleichgewichtsmodul ISORROPIA2 verwendet (Fountoukis and Nenes, 2007). Trockene Depositionsflüsse für Gase werden nach dem Widerstandsansatz berechnet, der im Modul DEPAC (DEPosition of Acidifying Compounds) (Van Zanten et al., n.d.) implementiert ist. Darüber hinaus ist im Trockendepositionsmodul ein Kompensationspunktansatz für Ammoniak enthalten (Wichink Kruit et al., 2012). Für Partikel wird das Schema von Zhang (Zhang, 2001) verwendet. Das Nassdepositionsmodul berücksichtigt die Sättigung der Wassertröpfchen (Banzhaf et al., 2012). Die horizontale Advektion von Schadstoffen wird nach einem monotonen Advektionsschema berechnet (Walcek, 2000). Für eine detaillierte Beschreibung des LOTOS-EUROS-Modells verweisen wir auf Manders et al. (2017) und darin angegebene Referenzen.

Im Rahmen des FP7-Projekts EnerGEO hat TNO ein System zur Verfolgung von Emissionen innerhalb einer LOTOS-EUROS-Simulation basierend auf einer Kennzeichnungstechnik entwickelt (Kranenburg et al., 2013). Neben den Konzentrationen der unterschiedlichen chemischen Bestandteile werden die Beiträge der vordefinierten Quellkategorien berechnet. Die Kennzeichnungsroutine wird sowohl für primäre, inerte Aerosol-Tracer als auch für chemisch aktive Tracer mit einem C-, N- (reduziert und oxidiert) oder S-Atom durchgeführt, da diese direkt rückverfolgbar sind. Zu Einzelheiten und Validierung dieses Quellzuordnungsmoduls verweisen wir auf (Kranenburg et al., 2013). Die Technik der Quellzuordnung mit LOTOS-EUROS wurde bisher zur Untersuchung der Herkunft von PM (Episoden) (Hendriks et al., 2016; Timmermans et al., 2017) und Stickstoffdioxid (Schaap et al., 2013) genutzt.

Für sekundäre Aerosole, die aus zwei Komponenten bestehen (z.B. Ammoniumnitrat ( $NH_4NO_3$ )), wird der Beitrag berechnet, indem die Hälfte der Masse auf jede Komponentenquelle aufgeteilt wird. So wird beispielsweise für Ammoniumnitrat ( $NH_4NO_3$ ) die Hälfte der Masse dem Sektor oder Standort der Ammoniumquelle (meist Ammoniak ( $NH_3$ ) aus landwirtschaftlichen Quellen) und die Hälfte der

Masse dem Sektor oder Standort der Nitratquelle (u.a. Stickstoffdioxid ( $\text{NO}_2$ ) aus dem Verkehr) zugeordnet. Beide Komponenten werden zur Bildung des kombinierten Aerosols benötigt. Die gewählte Methode führt zu einem größeren landwirtschaftlichen Beitrag als die Methode, bei der die Ammoniumnitratmasse den Ammonium- und Nitratquellen basierend auf den jeweiligen Molekularmassen dieser Komponenten zugeordnet wird ( $\text{NH}_4$  ist leichter als  $\text{NO}_3$ ). Da das kombinierte Aerosol nicht gebildet werden kann, wenn eine der beiden Komponenten nicht verfügbar ist, erscheint die Zuweisung gleicher Beiträge gerechtfertigt.

## 2.2 Modellaufbau

Die Grundkonfiguration des LOTOS-EUROS-Modells für den europäischen Bereich entspricht der des operativen Dienstes in CAMS.

### 2.2.1 Meteorologie

Die Läufe werden mit meteorologischen Daten vom ECMWF Modell (European Centre for Medium-range Weather Forecasts) oder vom COSMO Modell (Consortium for Small-scale Modeling) durchgeführt. Letzteres ermöglicht LOTOS-EUROS Simulationen mit einer höheren Auflösung als mit ECMWF-Meteorologie.

### 2.2.2 Emissionen

Die anthropogenen Emissionsverteilungen für die endgültigen Berechnungsläufe für Deutschland stammen aus GRETA (Gridding Emission Tool for ArcGIS, (Schneider et al., 2016)). Grundlage für die räumliche Verteilung waren die im Jahr 2017 offiziell nach den internationalen Berichtsvorschriften unter der UNECE Luftreinhaltekonvention vom Umweltbundesamt berichteten Luftschadstoffemissionen, mit denen eine Emissionszeitreihe für die Jahre 1990-2015 veröffentlicht wurde (UBA, 2017b). Für den Rest Europas wurde das regionale Inventar aus CAMS, das von TNO für das Jahr 2015 entwickelt wurde verwendet. Für die Kleinf Feuerungsanlagen von Privathaushalten (Hausfeuerung) wurde in den endgültigen Läufen eine aktualisierte Emissionsdatenbank verwendet, wie im Abschnitt 3.2 erläutert wird. Die zeitliche Variation der Emissionen wird durch die zugehörigen monatlichen, täglichen und stündlichen Zeitfaktoren abgebildet, die die jährlichen Summen für jede Quellenkategorie aufteilen. Emissionen aus Waldbränden werden aus dem CAMS-Brandprodukt gewonnen (Kaiser et al., 2012). Die biogenen Emissionen werden online berechnet, basierend auf detaillierten Informationen über Baumarten in Europa (Koeble and Seufert, n.d.) und unter Verwendung von emissionsabhängigen Faktoren (Schaap et al., 2009). Die Meersalzemissionen werden mit Mårtensson et al. (2003) für den feinen Partikelmode und Monahan et al. (1986) für den groben Mode beschrieben.

### 2.2.3 Randbedingungen

Die chemischen Randbedingungen werden dem C-IFS (Integrated Forecasting System including Chemistry) entnommen (Marécal et al., 2015). Dabei werden die C-IFS-Meersalz-Randbedingungen allerdings nicht berücksichtigt, da diese nachweislich zu hoch sind und sich negativ auf die Quell-Rezeptor-Berechnung über Kontinentaleuropa auswirken.

### 2.2.4 Modellgebiete und räumliche Auflösung

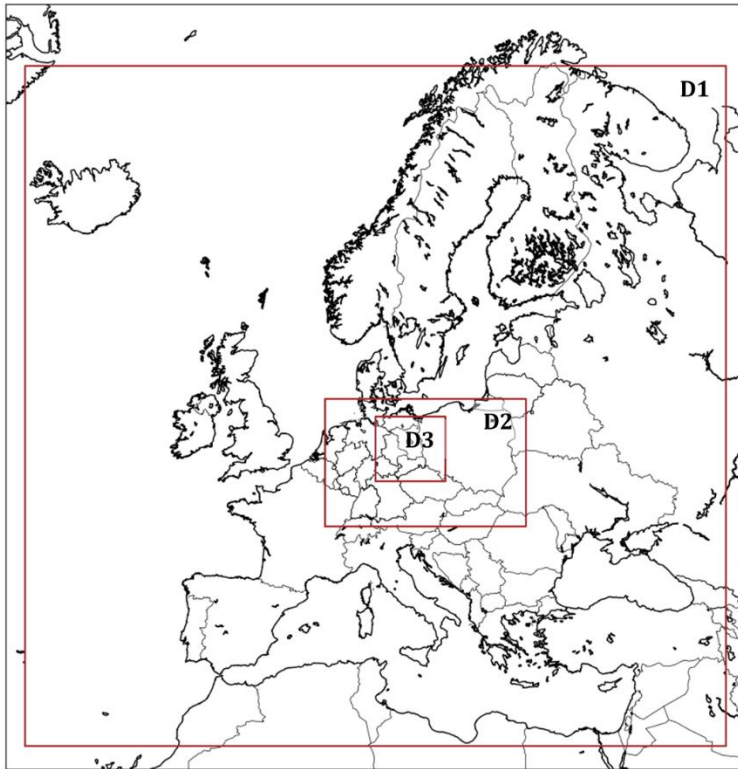
Es wurden Modellläufe in drei verschiedenen Modelldomänen (Abbildung 2) und räumlichen Auflösungen durchgeführt.

D1: Europäische Domäne, mit 25 km Auflösung

D2: Deutschland und Polen, mit 7 km Auflösung

D3: Ostdeutschland, mit 2 km Auflösung

Abbildung 2: Geographische Lage der Modellgebiete



Quelle: TNO, dieses Projekt

Tabelle 1 gibt einen Überblick über die Einstellungen der im Projekt durchgeführten endgültigen Modellläufe. Diese umfasst die verschiedenen Modellgebiete den jeweiligen meteorologischen Input und die unterschiedlichen Quellzuordnungskennzeichnungen (Label) ab.

Tabelle 1: Übersicht über die endgültigen Quellzuordnungsläufe, die im Projekt durchgeführt wurden, mit ihren Einstellungen.

Laufbezeichnung	Modellgebiet	Meteorologie	Randbedingungen	Kennzeichnungen
ecmwf_D1_country	D1	ECMWF	C-IFS	Länderbasiert
ecmwf_D1_sector	D1	ECMWF	C-IFS	Sektorbasiert
ecmwf_D2_sector	D2	ECMWF	ecmwf_D1_sector	Sektorbasiert
cosmo_D2	D2	COSMO	ecmwf_D1_sector	Sektorbasiert
cosmo_D3	D3	COSMO	cosmo_D2	Sektorbasiert

### 2.3 Einrichtung der Quellzuordnung

Es wurden zwei Arten von Simulationen der Quellzuordnung durchgeführt

- ▶ Im **länderbasierten Lauf** wurden Kennzeichnungen für alle Länder im Gebiet D1 (Tabelle 2) gesetzt. Dieser Lauf wurde durchgeführt, um den Beitrag des grenzüberschreitenden Transports zu quantifizieren. Um die Speichergröße nicht zu überschreiten und übermäßige Rechenzeiten zu vermeiden, wurde beschlossen, einige sehr kleine Länder mit ihren Nachbarn zu kombinieren. Zur Einhaltung der Massenkonsistenz wurden auch alle nicht ausgewählten anthropogenen Emissionen, natürlichen Emissionen sowie die kombinierten Auswirkungen von Anfangsbedingungen und Randbedingungen erfasst.
- ▶ Die **sektorbasierten Läufe** zielen darauf ab, die relativen Beiträge der Emissionssektoren (Tabelle 3) zu quantifizieren. Diese Simulationen wurden für alle Modellgebiete durchgeführt. Die Kennzeichnungen wurden so gewählt, dass sie einen bestmöglichen Vergleich mit den in der PMF-Analyse identifizierten Quellen ermöglichen. Daher wurden die Beiträge der Holz- und Kohleverbrennung für die Bereiche Hausfeuerung und Energieerzeugung getrennt. Für jeden Sektor wurden die Beiträge aus Deutschland, Polen und allen anderen Ländern ermittelt.

Tabelle 2: Übersicht über die 35 Kennzeichnungen, die für die Zuordnung von Quellen zu europäischen Ländern verwendet werden.

Code	Länder
AUT	Österreich
BEL	Belgien + Luxemburg
CHE	Schweiz
DEU	Deutschland
DNK	Dänemark
ESP	Spanien
FIN	Finnland
FRA	Frankreich
GBR	Großbritannien
GRC	Griechenland
IRL	Irland
ITA	Italien + Malta
NLD	Niederlande
NOR	Norwegen
PRT	Portugal
SWE	Schweden
BGR	Bulgarien
TUR	Türkei + Zypern
CZE	Tschechische Republik
EST	Estland
HRV	Kroatien
HUN	Ungarn
LTU	Litauen
LVA	Lettland
POL	Polen



ROU	Rumänien + Moldawien
SVK	Slowakei
SVN	Slowenien
BLR	Weißrussland
UKR	Ukraine
YUG	Albanien, Serbien, Mazedonien, Montenegro, Bosnien-Herzegowina
SEA	Internationale Gewässer
Andere	
Natürlich	
Modellrand	

Tabelle 3: Übersicht über die Kennzeichnungen zur Zuordnung von Quellen

Sektoren	Länder
Energiegewinnung aus Kohle	Deutschland
Energiegewinnung aus Biomasse	Polen
Energiegewinnung aus anderen Quellen	Alle anderen Länder
Hausfeuerung aus Kohle	
Hausfeuerung aus Biomasse	
Hausfeuerung aus anderen Quellen	
Verkehr	
Industrie	
Nicht straßengebundene Verkehrsmittel	
Landwirtschaft	

## 2.4 PM-Ost Messdaten

Die vorliegende Studie verwendet Messdaten aus dem parallelen „PM-Ost“ Projekt der Länder Berlin, Brandenburg, Mecklenburg-Vorpommern und Sachsen (van Pinxteren et al., 2017), um die Ergebnisse des LOTOS-EUROS Modells zu evaluieren und die Verlässlichkeit der Quellzuordnungsergebnisse zu beurteilen. Im PM-Ost Projekt wurden im Winter 2016/17 an 10 ausgewählten Stationen der Luftgütemessnetze der beteiligten Länder sowie des UBA und des Leibniz-Instituts für Troposphärenforschung (TROPOS) wissenschaftliche Sondermessungen durchgeführt. Die Messstationen sind in Abbildung 3 gezeigt und in Tabelle 4 mit ihrer Klassifizierung und den im vorliegenden Bericht verwendeten Stationsabkürzungen zusammengefasst.

Es wurden für alle 212 Messtage des Projektes Tagesmittelwerte für PM<sub>10</sub> Massekonzentration, sowie die Inhaltsstoffe OC/EC und anorganische Ionen bestimmt. An 80 ausgewählten Sondermesstagen wurden zusätzlich die Konzentrationen der Inhaltsstoffe polyzyklische aromatische Kohlenwasserstoffe (PAK) und Levoglucosan, sowie für die beiden Berliner Messstationen einer Reihe von Metallen bestimmt.

Abbildung 3: Überblick über die PM-Ost Messstationen. Der Farbcode gibt die Klassifizierung der Station als Verkehrsstation (rot), städtische Hintergrundstation (blau) oder ländliche Hintergrundstation (grün) wieder. Quelle der Karte: openstreetmap.org.



Quelle: van Pinxteren et al. (2019)

Tabelle 4: Messstationen des PM-Ost Projektes

Messnetz	Station	Abkürzung	Klassifizierung
Berlin	Frankfurter Allee	BEFRA	Verkehrsstation
	Nansenstraße	BENAN	Urbaner Hintergrund
Brandenburg	Potsdam	BBPOT	Verkehrsstation
	Hasenholz	BBHAS	Ländlicher Hintergrund
	Cottbus	BBCOT	Urbaner Hintergrund
UBA	Neuglobsow	UBNEU	Ländlicher Hintergrund
Mecklenburg-Vorpommern	Löcknitz	MVLOE	Ländlicher Hintergrund
Sachsen	Brockau	SNBRO	Ländlicher Hintergrund
	Niesky	SNNIE	Ländlicher Hintergrund
TROPOS	Melpitz	SNMEL	Ländlicher Hintergrund

## 3 Modelloptimierung

### 3.1 Ziele

Ziel der Modelloptimierung war die **Verbesserung der Modellierung von bodennahen PM10-Konzentrationen während Episoden mit Überschreitungen von Grenzwerten, die normalerweise vom Modell deutlich unterschätzt werden.** Diese Unterschätzung während kalter und stabiler Episoden ist ein generelles Problem regionaler CTM.

Um dieses Ziel zu erreichen, wurden eine Reihe von Modellanpassungen vorgenommen und auf ihre Auswirkungen auf die modellierten Konzentrationen untersucht.

Da wir gesehen haben, dass der negative Modellfehler für PM10 bei Kälteperioden insbesondere die Bestandteile EC- und OC betrifft, wurden folgende Verbesserungen getestet:

- ▶ Verbesserung der Stabilität und Deposition über Schneeflächen
- ▶ Verwendung eines wissenschaftlichen Emissionskatasters für die Holzverbrennung im Wohnbereich einschließlich der Emissionen von kondensierbaren Stoffen
- ▶ Aktualisierung der zeitlichen Variabilität der Heizemissionen aus Haushalten basierend auf der tatsächlichen Außentemperatur

### 3.2 Stabilität über Schneeflächen

Die Lebensdauer von PM in der Atmosphäre hängt von der Effizienz ab, mit der die Partikel aus der Atmosphäre entfernt werden. Im Allgemeinen ist die Entfernung durch Niederschlag (Nasse Deposition) die Hauptsenke für PM. Die trockene Deposition durch Abscheidung an Oberflächen, z. B. auf der Vegetation, spielt normalerweise eine untergeordnete Rolle. Da jedoch die meteorologischen Bedingungen während Feinstaubepisoden in Deutschland oft durch Ostwindlagen mit stabilen Wetterbedingungen ohne Niederschläge gekennzeichnet sind, wird die Lebensdauer unter diesen Bedingungen durch den trockenen Depositionsprozess bestimmt. Durch die Analyse der Temperaturabhängigkeit der PM-Abweichung im Modell wurde erkannt, dass Oberflächenparameter unter den Bedingungen einer vorhandenen Schneeschicht verbessert werden können.

In einem ersten Schritt haben wir die für die Stabilität und Deposition über Schneeflächen relevanten Parameter aktualisiert, um eine Konsistenz innerhalb der verschiedenen Prozesse im Modell zu erreichen. Die Information der Schneebedeckung wird vom ECMWF Modell, in dem Satellitendaten zur Oberflächenalbedo integriert werden, entnommen. Zum Beispiel gehen wir davon aus, dass die Landnutzungsklassen Gras und (unbebautes) Ackerland eine geschlossene Schneedecke haben. Für die Berechnung der Stabilität und des Oberflächenwiderstandes im Modul zur Berechnung der trockenen Deposition werden daher die Oberflächenparameter für Schnee anstelle der Parameter für Ackerland oder Gras verwendet. Zusätzlich haben wir für die Berechnung des Oberflächenwiderstands im Modul die Einstellungen für Eis verwendet, wenn die Temperaturen unter -5 Grad Celsius liegen. In dieser Situation wirkt die Schneeoberfläche eher wie eine Eisfläche als eine Wasserfläche. Die allgemeine Auswirkung beinhaltet, dass die Stabilität der Atmosphäre erhöht und die Effizienz bei der Deposition reduziert wird.

### 3.3 Emissionen aus der Holzverbrennung im Privathaushalt

In diesem Schritt haben wir den elementaren und organischen Kohlenstoff (EC, OC) und andere primäre Partikelemissionen für die Holzverbrennung in Privathaushalten auf der Grundlage der nationalen Berichterstattung in den regionalen Inventaren aus GRETA und CAMS durch ein wissenschaftliches bottom-up Emissionskataster für Europa ausgetauscht. Die räumliche Verteilung wird nicht geändert

und stammt aus GRETA. Das bottom-up Emissionskataster beinhaltet für diesen Sektor einen konsistenten Satz von Emissionsfaktoren für die Holzverbrennung und umfasst zusätzlich die Emissionen von kondensierbarem Material (Denier Van Der Gon et al., 2015). Für die Verbrennung fossiler Energieträger im Privathaushalt wurden Emissionsfaktoren aus dem GAINS-Modell verwendet. In diesem wissenschaftlichen Emissionskataster sind die gesamten anthropogenen Emissionen von primären feinen Partikeln (PM<sub>2.5</sub>) in den EU-Mitgliedsstaaten (EU28) von 1345 auf 2286 Kilotonnen gestiegen. Mit diesen Modifikationen erhöhen sich die Holzverbrennungsemissionen in Deutschland um den Faktor 2-3 höher im Vergleich zu den Emissionen aus GRETA. Eine erste Auswertung ergab eine signifikante Verbesserung im Vergleich zu skandinavischen Quellzuordnungsstudien (Denier Van Der Gon et al., 2015).

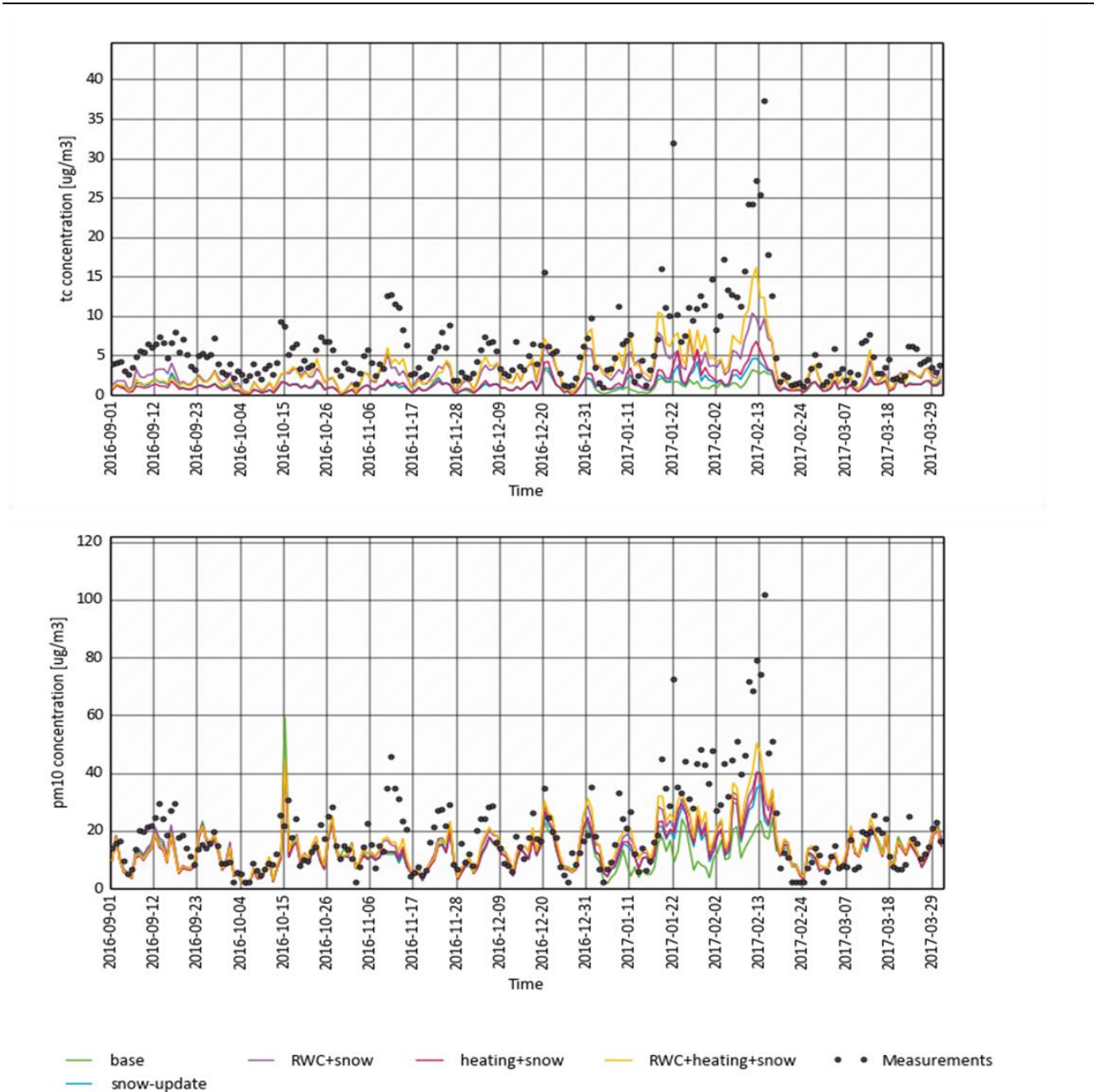
### **3.4 Zeitliche Variabilität der Emissionen aus der Verbrennung im Privathaushalt**

Die zeitliche Variabilität der PM-Emissionen aus Kleinfeuerungsanlagen von Privathaushalten wurden auf der Grundlage des sogenannten Heizgradtage (Heating Degree Days (HDD)) Ansatzes verbessert. In diesem Konzept variieren die Emissionen täglich, basierend auf der Differenz zwischen der tatsächlichen Umgebungstemperatur und einer Referenztemperatur, bei der nicht von einem Heizvorgang ausgegangen wird. Das führt dazu, dass die Emissionen bei Kälteepisoden im Vergleich zu Perioden mit relativ warmem Winterwetter erhöht. Um die Variabilität zu bestimmen, wird zunächst der Wärmebedarf über das ganze Jahr berechnet. Der Tagesanteil der jährlichen Emission wird dann als Verhältnis des Tagesbedarfs zur jährlichen Summe abgeleitet. Nachfolgend (Mues et al., 2014) gehen wir von 20% der Privathaushaltemissionen aus, die nicht mit dem Heizen in Verbindung gebracht werden (Kochen, warmes Wasser), und nehmen eine Referenzumgebungstemperatur von 18°C an, bei der wir davon ausgehen, dass die Heizungsaktivitäten eingestellt werden.

### **3.5 Ergebnisse**

Die drei verschiedenen Modellanpassungen führen insgesamt zu einer Verbesserung der modellierten PM<sub>10</sub>-Konzentration während der PM-Episode im Januar-Februar 2017. Dies zeigt sich in einer verringerten Abweichung zwischen Modell und Messung. Zudem wird die zeitliche Korrelation verbessert. Die in diesem Abschnitt vorgestellten Ergebnisse gelten für das Modellgebiet D2. Abbildung 4 zeigt die Verbesserung für die ländliche Hintergrundstation Niesky, die mit den Optimierungsschritten erreicht werden konnte.

Abbildung 4: Zeitreihen von modelliertem Gesamtkohlenstoff (EC+OC) (oberes Diagramm) und PM10 (unteres Diagramm) am Standort Niesky aus den verschiedenen Modellsimulationen gegenüber den stündlichen Beobachtungen aus der PM-Ost-Kampagne für September 2016 - März 2017. Grün: Basislauf, blau: inkl. Schneeanpassung, violett: inkl. Schneeanpassung und neue Emissionen (RWC=residential wood combustion), rosa: inkl. Schneeanpassung und neue Variabilitätsemissionen, gelb: inkl. aller drei Modellanpassungen



Quelle: TNO, dieses Projekt

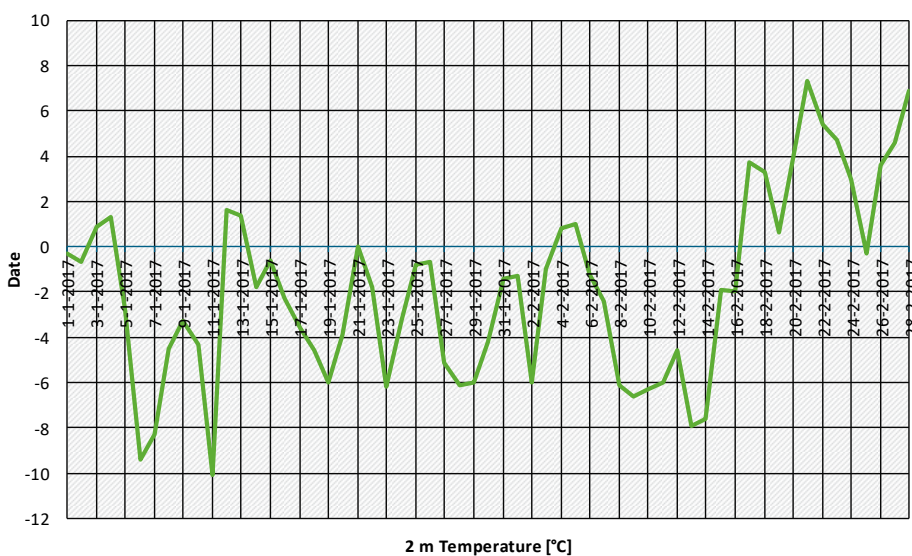
Die Aktualisierung der relevanten Parameter zur Beschreibung einer Schneedecke führt zu einem Anstieg der PM-Konzentration an Tagen, an denen Schnee auf der Oberfläche liegt. Die Nutzung der auf wissenschaftlichen Erkenntnissen beruhenden Holzfeuerungsmissionen führt zu einem Anstieg der Gesamtkohlenstoffkonzentration (TC= EC+OC) in Niesky um den Faktor 2. Ende Januar und Anfang Februar waren die Bedingungen im Osten Deutschlands auch tagsüber relativ kalt (Abbildung 5), so dass der HDD Ansatz diesem Zeitraum einen größeren Teil der Heizungsemissionen von Privathaushalten zuschreibt, was sich an der Zunahme der TC-Konzentrationen im Modell zeigt. Mit allen drei

Modellanpassungen sind wir in der Lage, die Abweichung der TC-Konzentration um etwa die Hälfte zu reduzieren. Auch andere PM Komponenten als TC sind von den Anpassungen betroffen. Dabei liefert insbesondere die Berücksichtigung der Schneedecke den größten Beitrag zur erzielten Modellverbesserung. Dies alles führt zu einer starken Abnahme der modellierten PM<sub>10</sub>-Abweichung bis zu 50% während der Episode. Es ist zu beachten, dass die Aktualisierung der zeitlichen Variabilität der Emissionen auch zu einem Rückgang der Konzentrationen führen kann, wenn die Temperatur über der Norm für die Jahreszeit liegt. Dies zeigt sich im September in der TC-Zeitreihe in Niesky (Abbildung 4).

Abbildung 5 Tagesmittel der Temperatur der Luft in 2m Höhe in Lindenberg

Average daily 2m temperature

Lindenberg



Quelle: Own figure with data from DWD

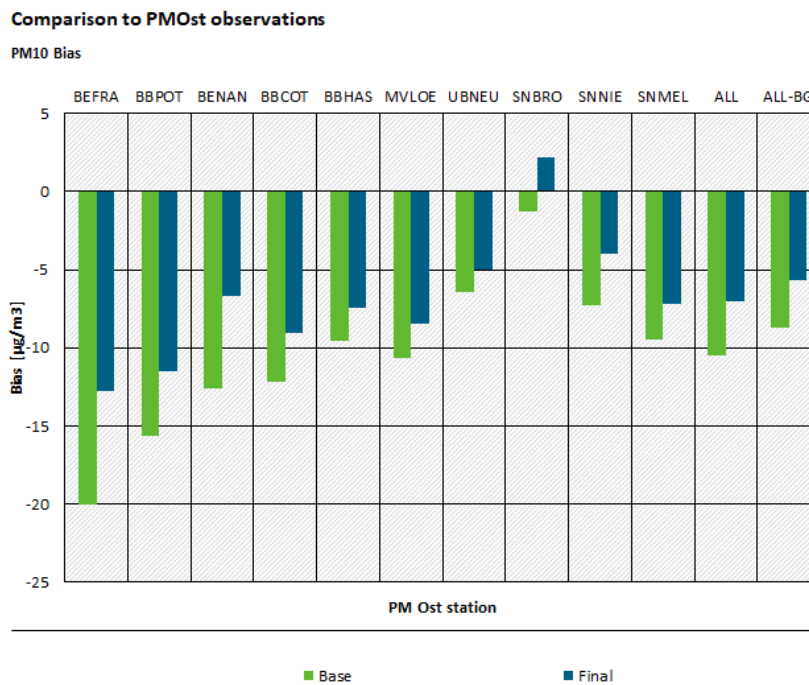
Abbildung 6 Windrichtungsverteilung für Januar bis Februar 2017 in Lindenberg



Quelle: TNO und DWD Daten, dieses Projekt

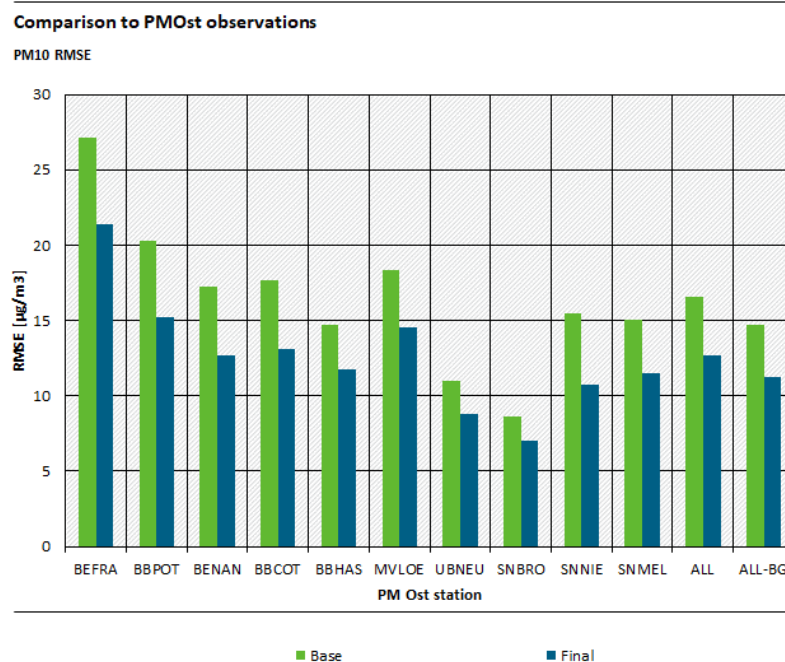
Die Auswirkungen aller drei Anpassungen zusammen auf Abweichung, Root Mean Squared Error (RMSE) und Korrelation für PM10 werden in Abbildung 7, Abbildung 8 und Abbildung 9 dargestellt. Die Anpassungen haben die Abweichung bei allen Messstationen außer Brockau verringert. Diese Station zeigt etwas andere Ergebnisse, da sie sich in einer Höhe von einigen hundert Metern befindet und nicht vollständig repräsentativ für die Modellauflösung ist. Der RMSE ist an allen Stationen gesunken und im Durchschnitt hat sich der Korrelationskoeffizient fast verdoppelt.

Abbildung 7: Abweichung zwischen Modellläufen (Basislauf und Endgültiger Modelllauf mit allen drei Anpassungen) und PM-Ost-Kampagne Beobachtungen, pro Station und Durchschnitt über alle Stationen (ALL), oder über alle Hintergrundstationen (ALL-BG).



Quelle: own figure, TNO

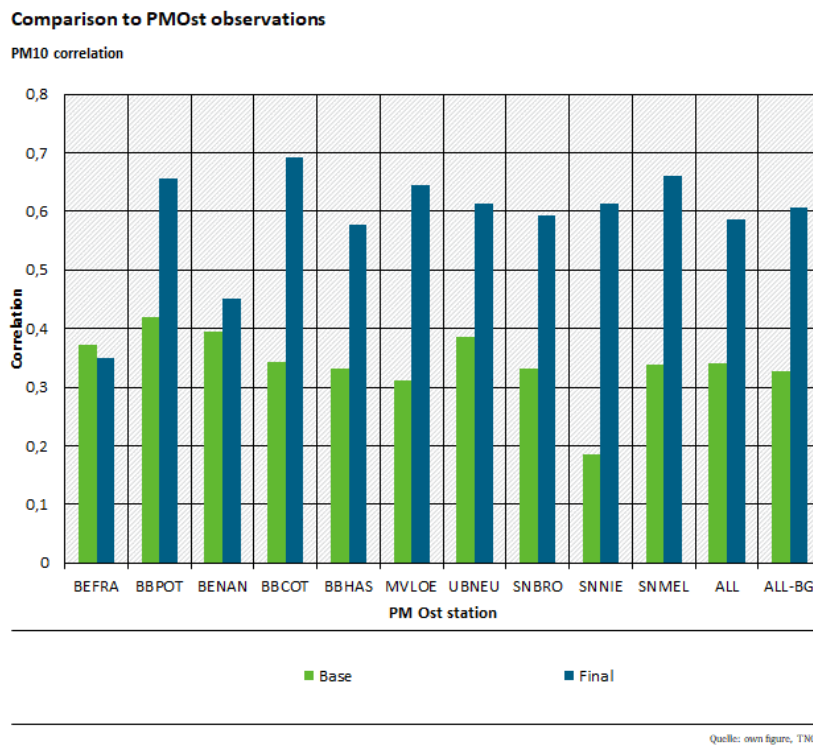
Abbildung 8: RMSE zwischen Modellläufen (Basislauf und endgültiger Modelllauf mit allen drei Anpassungen) und PM-Ost-Kampagne Beobachtungen, pro Station und Durchschnitt über alle Stationen (ALL), oder über alle Hintergrundstationen (ALL-BG).



Quelle: own figure, TNO



Abbildung 9: Zeitliche Korrelation zwischen Modellläufen (Basislauf und Endgültiger Modelllauf mit allen drei Anpassungen) und PM Ost Beobachtungen, pro Station und Durchschnitt über alle Stationen (ALL), oder über alle Hintergrundstationen (ALL-BG).



Quelle: own figure, TNO

Die Auswirkungen aller drei Anpassungen auf die wichtigsten PM-Komponenten sind in Tabelle 5 für alle Hintergrundstationen zusammengefasst. Im Allgemeinen wird die Abweichung reduziert, während der zeitliche Trend verbessert wird. Die Verbesserung ist am größten für OC, was erwartet wird, da die Änderungen hauptsächlich diese Komponente betreffen.

Tabelle 5: Statistik aller Hintergrundstationen

	Bias [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]		RMSE [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]		Correlation	
	Base	Final	Base	Final	Base	Final
PM10	-8,7	-5,7	14,8	12,7	0,33	0,61
EC	-0,09	0,05	0,37	0,46	0,46	0,50
OC	-4,1	-2,2	5,5	3,7	0,19	0,55
NO <sub>3</sub>	-0,13	0,24	2,5	2,4	0,50	0,57
SO <sub>4</sub>	-0,61	-0,49	2,4	2,3	0,26	0,34
NH <sub>4</sub>	-0,17	0,00	1,33	1,15	0,50	0,63

### 3.6 Diskussion

In dieser Studie konnten wir durch Optimierungsschritte die Modellierung von PM<sub>10</sub>-Konzentrationen bei tiefen Temperaturen und stagnierenden Wetterbedingungen deutlich verbessern. Da sich unsere Modellanpassungen auf Heizungsemissionen in Privathaushalten und auf die bessere Beschreibung

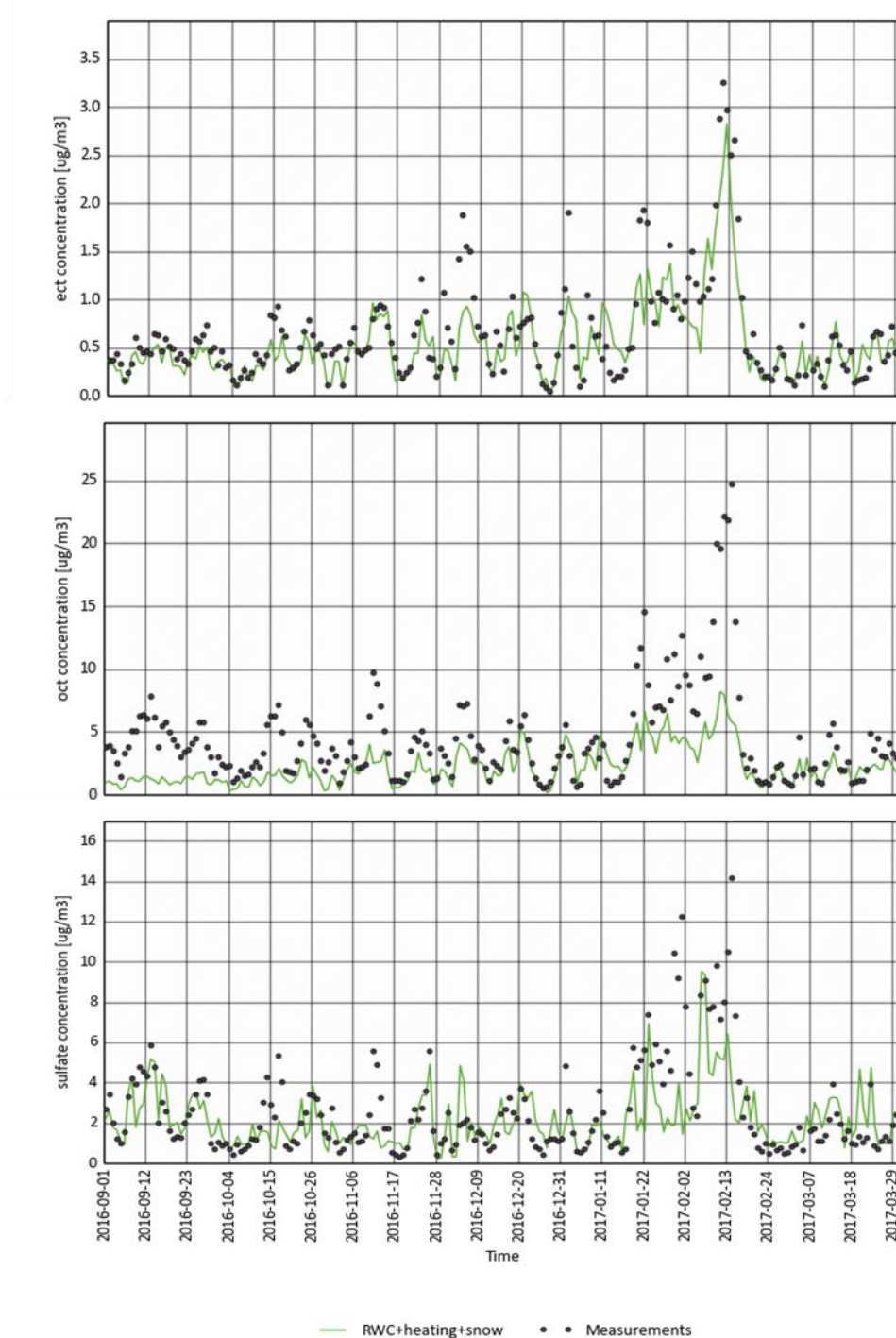
schneebedeckter Flächen im Modell konzentriert haben, zeigen einige andere Episoden keine Verbesserung (z. B. PM<sub>10</sub>-Spitzenwert im November in Niesky). Dies kann ein Hinweis darauf sein, dass wir uns zur Erklärung dieser Spitzenwerte mit anderen Quellenbeiträgen als der privaten Verbrennung befassen müssen.

Obwohl sich die modellierten Niveaus kohlenstoffhaltiger Materialien mit der Anpassung des Emissionskatasters weitgehend verbessert haben, liegt insgesamt immer noch eine Unterschätzung der beobachteten Konzentrationen vor, die auf eine Unterschätzung der OC-Konzentrationen zurückzuführen ist. Die OC-Konzentrationen von Ende November bis Mitte Januar sind gut simuliert, allerdings werden die Beobachtungen während der Episode im Februar 2017 weitgehend unterschätzt, wie für Melpitz in Abbildung 10 zu sehen ist. In diesem Zeitraum ist der Beitrag des grenzüberschreitenden Transports dominant, wie im nächsten Kapitel dargestellt wird. Ein möglicher Grund ist, dass die OC-Emissionen aus der Holzverbrennung für einige Länder im (Süd)osten Deutschlands und deren Transport unterschätzt werden. Auch für die Herbstepisode werden die OC-Konzentrationen unterschätzt. Ein Grund dafür könnten fehlende Quellen von organischen Materialien (z.B. sekundäre organische Stoffe) sein. Die EC-Werte liegen nach den Anpassungen nahe an den Beobachtungswerten. Eine weitere Komponente, die vom Modell während der Episode unterschätzt wird, ist Sulfat (siehe Abbildung 10). Die deutliche Unterschätzung der PM-Masse kann nicht allein auf die zuvor betrachteten Einzelkomponenten zurückgeführt werden. Dies ist ein Indiz dafür, dass andere Komponenten vorhanden sind, die ebenfalls unterschätzt werden. Dazu gehören z. B. Staubemissionen (durch Verkehrsaufwirbelung) und Streusalzeinsätze. Der Vergleich der Quellzuordnungsergebnisse mit den PMF-Ergebnissen in Kapitel 7 gibt Hinweise, welchen Quellen die fehlende modellierte Masse zuzuordnen ist.

Mögliche Ursachen für die verbleibende Unterschätzung in verschiedenen Zeiträumen sind:

- Die Vernachlässigung von sekundären organischen Aerosolen (SOA). Diese wurden aufgrund der großen Unsicherheiten bei der Modellierung nicht in den Modellläufen dieser Studie berücksichtigt. Die sekundäre Bildung von organischem Partikelmaterial (SOA) aus VOC Vorläufern kann eine deutliche Beiträge haben zu den gesamten Partikelemissionen aus Verbrennung speziell nach Transport und Alterung der Luftmassen.
- Organische Stoffe in Form von biologischem Material, wie z.B. Pilzsporen und Pflanzenreste. Empirische Quellzuordnungsstudien, die auf einer Vielzahl von organischen Tracern in Frankreich basieren, zeigen, dass auch primäres biologisches Material etwa 20% im Jahresdurchschnitt zur PM<sub>10</sub> Konzentration beitragen kann (Waked et al., 2014). Diese Beiträge erreichen ihren Höhepunkt während der Wachstumssaison und sind daher auch in der Periode Januar-Februar nicht zu erwarten.
- Unterschätzung der SO<sub>4</sub>-Bildung oder SO<sub>2</sub>-Emissionen. Wir haben gesehen, dass das modellierte SO<sub>4</sub> insbesondere bei hohen Werten noch immer eine erhebliche negative Abweichung aufweist. Eine beschleunigte Bildung von SO<sub>4</sub> wurde bei hohen Schadstoffkonzentrationen, größeren Staubmengen und hoher Luftfeuchtigkeit festgestellt (Harris et al., 2013; He et al., 2014; Wang et al., 2017). Dies könnte ein fehlender Prozess sein, der die verbleibende Unterschätzung von SO<sub>4</sub> erklärt.
- Streusalz- und Sandstreueinsätze (auf verschneiten Straßen). Bei Schneefall oder überfrierender Nässe wird in der Regel Salz oder Sand auf die Straßen gestreut. Diese Partikel können durch den Verkehr auf den Straßen in die Luft gelangen. Dieser Prozess ist nicht im Modell enthalten und könnte während dieser spezifischen Episode mit Schneebedingungen relevant sein.
- Wassergehalt im Aerosol. Die beobachteten PM<sub>10</sub> Massekonzentrationen werden bei 20 Grad Celsius und 50% relativer Luftfeuchtigkeit ermittelt. Unter diesen Bedingungen enthalten die Aerosole Wasser, das zur beobachteten Masse beiträgt. Dieser Aerosol-Wassergehalt ist nicht in den modellierten PM<sub>10</sub> Werten enthalten, sondern wird vom Modell separat berechnet. Für Melpitz wurde für die Episode im Januar-Februar beispielsweise ein Aerosol-Wassergehalt von bis zu 12 µg/m<sup>3</sup> modelliert.

Abbildung 10: Modellierte EC-, OC- und SO<sub>4</sub>-Konzentrationen aus dem Lauf mit allen drei Anpassungen im Vergleich zu den Beobachtungswerten an der Station Melpitz.



Quelle: TNO, dieses Projekt

- Reduzierte Durchmischung bei sehr stabilen kalten Bedingungen. Die Episode im Januar-Februar 2017 zeichnete sich durch kalte Temperaturen und stabile Bedingungen aus, was eine geringe vertikale Vermischung der Schadstoffe und den Anstieg von oberflächennahen PM Konzentrationen zur

Folge hatte. Diese Durchmischung könnte im Modell möglicherweise überschätzt werden. Die aktuelle Modellversion verbessert die vertikale Durchmischung, wenn die Grenzschicht am Nachmittag/Abend auf niedrige Werte fällt. Die verunreinigte Luft wird dann von der Grenzschicht in eine große Speicherschicht transportiert, wo sie über eine große vertikale Fläche verdünnt wird. Bei TNO wird eine neue Modellversion mit einer erhöhten Anzahl von Schichten entwickelt. Es ist vorgesehen, dass diese neue Version die vertikale Durchmischung bei sehr stabilen Wetterbedingungen verringert, da die Luft aus der Grenzschicht in eine flachere Schicht oberhalb transportiert und verdünnt wird, bevor sie am nächsten Tag wieder in die Grenzschicht eindringen kann.

### **3.7 Schlussfolgerungen**

Das Potenzial der drei vorgeschlagenen Optimierungen zur Verbesserung der modellierten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen, maßgeblich über die Quellbeiträge aus dem Bereich der Verbrennung im Privathaushalt, konnte gezeigt werden. Aus diesem Grund wurde für die finalen Quellzuordnungsläufe im Projekt der Ansatz mit allen drei Anpassungen gewählt.

## 4 Optimierung der meteorologischen Eingangsdaten

Hohe Feinstaubkonzentrationen in Europa sind meist mit sehr kalten, stagnierenden Wetterverhältnissen und Ferntransport aus östlichen Richtungen verbunden. Multimodellvergleiche unter ähnlichen Bedingungen zeigen, dass die Unterschätzung der Feinstaubkonzentration ein Charakteristikum moderner Chemietransportmodelle (CTM's) darstellt (Stern et al., 2008). Als Ursache dieser Unterschätzung während stabiler Bedingungen und einer einhergehenden niedrigen Grenzschicht, wurde hierzu die Grenzschichthöhe-Parametrisierung in meteorologischen Modellen ausgemacht (Seibert et al., 2000). Zu diesem Zweck wurde versucht die Meteorologie der planetaren Grenzschicht mit Hilfe des nicht-hydrostatischen meteorologischen Modells COSMO-CLM (Consortium for Small-scale Modeling - Climate Limited-Area Modelling) (Doms et al., 2011; Doms and Baldauf, 2018) zu verbessern.

Für den Zeitraum der PM Ost-Kampagne (Januar-Februar 2017) wurden mit dem COSMO-CLM zwei Evaluierungssimulationen durchgeführt. Zudem wurden verschiedenste Sensitivitätssimulationen berechnet. Der Untersuchungszeitraum der Sensitivitätsstudie entspricht dem Januar 2016. Die Periode Januar 2016 ist durch zwei PM-Episoden charakterisiert, welche sich durch zwei meteorologische Wetterlagen mit östlicher bzw. westlicher Anströmung unterscheiden.

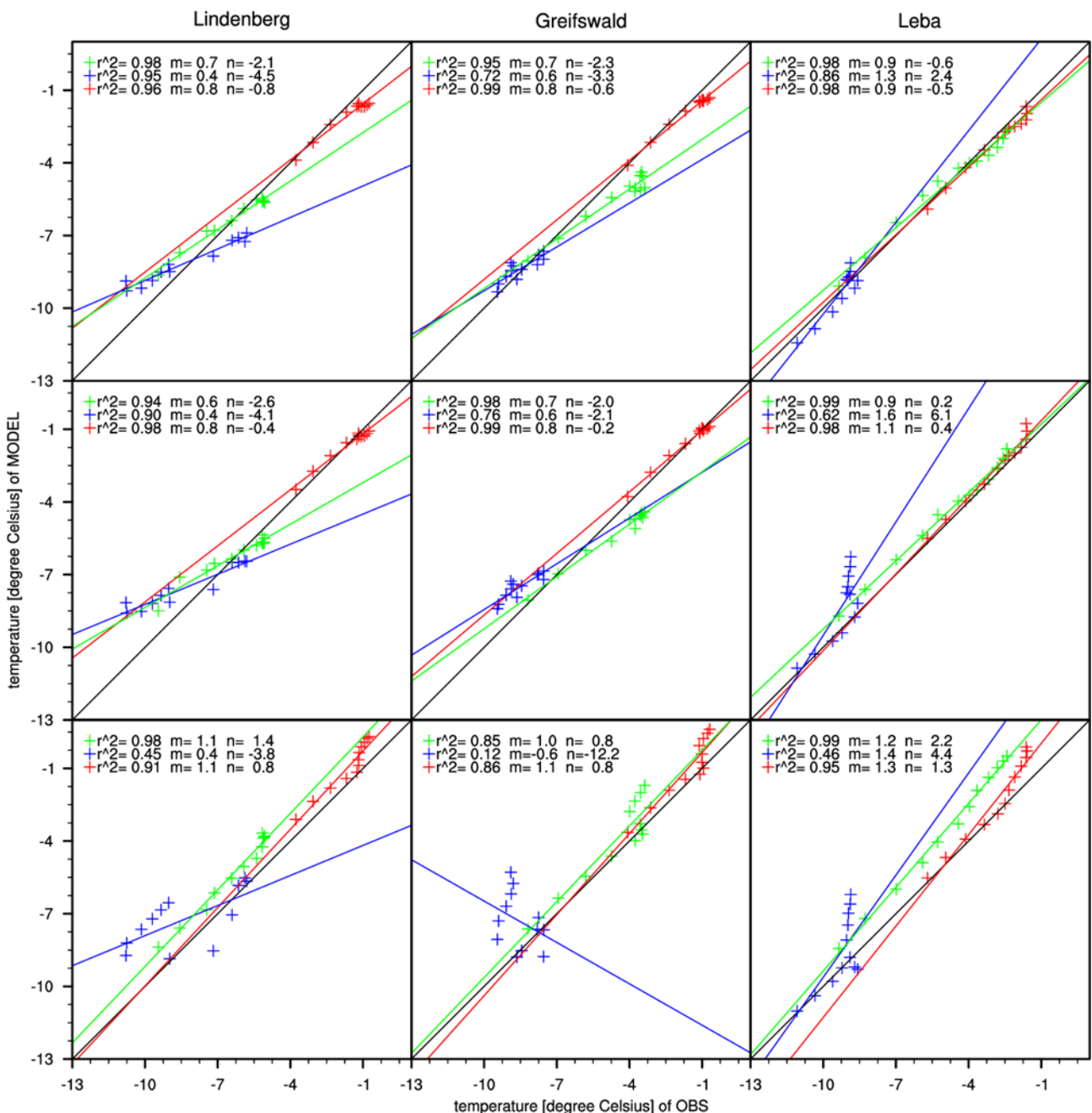
Darüber hinaus wurde das Modell mittels dynamischen Downscalings auf eine Auflösung auf 2,8km skaliert, um mögliche Verbesserungen der Darstellung bei höherer Auflösung zu untersuchen. Als Downscaling wurde das Ein-Wege-Nesting in Verbindung mit dem ERA-Interim Datensatz (Dee et al., 2011) als Antrieb genutzt. Unabhängig von der räumlichen Auflösung werden 40 vertikale Modellschichten definiert, wobei sich mindestens 11 unterhalb von 1 km befinden, um die planetare Grenzschicht detailliert darstellen zu können. Die Region wurde so gewählt, dass sie der DWD COSMO-DE-Konfiguration ähnelt, um die künftige Verwendung von COSMO-DE-Simulationen für das Luftqualitätsmodell LOTOS-EUROS zu ermöglichen.

Die im Projekt erzeugten Simulationen wurden mit meteorologischen Beobachtungen, wie Temperatur und Windgeschwindigkeit aus Radiosonden Daten der Station Lindenberg verglichen und bewertet. Weitere Beobachtungen aus Radiosondendaten von Schleswig, Greifswald, Leba, Legionowa und Wroclaw wurden verwendet. Hauptunterschiede der Evaluationssimulation zeigen sich in der oberflächennahen unteren planetaren Grenzschicht. Das Downscaling der ERA-Interim Daten bewirkt eine signifikant verbesserte Darstellung des Temperaturprofils verbunden mit einer Abkühlung im gesamten Modellgebiet, besonders während kalter Episoden (Abbildung 11). Die unterschätzten Extrema konnten nicht verbessert werden. Ein erneutes Downscaling auf 2,8 km der betrachteten thermodynamischen Variablen erwies sich als recht gering.

Die Sensitivitätssimulationen berücksichtigen unterschiedliche Berechnungen der Grenzschichthöhe im COSMO-CLM. Durch Kombination von 3 verschiedenen Schließungsansätzen der vertikalen Diffusion und 2 verschiedenen Schemata für die Oberflächenflüsse sowie zusätzlicher Steuerparameter, ergeben sich so verschiedenste Ansätze der Grenzschichthöhe-Parametrisierung. Innerhalb des Projektes wurden 12 unterschiedliche Parametrisierungen getestet. Eine detaillierte Beschreibung der im COSMO-CLM implementierten Parametrisierungen sind in Doms et al., (2011) zu finden.

Auswirkungen der Sensitivitätsstudien sind vor allem in den Temperaturprofilen ersichtlich. Je nach gewählter Parametrisierung ist eine Erwärmung oder Abkühlung der unteren planetaren Grenzschicht um ~1 Grad zu verzeichnen.

Abbildung 11 Vergleich der modellierten (Standardkonfiguration) und gemessenen Temperaturprofile im Höhenbereich zwischen 9.98m und 1500m an den Stationen Lindenberg, Greifswald und Leba. Oben: COSMO-CLM bei 2,8 km Auflösung [D3], in der mittleren COSMO-CLM bei 7 km Auflösung [D2] und unten der ERA-Interim-Datensatz. Drei verschiedene Zeiträume sind in folgenden Farben eingeteilt: 01.01.-31.01.2016 [rot], 03.01.-07.01.2016 [blau] und die Periode vom 19.01.-22.01.2016 [grün].



Quelle: FUB, dieses Projekt

Die Auswertung der Grenzschichthöhe ist kompliziert, da diese nicht direkt gemessen werden kann. Um die Bewertung der modellierten Grenzschichthöhe zu ermöglichen, wurden die Grenzschichthöhen von Modell und Beobachtung mit analoger Methode, Bulk-Richardson-Methode (Seibert et al.,

2000), berechnet und verglichen. Die Bulk-Richardson-Methode wird hierbei auch im Modell zur Bestimmung der Grenzschichthöhe verwendet. Als methodenvergleich wurde zusätzlich die Evaluation der Grenzschichthöhe anhand der Rückstreuintensität von Ceilometerdaten am Standort Lindenberg durchgeführt. Die aus der Rückstreuintensität abgeleitete Mischungsschichthöhe liegt gegenüber der Bulk-Richardson-Methode konstant ~300m pro Zeitintervall höher. Der zeitliche Verlauf der Rückstreuintensität ähnelt hingegen stark der Bulk-Richardson-Methode. Die aus diesem Vergleich gewonnenen Erkenntnisse stärken die Wahl des Modellvergleichs mit Mischungsschichthöhen, die nach der Bulk-Richardson-Methode berechnet wurden.

Abbildung 12: Vergleich der COSMO Grenzschichthöhe und Grenzschichthöhe aus Radiosonden Daten in Lindenberg. Die abgeleitete Grenzschichthöhe aus Radiosonden Beobachtungen (OBS), die COSMO-CLM Evaluierungssimulation (CCLM-REF) und die COSMO-CLM Sensitivitätssimulationen (CCLM-OPT, CCLM-LKZ) werden über das zeitliche Mittel (durchgezogene Linie) und die Varianz (gestrichelte Linie) dargestellt.



Quelle: M. Thürkow, IfM-FUB

Der Modellvergleich zeigt, dass COSMO-CLM in der Lage ist, die beobachtete Grenzschichthöhe in ihrem Betrag und dem zeitlichen Verhalten widerzugeben, was in Abbildung 12 für den Beobachtungsstandort Lindenberg ersichtlich wird. Mit Hilfe des dynamischen Downscalings kann die Simulation der Mischschichthöhe im Vergleich zu ERA-Interim deutlich verbessert werden. Insgesamt wird die die Höhe der Mischungsschicht in den Simulationen jedoch unterschätzt. Die Verbesserung mit verschiedenen Grenzschichtparametrierungen ist sehr klein. Basierend auf einer statistischen Auswertung dieser Daten (nicht dargestellt) wurde als geeignetste Mischungsschichtparametrisierung für das COSMO-CLM der 1-D TKE Schließungsansatz, das TKE-basierte Schema für den Oberflächenfluss, eine

turbulente Länge von 50 m und ein minimaler vertikaler Diffusionskoeffizient von  $0,1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$  ausgewählt. Die gewählte Sensitivitätssimulation liefert eine verbesserte Darstellung der Kaltwetterlage bei östlicher Anströmung gegenüber der COSMO-CLM-Referenzsimulation.

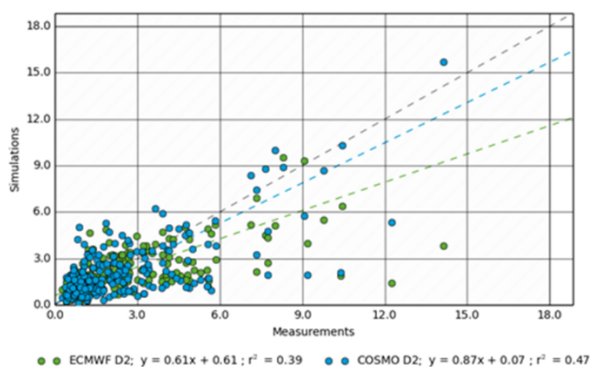
Aus dieser Analyse kann geschlussfolgert werden, dass bei der Bewertung und Analyse der Mischschichthöhe darauf zu achten ist, welche Ableitungsmethode verwendet wird. Es handelt sich bei der Mischschichthöhe um eine diagnostische Größe. Anstelle der Höhe der Mischschicht könnten somit direkt die physikalischen Parameter an das LOTOS-EUROS-Modell übergeben werden. In Zukunft sollte der Ansatz darin bestehen, die vertikale Gitter-Struktur von COSMO-CLM in LOTOS-EUROS zu übernehmen.

(Abbildung 13) zeigt die Unterschiede durch die Verwendung verschiedener meteorologischer Eingangsdaten. Die Meteorologie der COSMO-Simulation verbessert die Darstellung der Sekundäraerosole gegenüber der ECMWF-Meteorologie. Die Simulation der primären PM-Komponenten wird hingegen mit der COSMO Meteorologie teilweise verschlechtert. Dieser gegenläufige Effekt führt zu einer nahezu ähnlichen PM10-Gesamtkonzentration. Um dies näher zu beleuchten, sind weitere Untersuchungen notwendig.

Abbildung 13: Streudiagramme von Schadstoffkonzentrationen der Simulationen mit COSMO-Meteorologie und ECMWF-Meteorologie gegenüber der Beobachtung für Melpitz. Oben links: Sulfat, oben rechts: Gesamtkohlenstoff und unten links: PM10.

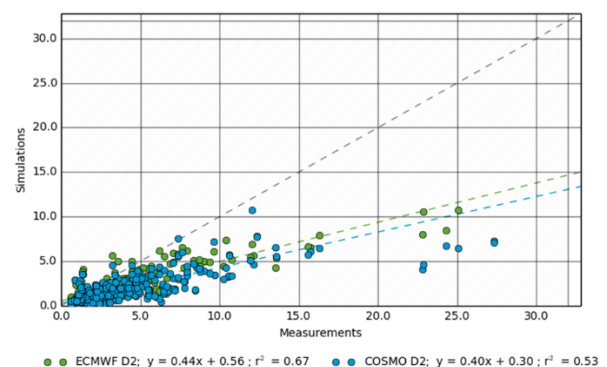
Model comparison SNMEL; run domain: D2; tracer: sulfate [ug/m3]

Daily measurements vs simulations



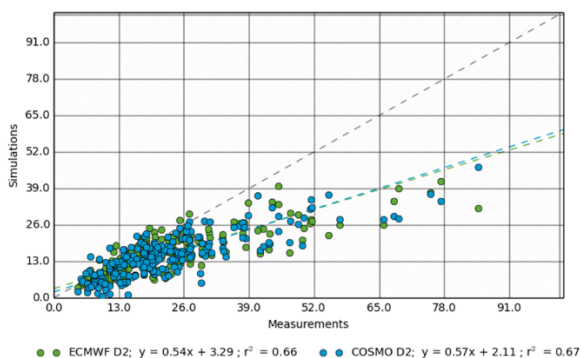
Model comparison SNMEL; run domain: D2; tracer: tc [ug/m3]

Daily measurements vs simulations



Model comparison SNMEL; run domain: D2; tracer: pm10 [ug/m3]

Daily measurements vs simulations



Quelle: TNO, dieses Projekt



## 5 Simulationen der Quellaufteilung für die PM-Ost-Kampagne

Mit den zuvor in Kapitel 3 beschriebenen Modelloptimierungen haben wir finale Quellzuordnungssimulationen für den PM-Ost Kampagnenzeitraum durchgeführt, um die Länder- und Sektorbeiträge an der PM-Konzentration im Osten Deutschlands zu bewerten. Die Modellergebnisse wurden mit PM-Ost Beobachtungen ausgewertet und die Quellzuordnung mit den PMF-Ergebnissen verglichen.

### 5.1 Ergebnisse

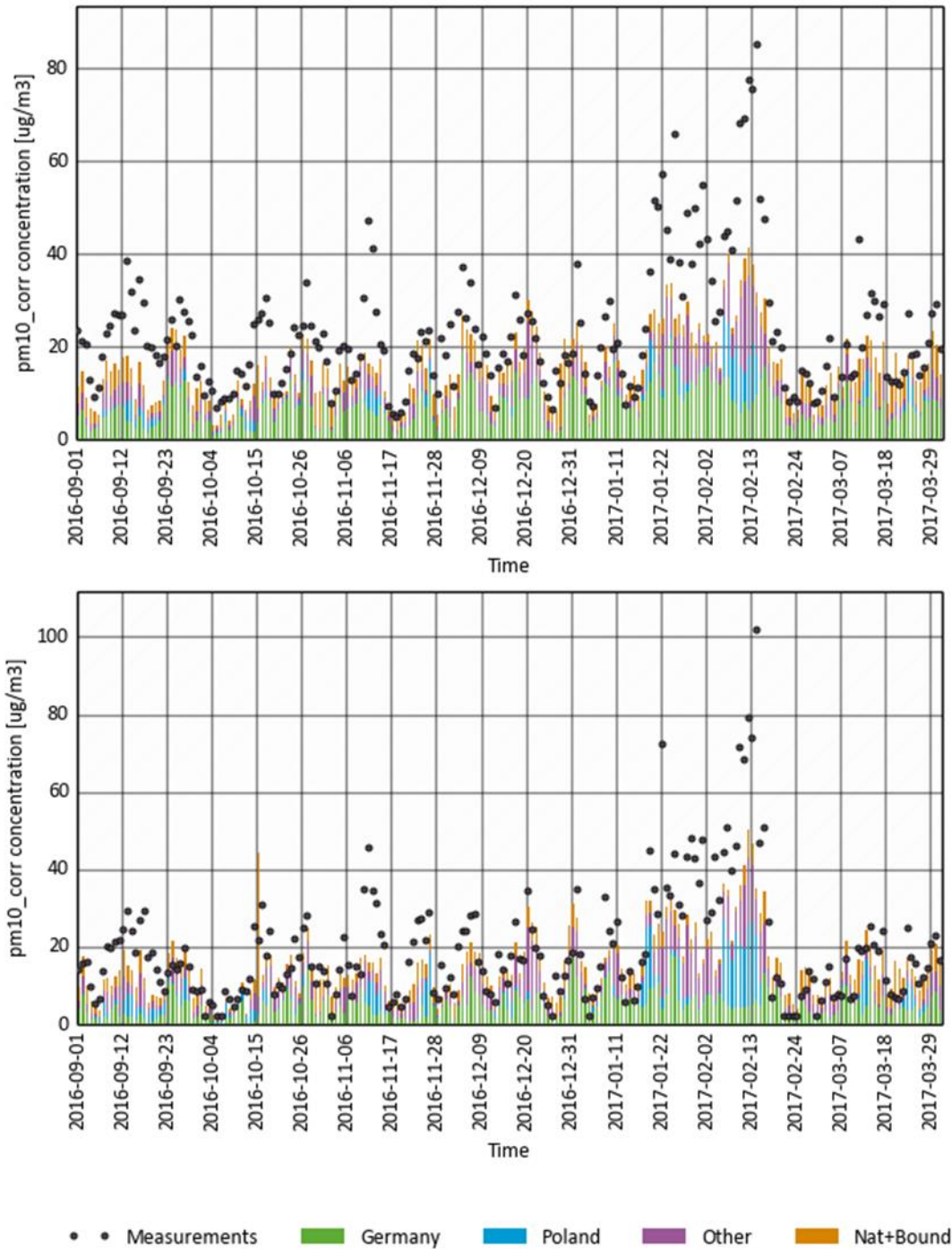
In diesem Abschnitt werden die modellierten Länder- und Sektor-beiträge zu den PM<sub>10</sub>-Konzentrationen während der PM Ost-Kampagne vorgestellt.

Die ersten Monate des Jahres 2017 waren gekennzeichnet durch zwei Episoden mit PM-Konzentrationen über dem EU-Grenzwert von 50 µg/m<sup>3</sup> insbesondere in der zweiten Januar- und der ersten Februarhälfte. Abbildung 14 zeigt die Zeitreihen der modellierten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen an den Stationen Melpitz und Niesky sowie die modellierten Beiträge aus Deutschland, Polen, anderen Ländern und den Grenzen des Modellgebietes. Die Herkunftsregion kann in den verschiedenen Phasen einer Periode mit Grenzwertüberschreitungen unterschiedlich sein. Aus Polen und anderen Ländern außerhalb Deutschlands sind erhebliche Beiträge zu verzeichnen, insbesondere in der Februar-Periode, in der der nationale Beitrag gering ist. Der Beitrag der Länder weiter südlich oder östlich von Polen ist ebenso relevant wie der polnische Beitrag. Abbildung 15 zeigt die erhöhten Konzentrationen über Polen, der Tschechische Republik, der Slowakei, und dem Osten Deutschlands für das D2 und D3 Modellgebiet am 13. Februar 2017. Der Ferntransport durch den Ostwind aus den Nachbarländern nach Deutschland ist ebenfalls deutlich sichtbar.

Wie im vorherigen Abschnitt dargestellt, unterschätzt das Modell die beobachteten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen während der Episode. Um dies zu veranschaulichen, erweitern wir die nachfolgenden Darstellungen der durchschnittlichen Quellbeiträge um den Beitrag der nicht vom Modell erfassten Masse, die sich aus der Differenz der PM<sub>10</sub> Beobachtungs- und Modellwerte ergibt. Diese nicht modellierte Masse umfasst alle Modellfehler, einschließlich nicht modellierter Quellbeiträge wie Streusalz und SOA sowie Unter- und Überschätzungen der enthaltenen Quellen.

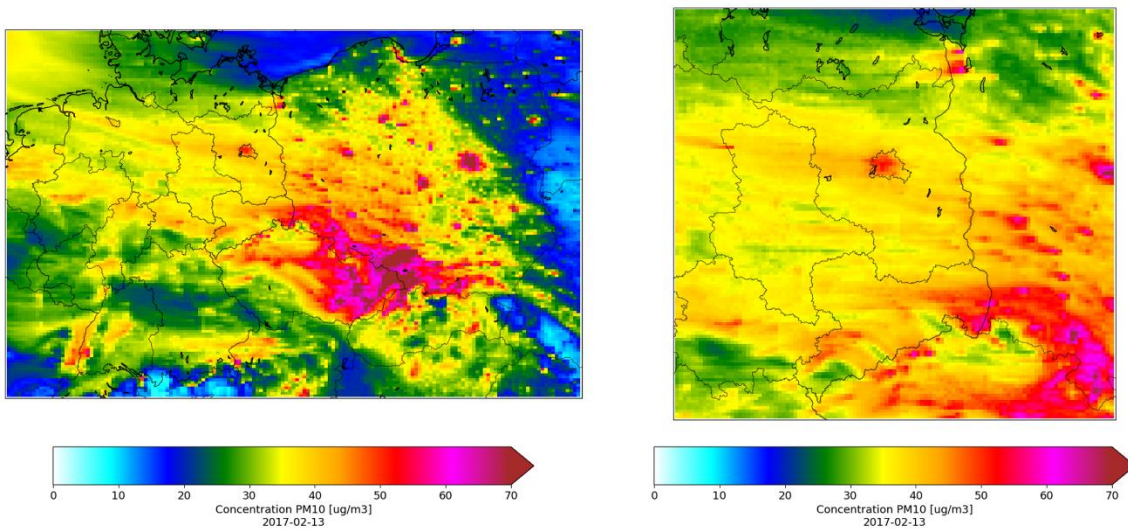
Abbildung 14: Zeitreihen der PM<sub>10</sub>-Konzentrationen in Melpitz (oben) und Niesky (unten) sowie Beiträge aus Deutschland, Polen, anderen Ländern und von Feinstaub natürlichen Ursprungs durch die Ränder des äußeren Modellgebietes. Die Daten stammen aus der Simulation für das Modellgebiet D2.

Country contributions



Quelle: TNO, dieses Projekt

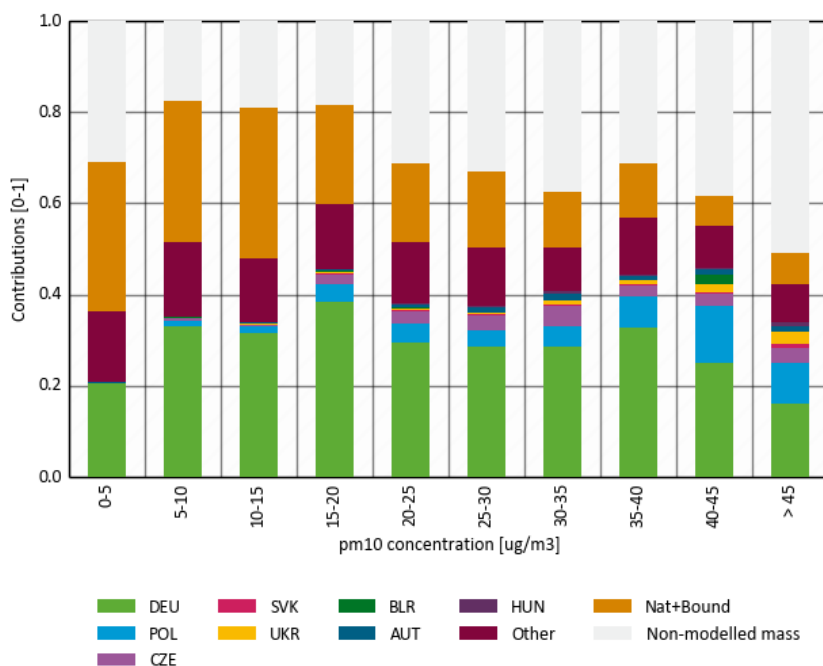
Abbildung 15: PM10-Konzentration am 13. Februar 2017 für das D2 (links) und D3 (rechts) Modellgebiet.



Quelle: TNO, dieses Projekt

In Abbildung 16 sind die relativen Beiträge aus Deutschland, Polen und anderen Ländern für verschiedene modellierte PM10-Konzentrationsklassen für die Station Melpitz dargestellt. Der Beitrag des grenzüberschreitenden Transports nimmt bei höheren Konzentrationen zu, wobei der Beitrag aus Polen bei zunehmender Konzentration generell ansteigt. Bei den höchsten Konzentrationen übersteigen die Beiträge Polens und anderer osteuropäischer Länder, einschließlich der Tschechischen Republik und der Ukraine, die Beiträge aus Deutschland selbst.

Abbildung 16: Länderbeiträge in verschiedenen modellierten PM<sub>10</sub> Konzentrationsklassen für Melpitz im Zeitraum von September 2016 bis März 2017.



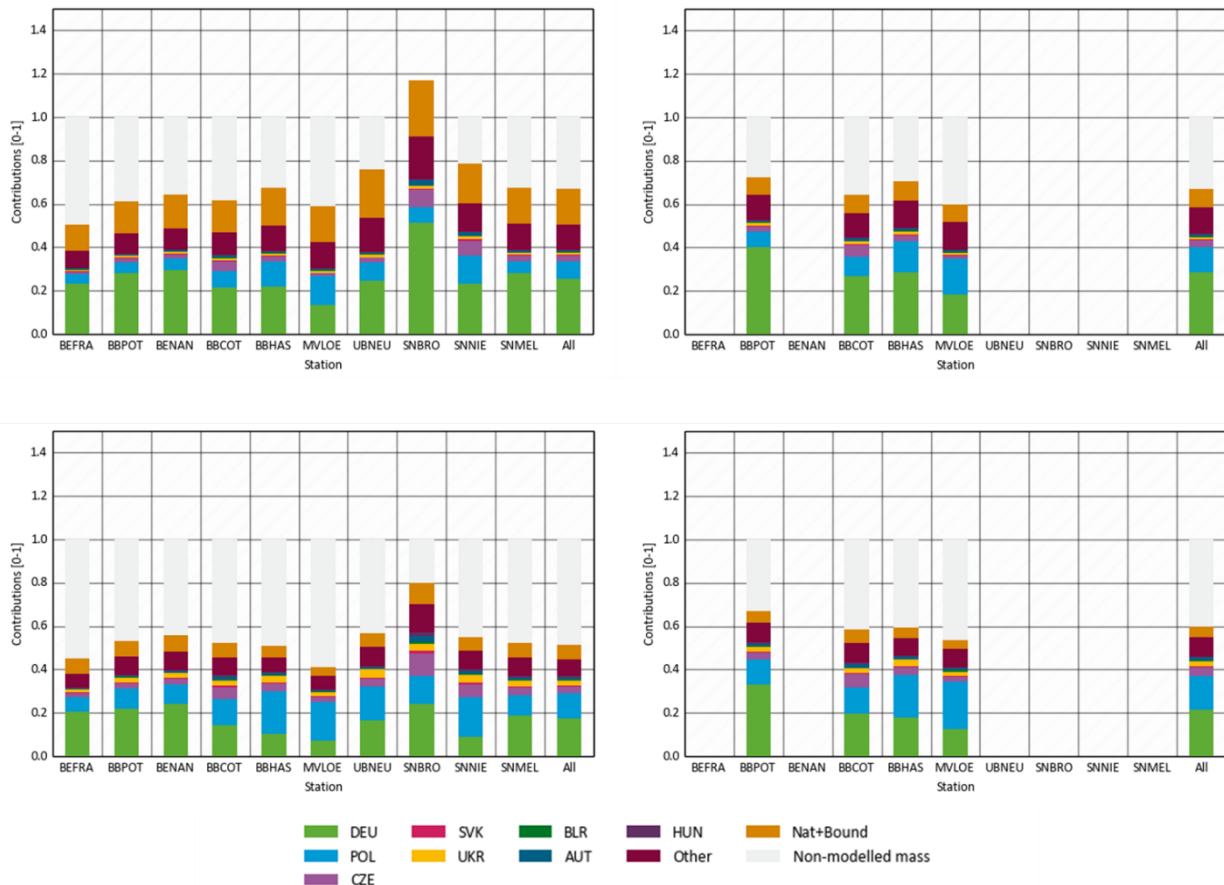
Quelle: TNO, dieses Projekt

Die Länderbeiträge für alle PM Ost Stationen sind in Abbildung 17 dargestellt. Dabei wird zwischen dem Durchschnitt über den gesamten Untersuchungszeitraum und dem Durchschnitt für Episoden (d.h. alle beobachteten Konzentrationen über  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) unterschieden. Es ist offensichtlich, dass für die Episoden der relative Beitrag des grenzüberschreitenden Transports (Polen und andere Länder zusammen) größer ist als im Mittel über den gesamten Untersuchungszeitraum. Der grenzüberschreitende Beitrag übersteigt den nationalen deutschen Beitrag mit Ausnahme der beiden Stationen in Berlin und Potsdam. An einigen Stationen trägt Polen gleich oder stärker als andere osteuropäische Länder zusammen (Niesky, Neuglobsow, Löcknitz und Hasenholz) zu den hohen Konzentrationen in Episoden bei. Für die mehr landeinwärts gelegenen Stationen ist der deutsche Beitrag ebenso wichtig wie der polnische Beitrag.

Die relativen Gesamtbeiträge für die Station Brockau übersteigen 1, da das Modell die beobachteten Werte überschätzt. Diese Station zeigt etwas andere Ergebnisse in Bezug auf das Verhältnis von modellierten zu beobachteten Werten, da sie sich in einer Höhe von einigen hundert Metern befindet und nicht vollständig repräsentativ für die Modellauflösung ist.

Für 4 der 10 Stationen liegen auch  $\text{PM}_{2.5}$  Beobachtungen vor. Für  $\text{PM}_{2.5}$  ist der lokale deutsche Beitrag größer als für  $\text{PM}_{10}$  (siehe Abbildung 17). Andererseits sind der Beitrag natürlicher Quellen und der Schadstoffeintrag durch die Grenzen der Modelldomäne geringer. Letzteres lässt sich durch den Einfluss von Wüstenstaub erklären, der stärker zu  $\text{PM}_{10}$  beiträgt als zu  $\text{PM}_{2.5}$ . Auch hier ist der polnische Beitrag für die Perioden mit hohen  $\text{PM}_{2.5}$ -Konzentrationen größer. Für Potsdam und Cottbus übersteigen die kombinierten Beiträge aus anderen Ländern als Deutschland und Polen den Beitrag Polens.

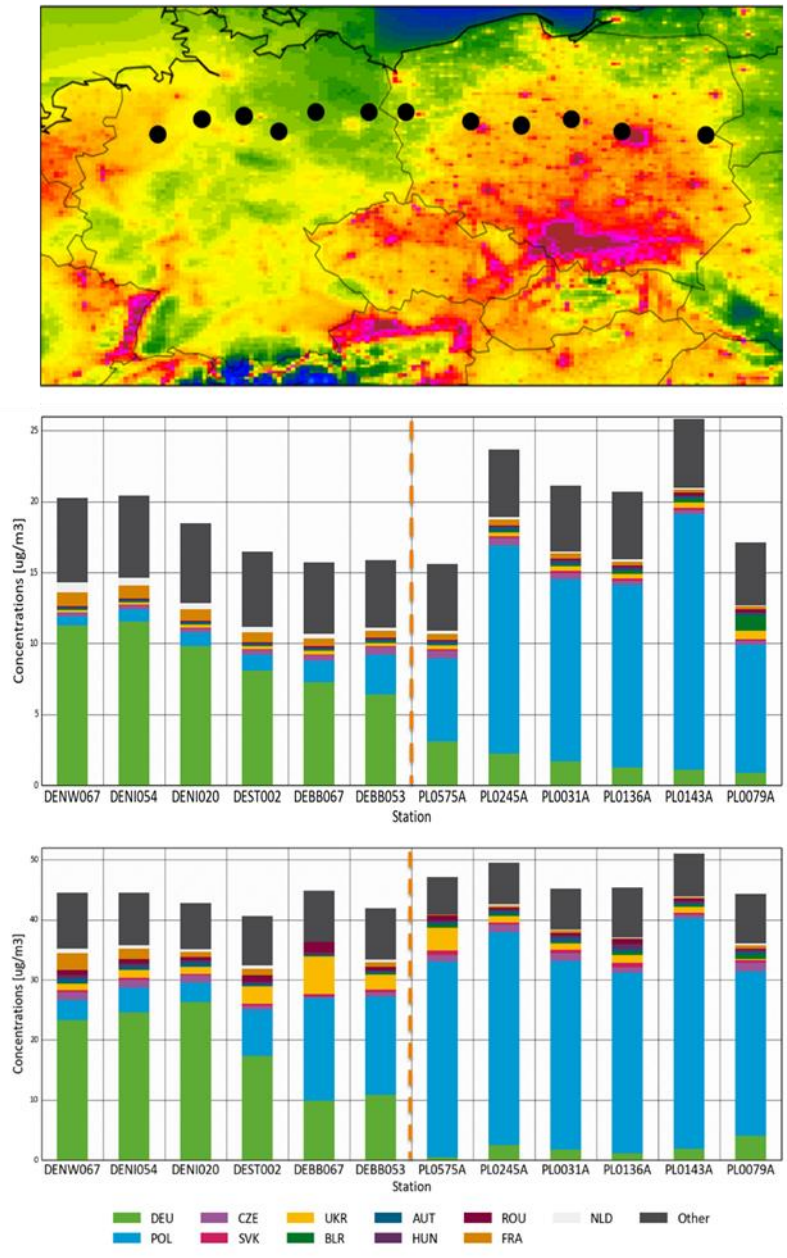
Abbildung 17: Länderbeiträge für alle PM Ost-Stationen zu allen modellierten PM<sub>10</sub>- (oben links) und PM<sub>2,5</sub>-Konzentrationen (oben rechts) und zu allen beobachteten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup> (unten links) und allen beobachteten PM<sub>2,5</sub>-Konzentrationen über 25 µg/m<sup>3</sup> (unten rechts) im September 2016 bis März 2017 für den Lauf auf dem D1 Modellgebiet.



Quelle: TNO, dieses Projekt

Abbildung 18 stellt die Länderbeiträge für eine Reihe von deutschen und polnischen Stationen dar, die sich auf einem Transekt von Westdeutschland nach Ostpolen befinden. Es gilt zu beachten, dass für die Ergebnisse, die sich auf die Perioden konzentrieren, die Anzahl der Beobachtungstage pro Station unterschiedlich sind, da sie nicht alle die gleiche Anzahl von Überschreitungstagen haben. Im Allgemeinen sinkt der deutsche Beitrag und der polnische steigt von West nach Ost an. Im Gegensatz zu den Stationen in Deutschland sind an den östlichsten Stationen in Polen (auf der anderen Seite der polnischen Hauptquellengebiete) die höchsten Konzentrationen nicht bei Ostwinden, sondern bei Südwestwinden zu beobachten, wenn verunreinigte Luft aus dem Land selbst zu den Stationen transportiert wird, so dass leicht erhöhte deutsche Beiträge sichtbar sind. In Polen ist der polnische Beitrag an allen Stationen dominant. Nur für die Station, die der deutschen Grenze am nächsten liegt, wird ein signifikanter deutscher Beitrag unter Berücksichtigung aller modellierten Werte im Untersuchungszeitraum errechnet.

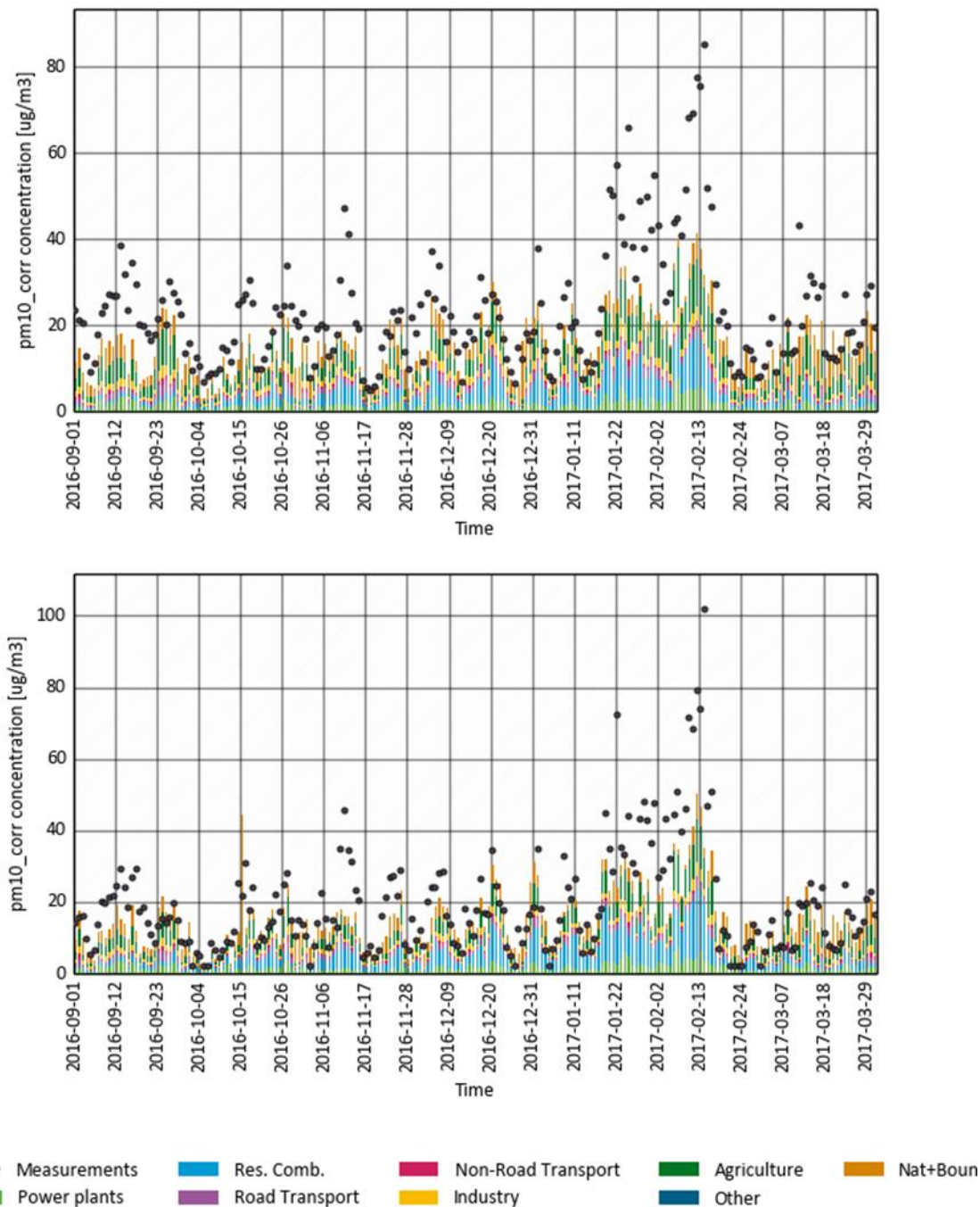
Abbildung 18: Länderbeiträge für alle Stationen auf einem Transekt von Westdeutschland nach Ostpolen (oberes Diagramm) zu allen modellierten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen (mittleres Diagramm) und zu allen beobachteten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup> (unteres Diagramm) zwischen September 2016 und März 2017.



Quelle: TNO, dieses Projekt

Die Ergebnisse der sektoralen Quellzuordnungssimulation werden in Abbildung 19 für September 2016 bis März 2017 an den Stationen Melpitz und Niesky dargestellt. Der dominante Beitrag der Winterperioden Januar-Februar stammt aus der Privathaushaltsverbrennung. Die Zeitreihe veranschaulicht die großen saisonalen Schwankungen zulasten der Wohnfeuerung, da ihr Beitrag in den modellierten Zeitreihen im September kaum präsent ist. Auch der Energiesektor trägt variabel bei, da sein Beitrag in Zeiträumen mit aus Osteuropa kommenden Luftmassen deutlich größer ist. Insgesamt ist der Beitrag der Landwirtschaft, der überwiegend aus Ammoniumnitrat besteht, der größte Beitrag und immer präsent.

Abbildung 19: Zeitreihen der PM<sub>10</sub>-Masse in Melpitz (oben) und Niesky (unten) und Beiträge aus verschiedenen Quellsektoren.

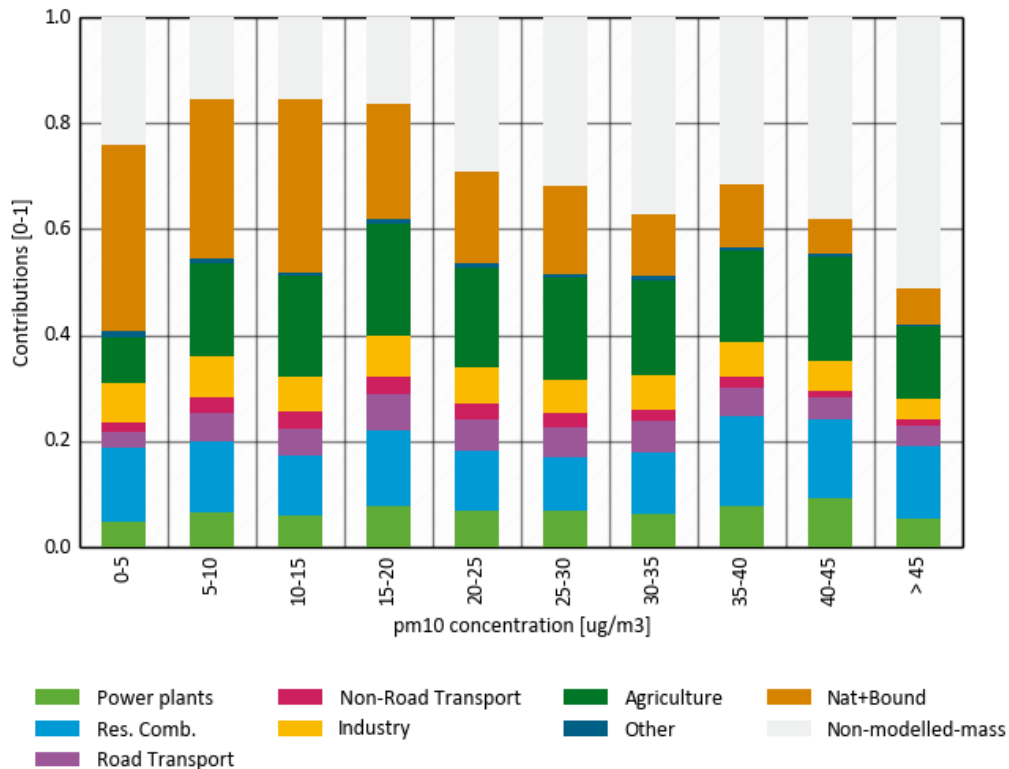


Quelle: TNO, dieses Projekt

Relative Sektorbeiträge für verschiedene modellierte PM<sub>10</sub>-Konzentrationsklassen werden für Melpitz in Abbildung 20 dargestellt. Der relative Beitrag der natürlichen Quellen und des Ferntransports durch die Grenzen des Modellgebietes, sind bei niedrigeren Konzentrationen am größten. Aufgrund der unterschiedlichen synoptischen Situationen, die mit den Episoden zusammenhängen, werden ihre Beiträge mit steigendem PM-Wert geringer. Bei höheren Konzentrationen sind als dominante Quellen Kleinf Feuerungsanlagen und Landwirtschaft zu nennen. Sekundäre Beiträge aus Kraftwerken, Industrie und Verkehr (Straße und Non-Road) sind sichtbar. Der relative Anteil der modellierten Werte, der den

Kleinfeuerungsanlagen zugeschrieben werden kann, steigt im Vergleich zu den anderen Sektoren für die höchsten Konzentrationsbereiche. Dies ist auf den Zusammenhang zwischen hohen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen und kalten Temperaturen zurückzuführen. Im Winter werden die Emissionen der Privathaushaltheizung höher, was ihren Anteil an der gesamten PM<sub>10</sub>-Konzentration erhöht.

Abbildung 20: Sektorbeiträge in verschiedenen PM<sub>10</sub> Konzentrationsbereichen für Melpitz für September 2016 bis März 2017



Quelle: TNO, dieses Projekt

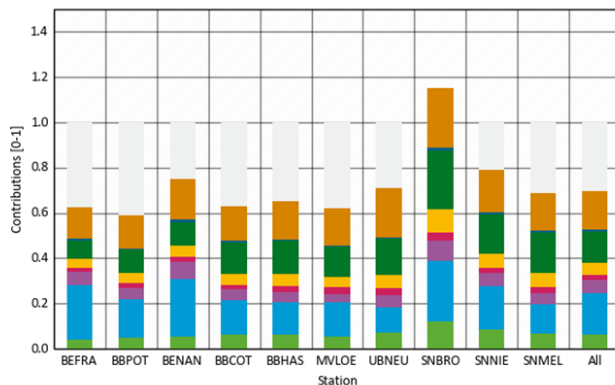
Die PM<sub>10</sub> Beiträge aus der sektoralen Quellzuordnung sind für alle PM-Ost Stationen (Abbildung 21, Diagramme links) sehr ähnlich, mit dominanten Beiträgen aus der Landwirtschaft und der Hausfeuerung und einem zunehmenden Anteil dieser Quellen für Episoden mit hohen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen. Für PM<sub>2.5</sub> sind die relativen Beiträge ebenfalls recht ähnlich (Abbildung 21, rechte Diagramme). Wie bereits erwähnt, ist der Beitrag natürlicher Quellen und des Ferntransportes von PM in die Modellregion etwas geringer. Andererseits ist der Beitrag von Landwirtschaft und Hausfeuerung etwas größer, da diese Quellen meist kleinere Partikel (BC und sekundäre anorganische Aerosole) im PM<sub>2.5</sub>-Größenbereich emittieren oder zur Bildung kleinerer Partikel führen.



Abbildung 21: Beiträge aus der sektoralen Quellzuordnung für alle PM-Ost Stationen zu allen modellierten PM<sub>10</sub> (oben links) und PM<sub>2,5</sub> (oben rechts) Konzentrationen und zu allen beobachteten PM<sub>10</sub> Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup> (unten links) und allen beobachteten PM<sub>2,5</sub> Konzentrationen über 25 µg/m<sup>3</sup> (unten rechts) zwischen September 2016 und März 2017.

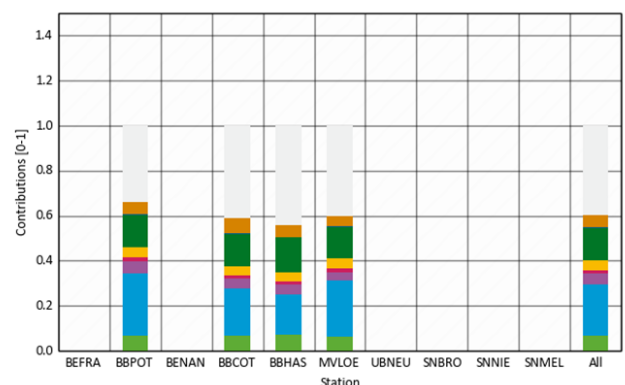
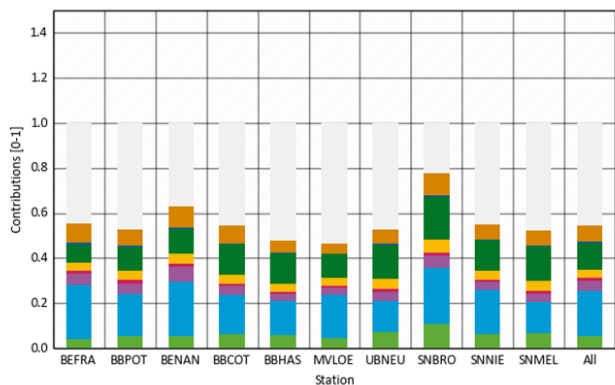
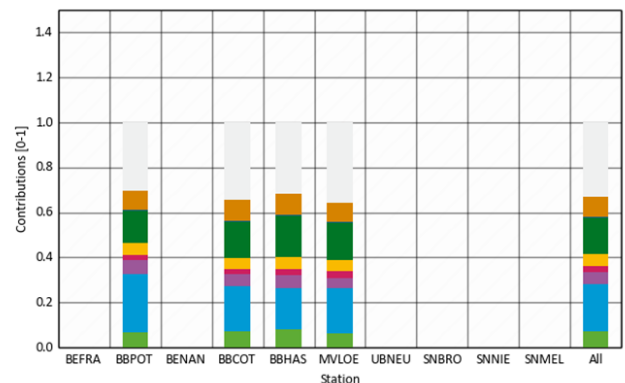
Source contributions per station, run domain: D2; tracer: pm10 [ug/m3]

Sector contributions including non-modelled mass



Source contributions per station, run domain: D2; tracer: pm25 [ug/m3]

Sector contributions including non-modelled mass

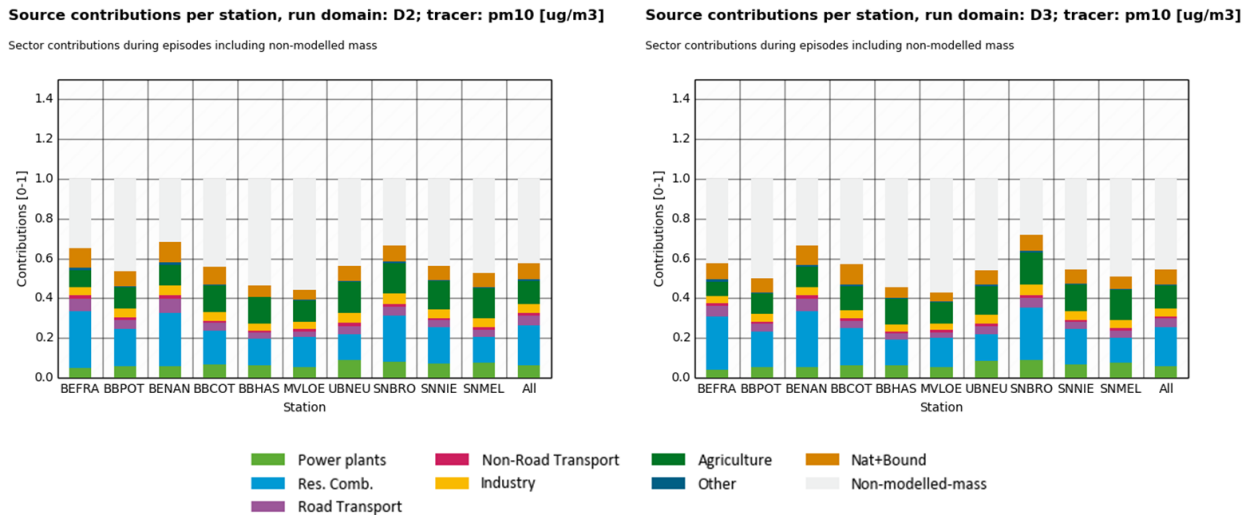


Quelle: TNO, dieses Projekt

Wie in Kapitel 4 dargestellt, führt die Verwendung der COSMO-Meteorologie anstelle der ECMWF-Meteorologie zu ähnlichen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen. Ebenso ändern sich die modellierten Quellbeiträge unter Verwendung der verschiedenen meteorologischen Eingangsdatensätze nur unwesentlich (Abbildung 23).

Auch die Erhöhung der Auflösung von ~7x7 km auf 2x2 km ändert nichts an den Schlussfolgerungen. Es sollte erwähnt werden, dass das der Modellauf für das D3 Gebiet mit einer Auflösung von 2x2 km aufgrund des Fokus auf die hohe PM10 Werte, nur für den kürzeren Zeitraum von Dezember 2016 - Februar 2017 durchgeführt wurde.

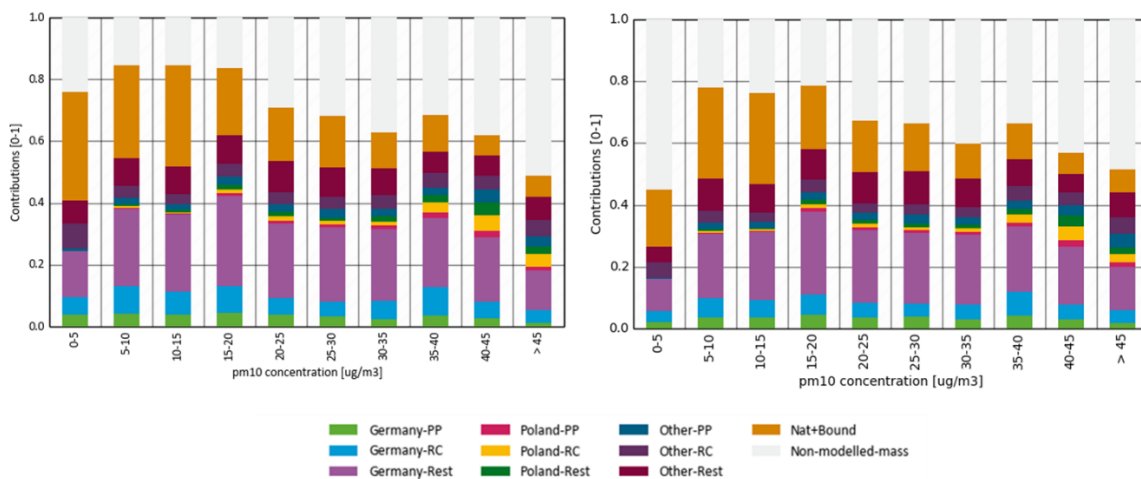
Abbildung 22: Beiträge aus der sektoralen Quellzuordnung für alle PM Ost-Stationen zu allen beobachteten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup> zwischen September 2016 und März 2017 für COSMO D2 (linkes Diagramm) und zwischen Dezember 2016 und Februar 2017 für COSMO D3 (rechtes Diagramm).



Quelle: TNO, dieses Projekt

Abbildung 23 zeigt die kombinierten Ergebnisse aus Sektor- und Länderbeiträgen am Standort Melpitz. In diesem Lauf wurden alle Länderbeiträge mit Ausnahme von Deutschland und Polen zusammengefasst. Bei höheren PM<sub>10</sub>-Konzentrationen sinkt der deutsche Beitrag, während der polnische Beitrag, der im Wesentlichen aus privaten Verbrennungsquellen stammt, ansteigt. Auch der Beitrag aus anderen Ländern nimmt zu, wenn man berücksichtigt, dass der modellierte Teil abnimmt. Die Ergebnisse für die Rechnungen mit COSMO-Meteorologie (rechte Grafik) und ECMWF-Meteorologie sind mit Ausnahme des niedrigsten Konzentrationsbereichs ähnlich. Dieser Konzentrationsbereich ist allerdings sehr empfindlich gegenüber kleinen Änderungen der Konzentrationen und enthält nur wenige Beobachtungs-/Modelldatenpunkte.

Abbildung 23: Länder- und Sektorbeiträge in Abhängigkeit von der modellierten Konzentrationsklassen für Melpitz für September 2016 bis März 2017. Verwendung von ECMWF (links) oder COSMO-Meteorologie (rechts).



Quelle: TNO, dieses Projekt

Tabelle 6 zeigt die kombinierten Ergebnisse aus Branchen- und Länderbeiträgen ermittelt über alle Hintergrund Stationen und Episoden mit beobachteten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup>. Deutschland leistet den größten Beitrag zu seinen PM<sub>10</sub>-Konzentrationen. Der grenzüberschreitende Beitrag Polens und anderer osteuropäischer Länder übersteigt denjenigen Deutschlands selbst. Die größten Beiträge zum modellierten PM leisten die Bereiche Landwirtschaft und Hausfeuerung.

Tabelle 6: Übersicht über die Sektor- und Länderbeiträge in µg/m<sup>3</sup>, gemittelt über alle Hintergrund PM-Ost Stationen (außer Brockau) für Episoden mit beobachteten PM<sub>10</sub>-Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup>.

Quellsektor	Deutschland	Polen	Andere Länder	Nat + Grenze	Nicht-model-lierte Masse	Insgesamt
Energiegewinnung aus Kohle	0,6	0,9	1,2	0,0	0,0	<b>2,7</b>
Energiegewinnung aus Biomasse	0,1	0,0	0,1	0,0	0,0	<b>0,2</b>
Energiegewinnung aus anderen Quellen	0,3	0,1	0,4	0,0	0,0	<b>0,7</b>
Kohleverbrennung in Privathaushalten	0,3	2,1	0,3	0,0	0,0	<b>2,7</b>
Biomasseverbrennung in Privathaushalten	3,2	1,3	1,9	0,0	0,0	<b>6,3</b>
Verbrennung anderer Energieträger in Privathaushalten	0,2	0,1	0,3	0,0	0,0	<b>0,5</b>
Verkehr	1,1	0,5	0,7	0,0	0,0	<b>2,3</b>
Nicht straßengebundene Verkehrsmittel	0,1	0,0	0,5	0,0	0,0	<b>0,7</b>
Industrie	0,9	0,5	0,9	0,0	0,0	<b>2,3</b>
Landwirtschaft	4,0	1,4	1,6	0,0	0,0	<b>7,0</b>
Andere Quellen	0,2	0,1	0,1	4,1	24,5	<b>29,0</b>
<b>Summe</b>	<b>10,9</b>	<b>7,0</b>	<b>7,9</b>	<b>4,1</b>	<b>24,5</b>	<b>54,5</b>

## 5.2 Schlussfolgerungen

- ▶ Den größten Beitrag am modellierten PM liefern die Sektoren Landwirtschaft und Verbrennung in Privathaushalten für PM<sub>10</sub> Konzentrationen über 40 µg/m<sup>3</sup> und PM<sub>2.5</sub> Konzentrationen über 25 µg/m<sup>3</sup>.
- ▶ Die Unterschiede in den sektoralen Quellbeiträgen sind im Vergleich zwischen den Stationen eher einheitlich.
- ▶ Natürliche Beiträge sinken mit steigender PM Konzentration.
- ▶ Deutschland hat den größten Anteil an seinen PM<sub>10</sub> Konzentrationen (im Mittel über alle Stationen ~40% der modellierten Werte, gemittelt über den Untersuchungszeitraum, und ~36% für Perioden mit gemessenem PM<sub>10</sub> über 40 µg/m<sup>3</sup>).
- ▶ Bei höheren PM-Konzentrationen (PM<sub>10</sub> >40µg/m<sup>3</sup>) übersteigen die Beiträge Polens und anderer osteuropäischer Länder insgesamt den Beitrag Deutschlands.
- ▶ Polen trägt dazu an den meisten Stationen mehr als andere osteuropäische Länder zusammen bei (~20-30% bei gemessenen PM<sub>10</sub> Werten über 40 µg/m<sup>3</sup>).

## 6 Rezeptormodellierung mittels Positiver Matrixfaktorisierung

In die Studie wurde eine detaillierte, auf Messungen basierende Quellzuordnung von PM<sub>10</sub> im Untersuchungsgebiet mittels Positiver Matrixfaktorisierung (PMF) durchgeführt. Konzentrationen von PM<sub>10</sub> und Inhaltsstoffen wurden dabei im parallelen "PM-Ost" Projekt der Länder Berlin, Brandenburg, Mecklenburg-Vorpommern und Sachsen bereitgestellt. Die im PM-Ost Projekt ebenfalls geplante PMF Rezeptormodellierung wurde um die zusätzlichen, in diesem Projekt vorgesehenen Arbeiten erweitert. Insbesondere wurde sie für alle Messstationen des PM-Ost Projektes, statt wie in PM-Ost ursprünglich vorgesehen für 5 ausgewählte, sowie in mehreren Iterationen mit zunehmendem Umfang an chemischer Information durchgeführt. Die Ergebnisse sind im Detail im PM-Ost Abschlussbericht (van Pinxteren et al., 2017), sowie in einer Publikation (van Pinxteren et al., 2019) veröffentlicht und werden an dieser Stelle nur überblickshaft wiedergegeben.

Die PMF Modellierung wurde auf Basis der Konzentrationen von PM<sub>10</sub> Masse, sowie den Inhaltsstoffen anorganische Ionen und OC/EC für alle 212 Messtage der Winterkampagne 2016/17 für alle Stationen außer BBPOT (für die keine Ionenkonzentrationen zur Verfügung standen) durchgeführt (PMF Stufe 1). In weiteren Iterationen wurden PMF-Läufe für 80 ausgewählte Sondermesstage (Stufe 2) unter sukzessiver Hinzunahme der Inhaltsstoffe PAK (Stufe 3), Levoglucosan (Stufe 4) und Metalle (Stufe 5) durchgeführt, wobei für die Iteration inklusive der Metallkonzentrationen nur die beiden Berliner Messstationen mit entsprechenden Messdaten zur Verfügung standen. Für weitere experimentelle Details zur Rezeptormodellierung wird auf den PM-Ost Abschlussbericht verwiesen.

In Tabelle 7 sind die in den jeweiligen Iterationen identifizierten Quellkategorien mit ihren Hauptinhaltsstoffen, sowie charakteristischen Markerverbindungen zusammengefasst.

Tabelle 7: Mittels PMF identifizierte PM10 Quellkategorien

Quellkategorie	PMF Stufe	Hauptinhaltsstoffe	Markerverbindungen
Salz (frisch)	1-5	Natrium, Chlorid	Natrium, Chlorid
Salz (gealtert)	1-5	Natrium, Sulfat, Nitrat, OC	Natrium, Magnesium
Sekundär I (AN)	1-5	Ammonium, Nitrat	Nitrat
Sekundär II (AS+OC)	1-5	Ammonium, Sulfat, OC	Sulfat
Verbrennung	1-5	OC, EC	EC, Kalium, (PAK)
Verbrennung (BM)	4-5	OC, EC	Kalium, Levoglucosan
Verbrennung (Kohle)	5	OC, Nitrat, Ammonium	As
Verkehr	1-4	OC, EC, Calcium, Sulfat, Nitrat	EC, Calcium
Verkehr (Abrieb)	5	EC, Fe	Fe, Cu, Ba
Verkehr (Aufwirbelung)	5	OC, Calcium, Sulfat	Calcium, Ti, Sr

AN: Ammoniumnitrat

AS: Ammoniumsulfat

BM: Biomasse

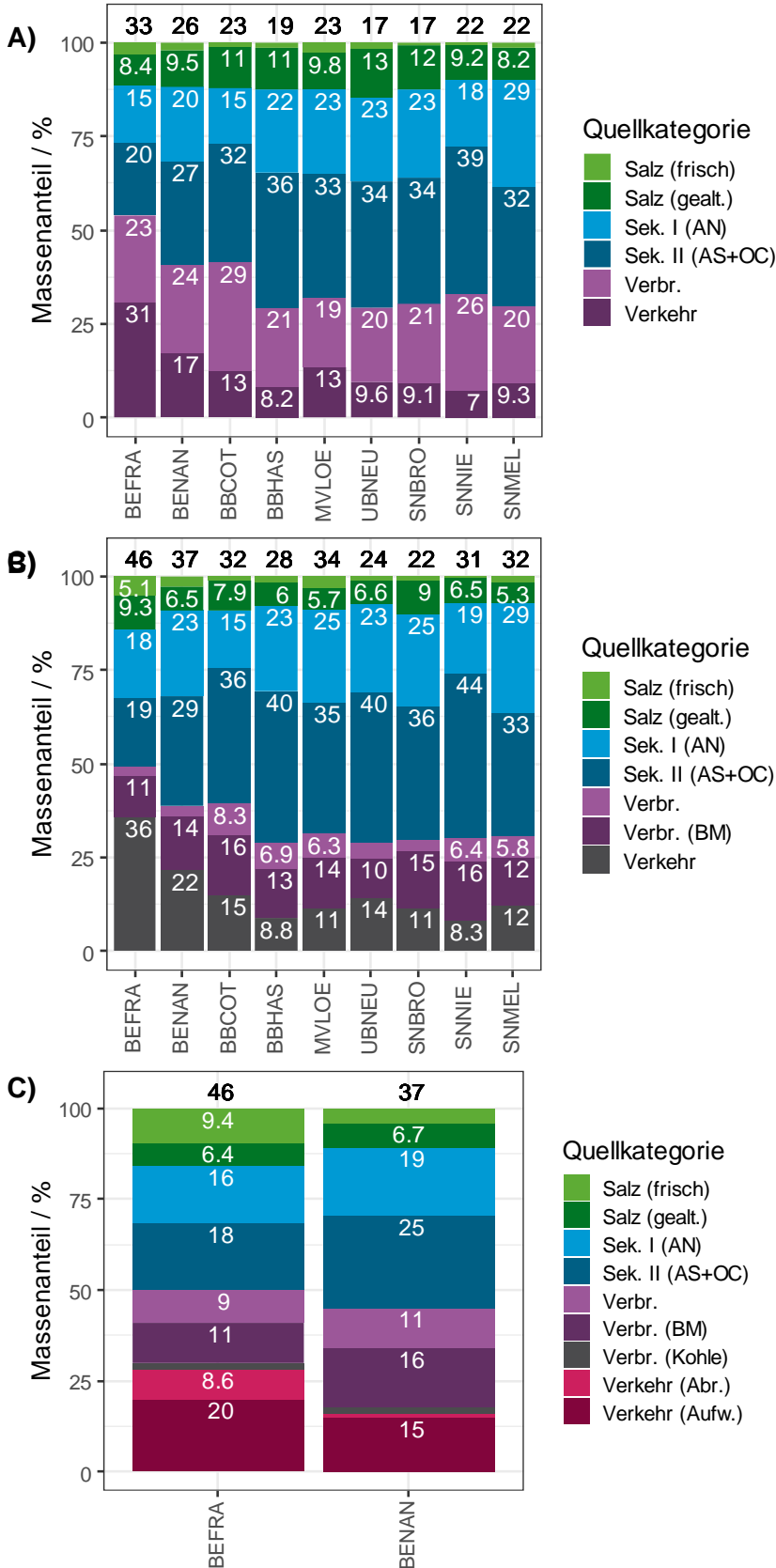
Die Quellkategorien frisches Salz (See- oder Streusalz), chemisch gealtertes Salz (durch Austausch von Chlorid mit anderen Säuren), sekundäre Bildung I (überwiegend Ammoniumnitrat), sekundäre Bildung II (Ammoniumsulfat und organisches Material), Verbrennung und Verkehr wurden in allen Iterationen der PMF identifiziert. Basierend auf den zusätzlichen Inhaltsstoffen konnte die Kategorie Ver-

brennung auf den Stufen 4 und 5 weiter aufgeteilt werden in Verbrennung (allgemein), Biomasseverbrennung und Kohleverbrennung. Die Kategorie Verkehr konnte auf Stufe 5 unterschieden werden in Abrieb- und Aufwirbelung.

Die durch die PMF ermittelten Quellkategorien erklärten unterschiedliche Anteile der PM<sub>10</sub> Konzentration an den verschiedenen Messstationen. In Abbildung 24 sind die mittleren Quellbeiträge für die gesamte PM-Ost Kampagne (Abbildung 24A) bzw. für die 80 Sondermesstage (Abbildung 24B+C) für alle Stationen dargestellt.

Die Quellbeiträge können wie folgt zusammengefasst werden: Verkehrsbeiträge waren generell am höchsten an den städtischen Stationen, wo sie an der Verkehrsstation BEFRA im Mittel 30% und im städtischen Hintergrund etwa 15% der PM<sub>10</sub> Massekonzentration verursachten. Verbrennungsemissionen erklärten ca. 20-30% des PM<sub>10</sub> an allen Stationen, die sekundäre Bildung von Ammoniumsulfat und organischem Material verursachte 20-40% und die sekundäre Bildung von Ammoniumnitrat 15-30% des PM<sub>10</sub> im Mittel. Frische und gealterte Salzemissionen erklärten weitere etwa 10%. Während der Sondermesstage mit Fokus auf Episoden höherer Belastung waren die PM<sub>10</sub> Konzentrationen höher als im Durchschnitt der gesamten Winterkampagne, die relativen Anteile der verschiedenen Quellkategorien blieben allerdings recht konstant. Die Biomasseverbrennung machte einen großen Anteil der Verbrennungskategorie aus und erklärte etwa 10-15% des gesamten PM<sub>10</sub>, was zeigt, dass die Verbrennung v.a. von Holz eine wichtige Quelle von PM<sub>10</sub> an allen Stationen war. Die Verkehrsemissionen in Berlin waren dominiert von der Aufwirbelung von Straßenstaub. Abrieb von Bremsen und Reifen waren jedoch v.a. an der Verkehrsstation BEFRA ebenfalls eine wichtige Quelle. Direkte Motoremissionen konnten mit der in dieser Studie verfügbaren chemischen Information vom PMF Rezeptormodell nicht aufgelöst werden und sind sehr wahrscheinlich in einem oder beiden Verkehrsfaktoren enthalten.

Abbildung 24: Mittlere Quellbeiträge zu PM<sub>10</sub> für A) PMF Stufe 1 (alle Messtage, Inhaltsstoffe Ionen und OC/EC), B) PMF Stufe 4 (Sondermesstage, + PAK, + Levoglucosan) und C) PMF Stufe 5 (Sondermesstage, + Metalle). Die schwarzen Zahlen geben die mittlere PM<sub>10</sub> Massekonzentration in µg m<sup>-3</sup> an, die weißen Zahlen stellen den prozentualen Quellbeitrag dar.



## 7 Vergleich von rezeptororientierter PMF- und quellorientierter CTM-Modellierung

Die durch PMF Rezeptormodellierung und LOTOS-EUROS Chemie-Transport-Modellierung erhaltenen Quellbeiträge (für das Modellgebiet D2) werden im Folgenden miteinander verglichen. Hierbei ist zu beachten, dass die in den verschiedenen Ansätzen enthaltenen Quellkategorien nicht immer komplett identisch sind. In Tabelle 8 sind die Quellkategorien, die im Folgenden zwischen den Modellen verglichen werden, sowie ihre Ermittlung aus den Modelldaten, beschrieben.

Tabelle 8: Quellkategorien für den Modellvergleich

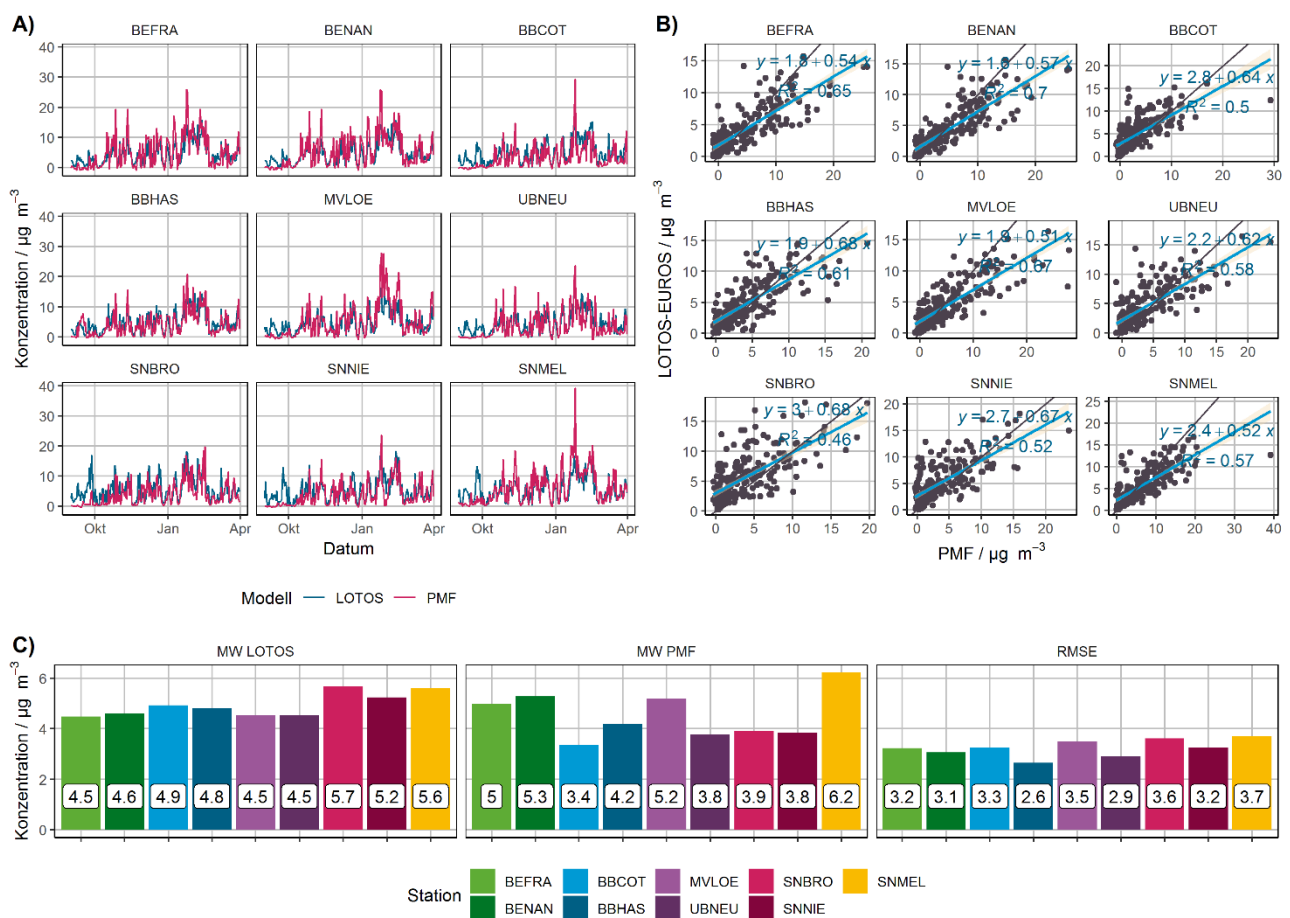
Quellkategorie	PMF Faktor	PMF Daten	LOTOS-EUROS Komponente	LOTOS-EUROS Sektor
Ammoniumnitrat	Sek. I (AN)	Stufe 1, alle Tage, alle Stationen	Nitrat x 1.29	Gesamt, alle Sektoren
Verkehr	Verkehr	Stufe 1, alle Tage, alle Stationen	Gesamtmasse	Straßenverkehr
Verkehr (Aufwirbelung)	Verkehr (Aufwirbelung)	Stufe 5, Sondermesstage, Berlin	Staub	Straßenverkehr
Verkehr (Abrieb)	Verkehr (Abrieb)	Stufe 5, Sondermesstage, Berlin	Übriges PM	Straßenverkehr
Verbrennung	Verbrennung	Stufe 1, alle Tage, alle Stationen	Gesamtmasse	Energie (Kohle) + Hausfeuerung (Kohle) + Energie (Biomasse) + Hausfeuerung (Biomasse)
Verbrennung (Biomasse)	Verbrennung (Biomasse)	Stufe 4, Sondermesstage, alle Stationen	Gesamtmasse	Energie (Biomasse) + Hausfeuerung (Biomasse)
Verbrennung (Kohle)	Verbrennung (Kohle)	Stufe 5, Sondermesstage, Berlin	Gesamtmasse	Energie (Kohle) + Hausfeuerung (Kohle)

Der Vergleich beschränkt sich dabei auf anthropogenen Quellkategorien, für die einzelne in LOTOS-EUROS enthaltene Komponenten und Sektoren sinnvoll zusammengeführt werden können, um die in der PMF ermittelten Quellkategorien möglichst gut abzubilden. Auf einen detaillierten Vergleich des natürlichen Salzfaktors wird an dieser Stelle verzichtet, es wird aber zusammenfassend angemerkt, dass die durch PMF ermittelten Salz-Quellbeiträge (Summe aus frischem und gealtertem Salz, 2.1-2.9  $\mu\text{g m}^{-3}$  im ländlichen Hintergrund) höher sind, als die in LOTOS-EUROS berechneten Seesalzbeiträge, die aus ozeanischem Natrium multipliziert mit 3.6 als Konversionsfaktor von Natrium zu Gesamtseesalz ermittelt wurden und an den ländlichen Hintergrundstationen bei 1.3-2.1  $\mu\text{g m}^{-3}$  lagen. Dies ist vermutlich auf die im PMF Faktor „gealtertes Salz“ enthaltenen Massebeiträge von Nitrat, Sulfat und teilweise auch organischem Material, welche in den LOTOS-EUROS Quellbeiträgen nicht enthalten sind, zurückzuführen.

## 7.1 Quellbeiträge durch Ammoniumnitrat

In Abbildung 25 wird der Vergleich für die Quellkategorie Ammoniumnitrat bzw. „Sekundär I (AN)“ gezeigt. Der PMF Faktor besteht zu annähernd 100% aus Ammonium und Nitrat und enthält ca. 80% des gesamten gemessenen Nitrats. Die übrigen ca. 20% verteilen sich v.a. auf die Quellkategorien „Salz (gealtert)“ und „Verkehr“ (van Pinxteren et al., 2017). Die zugehörigen LOTOS-EUROS Werte wurden ermittelt, indem die Nitratkonzentration aus allen Sektoren des CTM mit 1.29 multipliziert wurde, um den Massebeitrag des Ammoniums mit zu berücksichtigen.

Abbildung 25: Vergleich der Quellkategorie „Ammoniumnitrat“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



Quelle: TROPOS/TNO, dieses Projekt

Gezeigt sind hier und in allen folgenden Abbildungen zum Modellvergleich jeweils die Zeitreihen der Quellbeiträge aus PMF und LOTOS-EUROS Modell (A), Scatterplots der Quellbeiträge (B), sowie (C) Mittelwerte der jeweiligen modellierten Quellbeiträge und die Quadratwurzel aus dem mittleren quadratischen Fehler (engl. root mean squared error, RMSE) als Maß für die mittlere Abweichung der beiden Modelle an den Stationen. Für Ammoniumnitrat kann generell eine gute Übereinstimmung festgestellt werden. Das Bestimmtheitsmaß  $R^2$  der linearen Regression liegt je nach Station zwischen 0,46 und 0,70 und die mittleren PMF Quellbeiträge weichen ca. 10-30% von den mit LOTOS-EUROS berechneten ab. Die mit LOTOS-EUROS berechneten Kampagnenmittelwerte sind sich mit Werten zwischen



4,5 und 5,7  $\mu\text{g m}^{-3}$  relativ ähnlich, während die PMF Quellbeiträge mit 3,4-6,2  $\mu\text{g m}^{-3}$  eine etwas größere Spannbreite zeigen. Dies könnte darauf hindeuten, dass lokale Besonderheiten an den einzelnen Stationen durch die LOTOS-EUROS Modellauflösung nicht komplett erfasst werden können.

Einzelne Tageswerte können darüber hinaus sehr deutlich voneinander abweichen, was zu mittleren RMSE Abweichungen zwischen 2,7 und 3,7  $\mu\text{g m}^{-3}$  führt. Hierbei ist zu beachten, dass der RMSE Parameter durch die enthaltene Quadrierung höhere absolute Abweichungen stärker gewichtet als niedrigere.

Oft sind es Spitzen in den PMF Zeitreihen, die von LOTOS-EUROS nicht vollständig abgebildet werden. Zu Kampagnenbeginn im September jedoch wurden an fast allen Stationen sehr viel niedrigere Ammoniumnitratbeiträge durch die PMF bestimmt, als durch LOTOS-EUROS. Aufgrund der hier noch erhöhten Temperaturen könnte dies möglicherweise mit einem bekannten Probenahmeartefakt der Filterammlung zusammenhängen. Ein Teil des gesammelten Ammoniumnitrats kann sich während der Probenahme bei höheren Temperaturen als Ammoniak und Salpetersäure verflüchtigen, was zu niedrigeren gemessenen Konzentrationen führt.

Insgesamt kann unter Berücksichtigung der grundlegend verschiedenen Modelltypen die Übereinstimmung der sekundären Ammoniumnitrat Quellkategorie als gut beurteilt werden.

## 7.2 Quellbeiträge durch Verkehr

Verkehrsbeiträge wurden auf PMF Stufe 1 für alle Tage und Stationen ermittelt, sowie auf PMF Stufe 5 für die beiden Berliner Messstationen an 80 Sondermessstagen unterschieden in Emissionen durch Aufwirbelung von Straßenstaub und Abrieb von Bremsen und Reifen. In Abbildung 26 werden zunächst die integralen PMF Stufe 1 Verkehrsbeiträge mit der PM Gesamtmasse aus dem LOTOS-EUROS Sektor „Straßenverkehr“ verglichen.

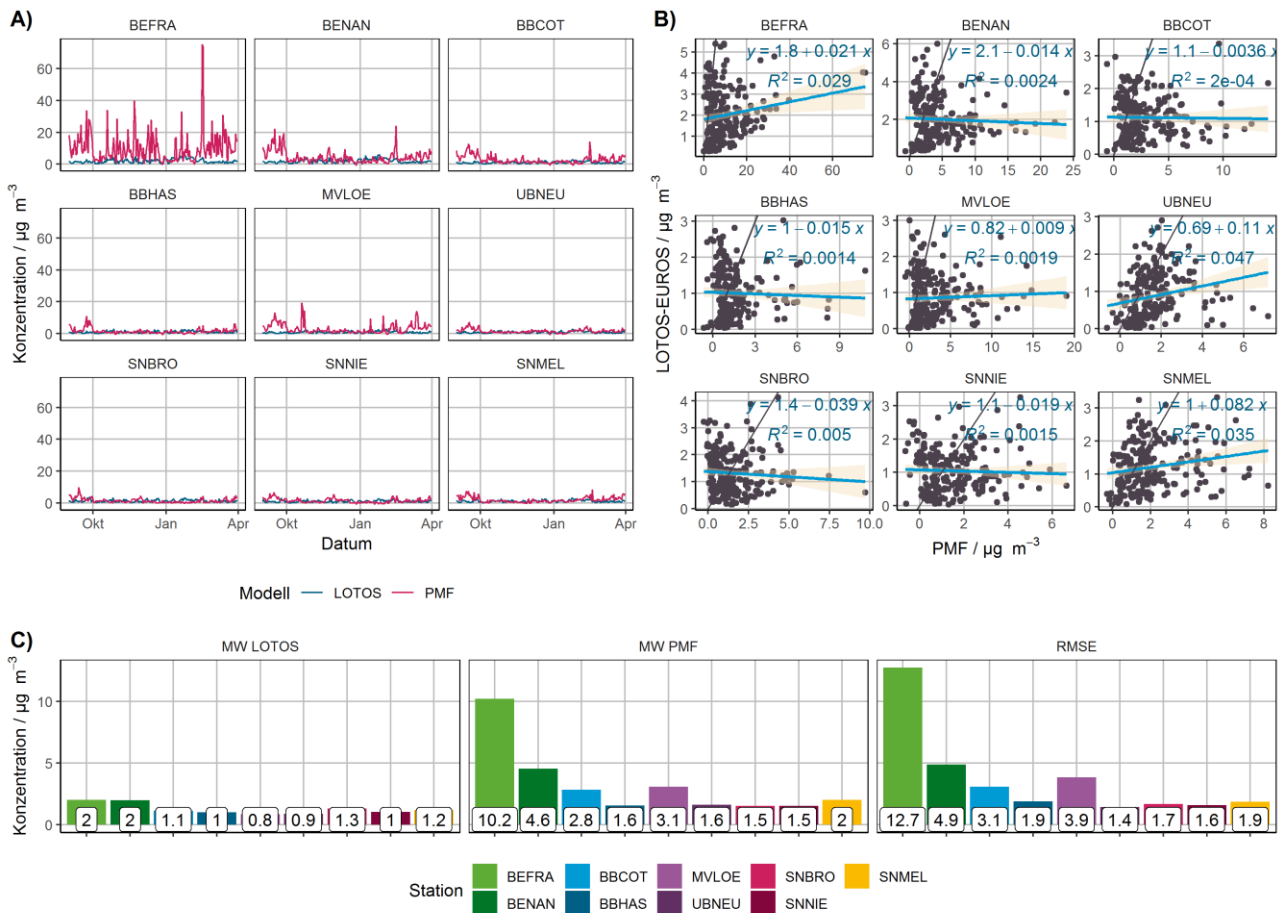
Es ist deutlich zu erkennen, dass die PMF an den Stadtstationen und hier insbesondere an der Verkehrsstation BEFRA um einen Faktor 2-5 höhere Verkehrsquellbeiträge ermittelt, als durch LOTOS-EUROS berechnet. Dies ist auf lokale, kleinräumige Beiträge zurückzuführen, die durch das LOTOS-EUROS Modell nicht aufgelöst werden können. Im ländlichen Hintergrund sind die PMF Verkehrsbeiträge immer noch etwas höher, liegen aber mit meist 1,5-2  $\mu\text{g m}^{-3}$  sehr viel näher an den LOTOS-EUROS Beiträgen von 0,8-1,3  $\mu\text{g m}^{-3}$ .

Die v.a. am Beginn des Messzeitraums beobachteten erhöhten PMF Verkehrsbeiträge an vielen Stationen könnten auf Beiträge durch Aufwirbelung von Krustenmaterial hinweisen, welche durch ihre chemische Ähnlichkeit zu aufgewirbeltem Straßenstaub möglicherweise zu einem gewissen Anteil in den PMF Verkehrsfaktor eingemischt sind. Die in beiden Modellen ähnliche Größenordnung der Verkehrsbeiträge im ländlichen Hintergrund legt allerdings nahe, dass ein Großteil der Quellbeiträge tatsächlich auf Hintergrundbelastung durch Verkehrsemissionen zurückzuführen ist.

Die fehlende Korrelation der Modellwerte mit  $R^2$  sehr nahe Null an allen Stationen deutet darauf hin, dass die entweder sehr lokale (BEFRA) oder diffuse (im Hintergrund) Quellkategorie Verkehr (Summe Abgas, Abrieb und Aufwirbelung) mit den beiden hier verwendeten Ansätzen nur schwierig in zeitlich konsistenter Weise zu modellieren ist.

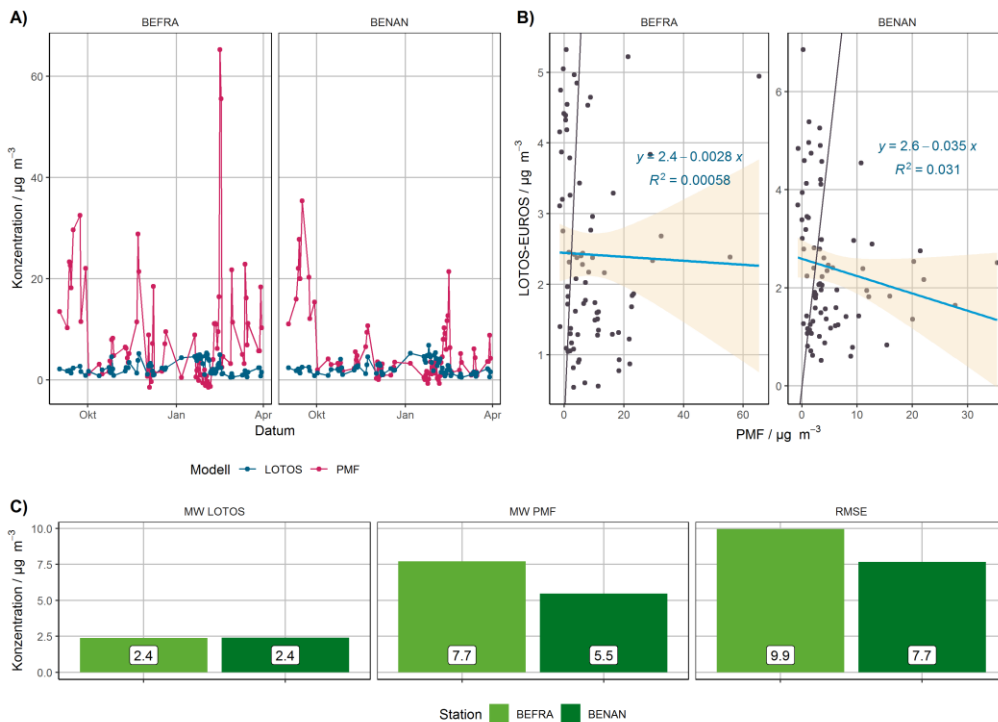
Gründe für die in den Städten quellnah beobachteten teilweise sehr hohen Abweichungen könnten in Nicht-Abgasemissionen liegen, die von LOTOS-EUROS nicht vollständig erfasst werden. In Abbildung 27 und Abbildung 28 sind die Quellbeiträge von Aufwirbelung und Abrieb gezeigt.

Abbildung 26: Vergleich der Quellkategorie „Verkehr“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



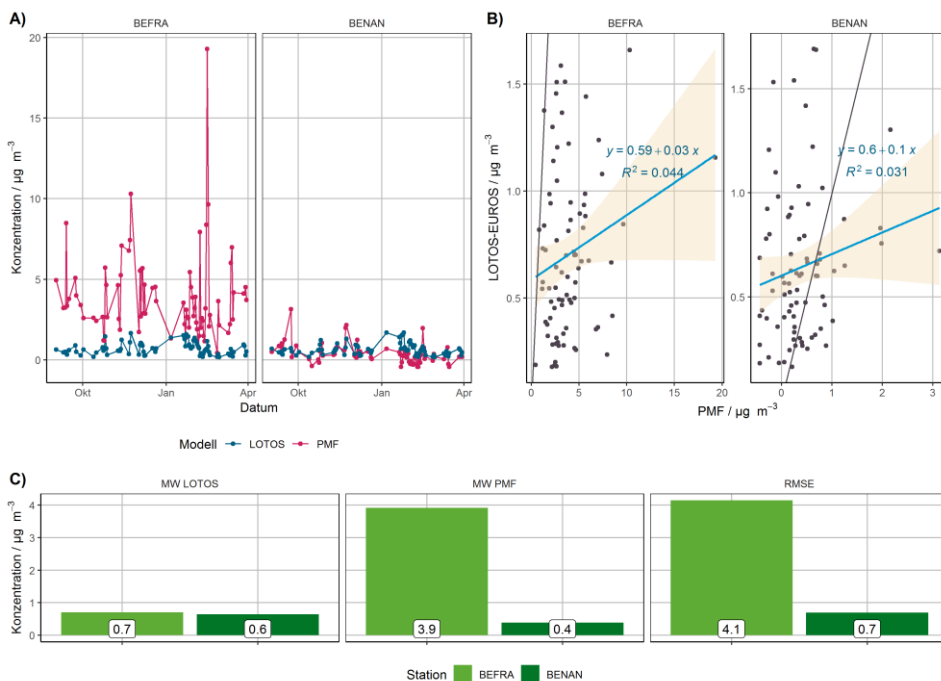
Quelle: TROPOS/TNO, dieses Projekt

Abbildung 27: Vergleich der Quellkategorie „Verkehr (Aufwirbelung)“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



Quelle: TROPUS/TNO, dieses Projekt

Abbildung 28: Vergleich der Quellkategorie „Verkehr (Abrieb)“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



Quelle: TROPUS/TNO, dieses Projekt

Auf PMF Stufe 5 erfolgte deren Unterscheidung hauptsächlich basierend auf unterschiedlichen Profilen der Metalle, die für die beiden Berliner Messstationen zur Verfügung standen. Während Aufwirbelung von Straßenstaub durch hohe Beiträge von Krustenmaterialspezies wie Calcium, Titan und Strontium geprägt war, wiesen Abrieb von Bremsen und Reifen hohe Anteile z.B. für Eisen, Kupfer, Nickel und Barium auf. In LOTOS-EUROS wurden wie in Tabelle 8 gezeigt die Komponenten „Staub“ und „übriges PM“ aus dem Sektor „Straßenverkehr“ für den Vergleich verwendet.

Ähnlich wie beim allgemeinen Verkehrsfaktor zeigt sich auch in diesen Vergleichen keine zeitliche Korrelation zwischen den Quellbeiträgen der beiden Modelle. Außerdem liegen die PMF Beiträge für Aufwirbelung an der Verkehrsstation BEFRA um einen Faktor von ca. 3 und die für Abrieb um einen Faktor von fast 6 höher als die LOTOS-EUROS Beiträge. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass bedingt durch die Auflösung des LOTOS-EUROS Modells eine Übereinstimmung mit diesen sehr lokalen Beiträgen nicht zu erwarten ist. Weiterhin ist zu berücksichtigen, dass Quellbeiträge durch direkte Motoremissionen durch die PMF nicht aufgelöst werden konnten und vermutlich in beide Nicht-Abgas-Faktoren eingemischt sind. Der tatsächliche Unterschied zu den LOTOS-EUROS Beiträgen dürfte daher etwas geringer sein.

An der städtischen Hintergrundstation BENAN liegen die mittleren Beiträge durch Abrieb mit  $0,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (LOTOS-EUROS) und  $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (PMF) sehr nahe beieinander und auch für Aufwirbelung ist der Unterschied mit  $2,4$  zu  $5,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  geringer als an der Station BEFRA. Die deutlichsten Unterschiede für Aufwirbelung an BENAN zeigen sich im eher warmen und trockenen Monat September, während für den übrigen Winter 2016/17 die ungefähre Übereinstimmung der Quellbeiträge besser ist.

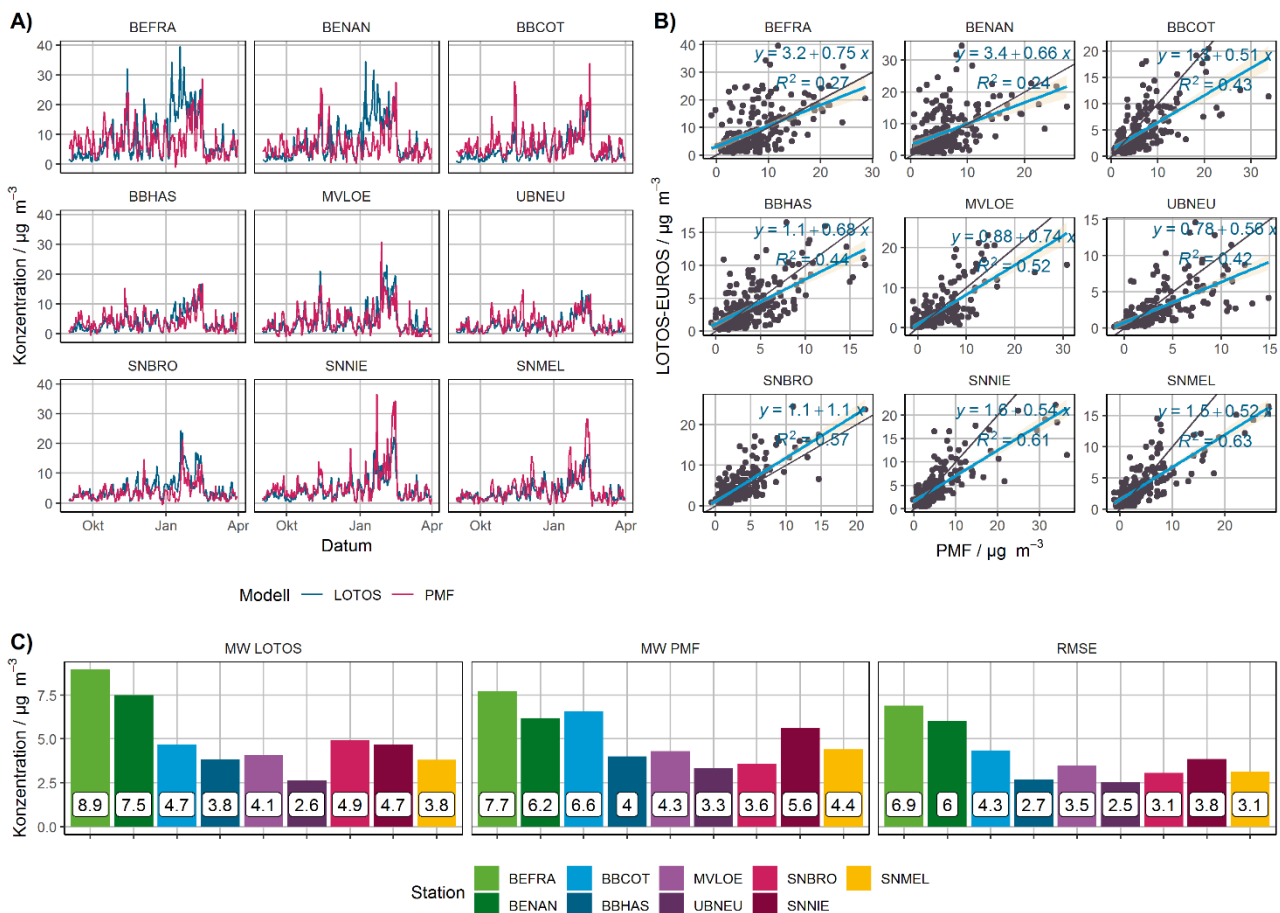
Hieraus und aus den deutlichen Unterschieden an der Verkehrsstation BEFRA lässt sich ableiten, dass es vermutlich v.a. die sehr lokalen Beiträge der Nicht-Abgasemissionen des Straßenverkehrs sind, die durch die LOTOS-EUROS Chemie-Transportmodellierung nicht ausreichend gut abgebildet werden können und die vermutlich auch in der oben beschriebenen Gesamtkategorie „Verkehr“ zu den beobachteten hohen Unterschieden zwischen den beiden Modellen v.a. im städtischen Bereich führen.

### 7.3 Quellbeiträge durch Verbrennung

Quellbeiträge durch Verbrennungsemissionen wurden auf PMF Stufe 1 für alle Tage bestimmt und auf Stufe 4 für die Sondermesstage unterschieden in „Biomasseverbrennung“ und „sonstige Verbrennung“. Die Unterscheidung erfolgte durch Hinzunahme von Levoglucosan als charakteristischem Inhaltsstoff von PM Emissionen aus der Holzverbrennung. Es gibt allerdings Hinweise darauf, dass auch Emissionen aus der Verbrennung von Braunkohle deutliche Anteile an Levoglucosan enthalten können (Fabbri et al., 2009; Yan et al., 2018), so dass die PMF Quellkategorie „Biomasseverbrennung“ möglicherweise auch zu einem gewissen, nicht näher spezifizierbaren Anteil auch Emissionen dieses fossilen Brennstoffs, der gerade in manchen osteuropäischen Ländern noch stark verwendet wird, widerspiegeln könnte. Auf PMF Stufe 5 wurde für die Berliner Stationen basierend auf Arsen als Kohletracer auch Kohleverbrennung als weitere Quellkategorie identifiziert. Die LOTOS-EUROS Quellbeiträge wurden wie in Tabelle 8 gezeigt aus der  $\text{PM}_{10}$  Gesamtmasse der Sektoren Energieerzeugung aus Biomasse und Kohle, sowie Hausfeuerung, d.h. Gebäudeheizung mit Kohle und Biomasse berechnet.

In Abbildung 29 ist der Vergleich der Kategorie „Verbrennung“ für den gesamten Untersuchungszeitraum gezeigt.

Abbildung 29: Vergleich der Quellkategorie „Verbrennung“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



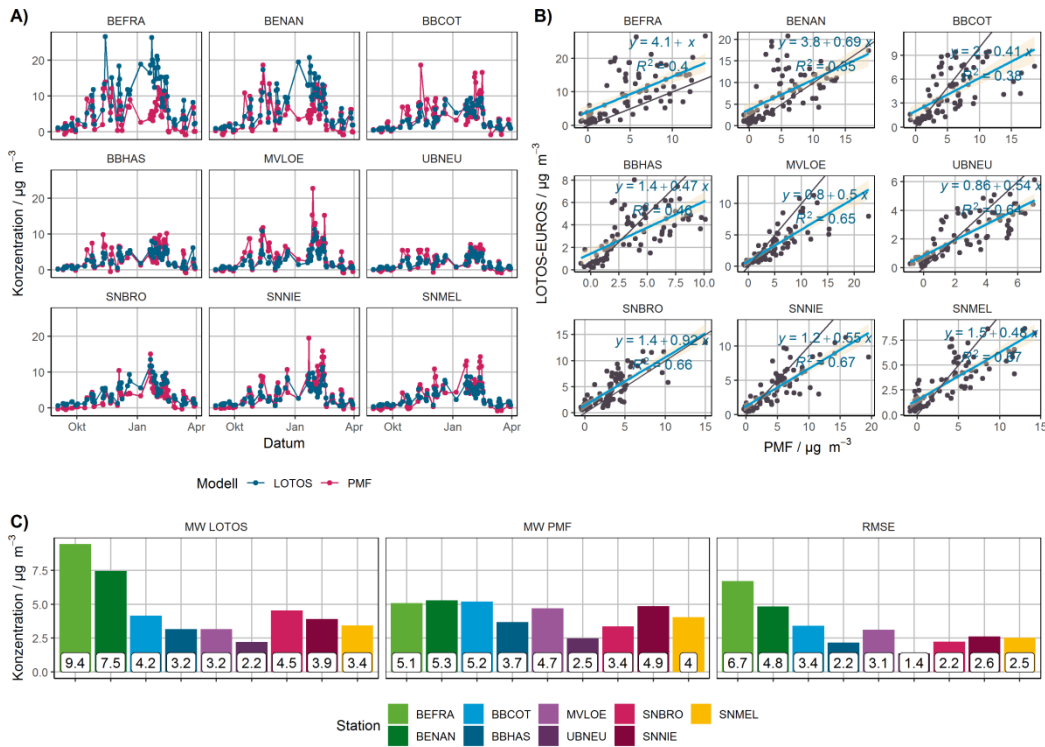
Quelle: TROPOS/TNO, dieses Projekt

Es zeigt sich an fast allen Stationen eine gute Übereinstimmung der mit beiden Modellen berechneten Verbrennungsbeiträgen. Dies gilt sowohl für die Höhe der Beiträge, die für LOTOS-EUROS im Mittel zwischen 2,6 und 8,9  $\mu\text{g m}^{-3}$  und für die PMF zwischen 3,3 und 7,7  $\mu\text{g m}^{-3}$  lagen, als auch für ihre zeitliche Korrelation, deren Bestimmtheitsmaß  $R^2$  ohne die beiden Berliner Stationen zwischen 0,43 und 0,63 lag. Die etwas schlechtere Korrelation in Berlin ist auf eine Periode Anfang Januar zurückzuführen, während der die LOTOS-EUROS Quellbeiträge deutlich über denen der PMF lagen. Eine Ursache könnte ein Fehler in der räumlichen Verteilung der Emissionen sein.

Auch der Trend der mittleren Beiträge an den verschiedenen Stationen stimmt recht gut überein, mit höchsten Werten in Berlin und den niedrigsten Beiträgen in BBHAS und UBNEU. Deutlichere Unterschiede gibt es v.a. für BBCOT und SNBRO. In Cottbus ist der mittlere Quellbeitrag nach PMF ähnlich denen in Berlin und nach LOTOS-EUROS ähnlich denen im ländlichen Hintergrund, was möglicherweise mit lokalen Emissionen zusammenhängt. Für SNBRO berechnet LOTOS-EUROS im Vergleich zu den anderen ländlichen Stationen erhöhte Quellbeiträge, was sich allerdings in den PMF Ergebnissen nicht widerspiegelt. Möglicherweise spielt hier die etwas erhöhte Lage der Messstation auf 430 m über NN eine Rolle, die zu einer gewissen Entkopplung der Konzentrationen von denen in tiefer liegenden Gebieten des ländlichen Hintergrundes führen könnte.

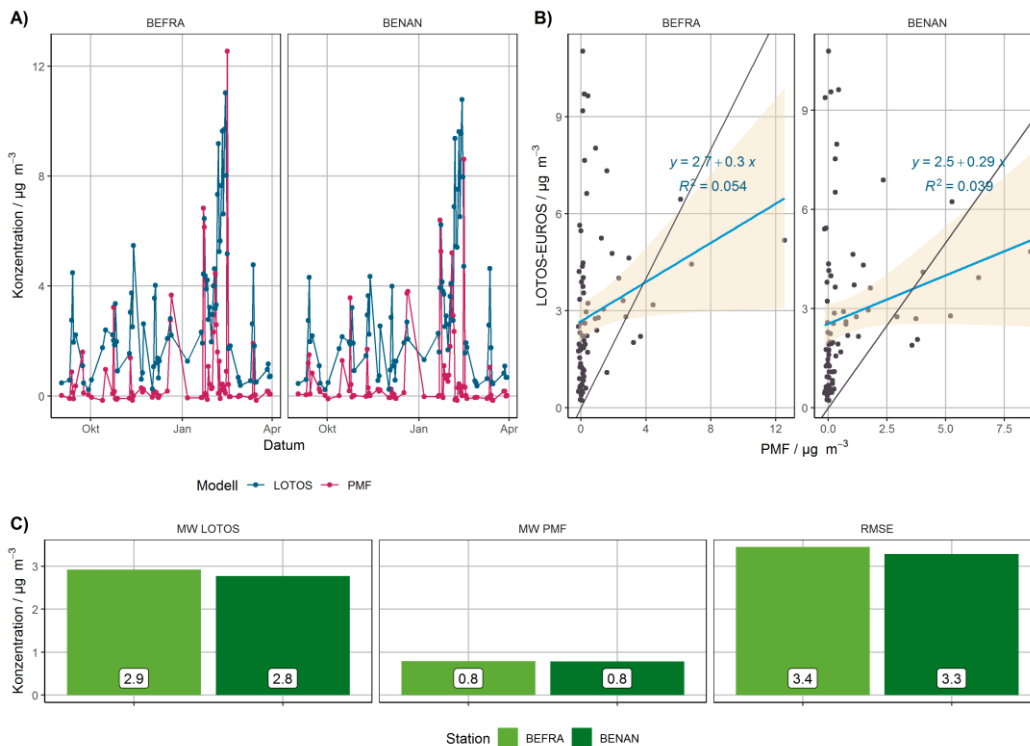
In Abbildung 30 werden die Quellbeiträge der beiden Modelle aus der Verbrennung von Biomasse miteinander verglichen und in Abbildung 31 ist der Vergleich für die Quellkategorie „Verbrennung (Kohle)“ gezeigt.

Abbildung 30: Vergleich der Quellkategorie „Verbrennung (Biomasse)“. A) Konzentrations-Zeitreihen beider Modelle an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



Quelle: TROPOS/TNO, dieses Projekt

Abbildung 31: Vergleich der Quellkategorie „Verbrennung (Kohle)“. A) Konzentrations-Zeitreihen bei den Modellen an allen Stationen, B) Scatterplots mit 1:1 Linie (schwarz) und linearer Regressionsgeraden (blau), sowie C) Kampagnen-Mittelwerte (MW) beider Modelle und ihre mittlere Abweichung RMSE.



Quelle: TROPOS/TNO, dieses Projekt

Für die Biomasseverbrennung ergibt sich ein sehr ähnliches Bild zur gesamten Verbrennungskategorie. Für die Höhe der Beiträge und ihre zeitliche und stationsabhängigen Trends finden sich für die 80 Sondermesstage die gleichen Befunde, wie oben für alle Messtage diskutiert, was darauf zurückzuführen ist, dass die gesamten Verbrennungsemissionen in beiden Modellen von Biomasseverbrennungsemissionen dominiert werden.

Die für Berlin quantifizierten PMF Kohleverbrennungsbeiträge stimmen weder in ihrer Höhe, noch in ihrer zeitlichen Korrelation mit den durch LOTOS-EUROS ermittelten Werten überein. Sie liegen an beiden Stationen um einen Faktor 3,6 niedriger und zeigen ein  $R^2$  von 0. Der PMF Kohleverbrennungsfaktor basiert stark auf der Variabilität von Arsen, welches zwar als Kohletracer verwendet wird, aber möglicherweise die Emissionen aus der Verbrennung von Kohle verschiedenen Ursprungs nicht gut wieder gibt. Eine weitere mögliche Erklärung könnte sein, dass basierend auf As als Tracer der PMF Faktor überwiegend primäre Kohleemissionen repräsentiert, wohingegen die LOTOS-EUROS Quellbeiträge auch deutliche Anteile an sekundärem anorganischen Material enthalten, die sich aus  $\text{SO}_2$  und  $\text{NO}_x$  Emissionen während des Transportes der Luftmassen bilden. Zieht man von den LOTOS-EUROS Quellbeiträgen für Gesamt-PM die Beiträge von Ammonium, Sulfat und Nitrat aus den Kohleverbrennungssektoren ab, ergeben sich mittlere Quellbeiträge von 0,7 und 0,9  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  für die beiden Berliner Stationen, die sehr viel besser mit den PMF-ermittelten Beiträgen von 0,8  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  übereinstimmen.

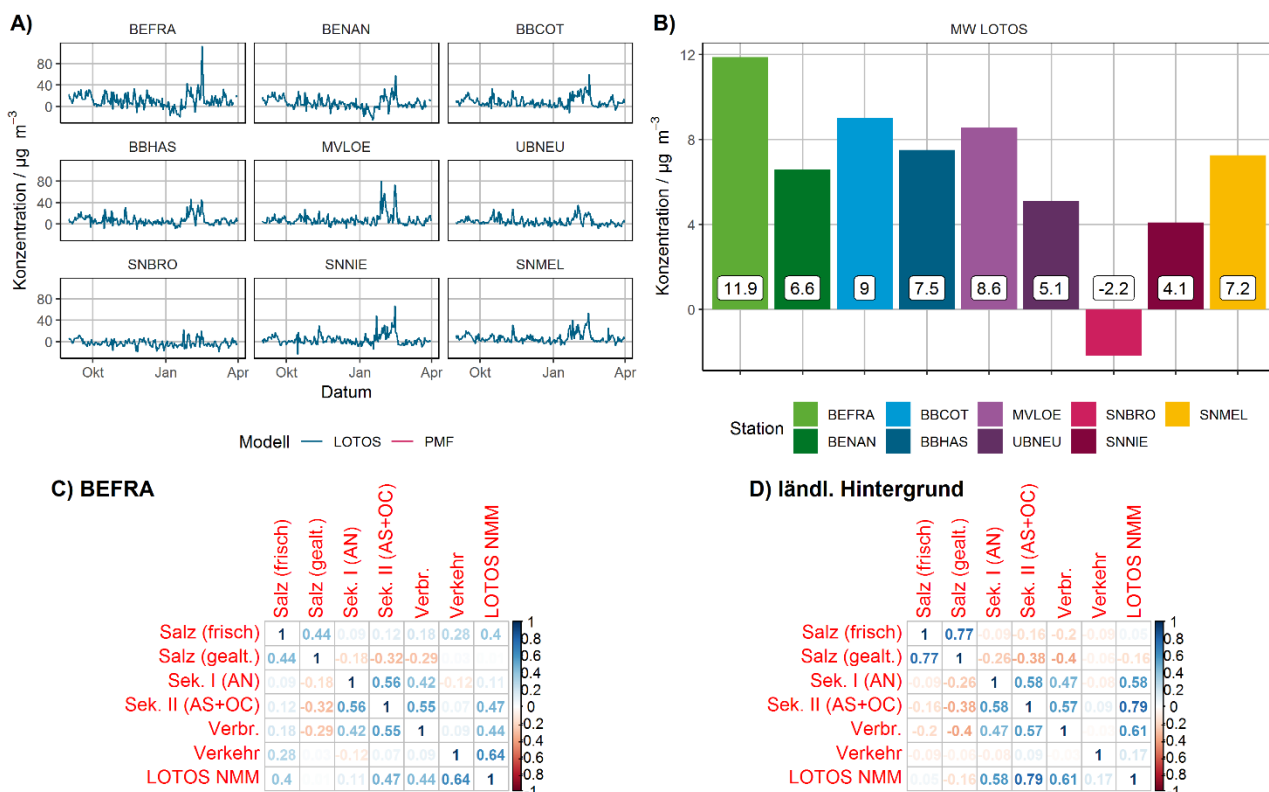
Insgesamt lässt sich für die Quellkategorie Verbrennung schlussfolgern, dass beide Modelle die Quellbeiträge insbesondere für gesamte Verbrennung und Biomasseverbrennung trotz ihrer sehr verschiedenen Ansätze in guter Übereinstimmung beschreiben, was das Vertrauen in die für das Untersuchungsgebiet ermittelten Werte erhöht.

### 7.4 Nicht modellierte PM-Masse

Wird die gesamte von LOTOS-EUROS modellierte PM<sub>10</sub> Massenkonzentration an den Stationen des PM-Ost Projektes mit der dort tatsächlich gemessenen Konzentration verglichen, so ergibt sich in der Regel ein mehr oder weniger großer Rest der realen PM<sub>10</sub> Konzentration, der vom Chemie-Transportmodell nicht abgebildet wird. Diese „nicht modellierte PM-Masse“ ist in Abbildung 32 dargestellt. Abbildung 32A zeigt Konzentrations-Zeitreihen der nicht modellierten Masse an allen Stationen, an denen zu erkennen ist, dass die nicht modellierte Masse an der Verkehrsstation BEFRA über fast den gesamten Untersuchungszeitraum besonders hoch und an den übrigen Stationen v.a. während der Periode mit hoher Verschmutzung von ca. Mitte Januar an deutlich erhöht war und hier je nach Station Werte von ca. 40-80 µg/m<sup>3</sup> im Maximum annehmen kann.

Mittelwerte über den gesamten Winter sind in Abbildung 32B gezeigt und liegen zwischen 4,1 µg/m<sup>3</sup> in SNNIE und 11,9 µg/m<sup>3</sup> in BEFRA. Eine Ausnahme stellt die Station SNBRO dar, an der die nicht modellierte Masse meist negativ war und im Mittel einen Wert von -2,2 µg/m<sup>3</sup> annimmt. Dass die in LOTOS-EUROS berechnete PM<sub>10</sub> Massenkonzentration an dieser Station im Mittel größer als die gemessene Konzentration war könnte ähnlich wie oben erwähnt mit der erhöhten Lage der Station zusammenhängen, deren niedrigere reale Konzentrationen vom Modell nicht richtig wiedergegeben werden.

Abbildung 32: Übersicht über nicht modellierte PM-Masse, d.h. Differenz zwischen gemessener und mit LOTOS-EUROS modellierter PM<sub>10</sub> Konzentration. A) Konzentrations-Zeitreihen der nicht modellierten Masse an allen Stationen, B) mittlere nicht modellierte Masse im Untersuchungszeitraum, C) Korrelationskoeffizienten (nach Pearson) der nicht modellierten Masse mit PMF Quellbeiträgen an Verkehrsstation BEFRA, D) Korrelationskoeffizienten der nicht modellierten Masse mit PMF Quellbeiträgen an den ländlichen Hintergrundstationen (ohne SNBRO).



Quelle: TROPOS/TNO, dieses Projekt



Die deutlich positiven nicht modellierten Massekonzentrationen an fast allen Stationen deuten auf Quellbeiträge hin, die nicht oder nicht vollumfänglich vom LOTOS-EUROS Modell erfasst werden. Um Hinweise auf mögliche Quellkategorien zu bekommen, die hierfür ursächlich sein könnten, wurde die nicht modellierte Masse einer Korrelationsanalyse mit den PMF Quellbeiträgen unterzogen.

In Abbildung 32C sind die Korrelationskoeffizienten nach Pearson für die Verkehrsstation BEFRA gezeigt, an der die höchsten nicht modellierten Massekonzentrationen auftraten. Die höchste Korrelation mit  $r = 0.64$  ergibt sich mit der Quellkategorie Verkehr, weitere Korrelationen mit  $r$  zwischen 0.4 und 0.47 zeigen sich für sekundäres Ammoniumsulfat und organisches Material, Verbrennung, sowie frisches Salz.

Wie oben beschrieben können die sehr lokalen Verkehrsemissionen an BEFRA und hier v.a. auch die Nicht-Abgasemissionen aufgrund der Auflösung des LOTOS-EUROS Modells nicht ausreichend gut abgebildet werden und sind an dieser Station eine der Hauptursachen für die große Differenz zwischen gemessener und modellierter Massenkonzentration. Die Quellkategorie frisches Salz passt hierzu, da sie an BEFRA überwiegend Streusalzemissionen repräsentiert, die ebenfalls sehr lokal auftreten.

Eine weitere Ursache könnten fehlende primäre Emissionen aus Verbrennung oder die sekundäre Bildung von Partikelmasse aus Verbrennungsemissionen darstellen, worauf die Korrelation mit den Quellkategorien Sekundär II (AS+OC) und Verbrennung hindeutet.

In Abbildung 32D sind die Korrelationskoeffizienten zwischen nicht modellierter Masse und Quellbeiträgen an den ländlichen Hintergrundstationen wiedergegeben, wobei die Station SNBRO aufgrund ihrer oben beschriebenen untypischen Abweichung hier nicht berücksichtigt wurde.

Es zeigt sich ein mit  $r = 0.79$  sehr hoher Korrelationskoeffizient der nicht modellierten Masse mit Quellbeiträgen aus sekundärem Ammoniumsulfat und organischem Material und weitere, mit  $r = 0,61$  und  $r = 0,58$  etwas schwächere Korrelationen mit Verbrennung und Ammoniumnitrat. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass auch die PMF Quellbeiträge dieser 3 Quellkategorien untereinander mit  $r$  zwischen 0,47 und 0,58 korreliert sind, da gasförmige Verbrennungsemissionen wie  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$  und flüchtige organische Verbindungen (engl. volatile organic compounds, VOC) während der chemischen Alterung der Abluftfahne in der Atmosphäre sekundäre Partikelmasse in Form von Ammoniumnitrat, Ammoniumsulfat und organischem Material bilden.

Es erscheint somit wahrscheinlich, dass zumindest ein großer Teil der im LOTOS-EUROS Modell fehlenden Emissionen auf Verbrennung zurückzuführen sind. Der hohe Korrelationskoeffizient mit der Kategorie Sekundär II (AS+OC) lässt vermuten, dass die Hauptursache hier die sekundäre Bildung von organischem Partikelmaterial (SOA) aus VOC Vorläufern ist, die nicht im Modell implementiert ist, aber deutliche Beiträge zu den gesamten Partikelemissionen aus Verbrennung speziell nach Transport und Alterung der Luftmassen haben kann. Besonders die Verbrennung von Festbrennstoffen, v.a. Holz, aber auch Kohle, emittiert in hohem Maße VOC, deren Umwandlung in SOA ein allerdings sehr komplexer Prozess ist, der in verschiedenen Phasen und stark abhängig von Umgebungsbedingungen stattfindet und dessen Modellbeschreibung komplex, aber sehr wahrscheinlich wichtig ist.

## 8 Diskussion

Die Studie präsentiert Ergebnisse für den Zeitraum September 2016 bis März 2017, da dies den Vergleich mit den PMF-Ergebnissen aus der Kampagne PM-Ost ermöglichte. Der Untersuchungszeitraum umfasst Episoden mit erhöhten PM-Konzentrationen und Überschreitungen des Tagesgrenzwertes für  $PM_{10}$  im Osten Deutschlands aufgrund kalter, stagnierender Wetterbedingungen und des Transportes von belasteter Luft durch eine östliche Anströmung. Die Ergebnisse für die Episode im Januar-Februar 2017 können als repräsentativ für winterliche Episoden mit niedrigen Temperaturen und östlicher Anströmung angesehen werden. Aus einer Auswertung der Jahre 2014 und 2015 haben wir festgestellt, dass auch im Osten Deutschlands Überschreitungen von Grenzwerten bei Westwind mit den größten Beiträgen aus Frankreich und Großbritannien auftreten können (nicht dargestellt). Die Ergebnisse dieser Studie sind daher nur repräsentativ für bestimmte meteorologische Bedingungen. Es wäre sinnvoll, das Experiment der Quellzuordnung auf mehrere Jahre zu erweitern, um eine detaillierte Bewertung der Quellenbeiträge für verschiedene Wetterlagen zu ermöglichen und die statistische Aussagekraft zu verbessern.

Die in dieser Studie vorgenommenen Modellanpassungen haben zu einer erheblichen Verbesserung der modellierten Gesamtkohlenstoff- und PM-Konzentrationen geführt. Zwischen den modellierten und den beobachteten PM-Werten besteht jedoch noch ein erheblicher Unterschied. In Abschnitt 3.6 wurden mögliche Gründe für die verbleibende Differenz zwischen modellierten und beobachteten Konzentrationen angegeben. Dazu gehören fehlende Komponenten, Emissionen und nicht beschriebene Prozesse (SOA, Streusalzeinsätze, biologisches Material, Aerosolwasser, erhöhte  $SO_4$ -Bildung) in den Modellläufen, Fehler in der zeitlichen Variabilität der Emissionen und eine Überschätzung der vertikalen Durchmischung im Modell.

Erste Testläufe mit einer modifizierten vertikalen Struktur im LOTOS-EUROS-Modell zeigen vielversprechende Ergebnisse mit erhöhten PM-Konzentrationen für die betrachtete Episode. In dieser Testversion des Modells wurden die vertikalen Schichten im meteorologischen Eingangsmodell auch im LOTOS-EUROS verwendet und die Diffusionskoeffizienten im meteorologischen Modell direkt eingelesen. Dadurch wird der Schritt der meteorologischen Diagnose der Grenzschichthöhe vermieden. Weitere Untersuchungen und Validierungen sind notwendig, um diese vorläufigen Ergebnisse zur Vertikalstruktur im LOTOS-EUROS zu bestätigen. Im Anschluss daran wäre es sinnvoll, das Experiment der Quellzuordnung mit der neuen Modellversion zu wiederholen, um mögliche Auswirkungen auf die Quellbeiträge zu untersuchen.

Eine relevante Frage ist, ob die Unterschätzung durch das Modell Auswirkungen auf die berechneten Quellbeiträge hat. Der Vergleich mit der messbasierten Quellzuordnung mittels PMF liefert uns dafür einige Hinweise. Daneben gibt es aber auch Hinweise auf mögliche Ursachen für die verbleibende Differenz.

Die Beiträge der Verkehrsemissionen zeigen eine geringe Korrelation zwischen den Ergebnissen von PMF und LOTOS-EUROS. Darüber hinaus sind die den Verkehrsemissionen zugeschriebenen Konzentrationen für das PMF-Modell viel höher als im LOTOS-EUROS-Modell. Dies lässt sich durch die Auswirkungen des lokalen Verkehrs, der vom Modell nicht aufgelöst wird, und des aufgewirbelten Straßenstaubs erklären, der nicht in LOTOS-EUROS enthalten ist. Ein weiterer möglicher Grund könnte die Erhöhung der Verkehrsemissionen bei kalten Temperaturen sein, die durch die statische zeitliche Verteilung der Emissionen im LOTOS-EUROS nicht beschrieben wird. Die Erhöhung der Modellauflösung zur besseren Beschreibung der Verkehrseffekte, erfordert andere Modelleinstellungen, die nicht einfach realisiert werden können. Um die von LOTOS-EUROS für den Verkehr modellierten PM-Konzentrationen zu verbessern, sollte eine Parametrisierung zur Aufwirbelung von Straßenstaub integriert und ein dynamischer Ansatz zur zeitlichen Verteilung Verkehrsemissionen zur Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit gewählt werden.

Die PMF-Konzentrationen aus der Quelle frisches Salz befinden sich in guter Übereinstimmung mit denen des LOTOS-EUROS-Modells. Damit wird die Qualität der großräumigen Transportmodellierung in LOTOS-EUROS untermauert.

Die Übereinstimmung zwischen den Beiträgen von PMF und LOTOS-EUROS zur Gesamt- und Biomasseverbrennung ist sehr gut und bestätigt somit die in der Studie umgesetzten Aktualisierungen bei den Verbrennungsemissionen in Privathaushalten. Dies ist ein wesentliches Ergebnis dieser Studie. Eine operationelle Nutzung der Emissionsfaktoren einschließlich der kondensierbaren Stoffe für die Holzverbrennung wird empfohlen.

Insgesamt betreffen viele Modellunsicherheiten die Emissionen, für deren Verbesserung Vorschläge gemacht wurden

## 9 Quellenverzeichnis

- Banzhaf, S., Schaap, M., Kerschbaumer, A., Reimer, E., Stern, R., Van Der Swaluw, E., Bultjes, P., 2012. Implementation and evaluation of pH-dependent cloud chemistry and wetdeposition in the chemical transport model REM-Calgrid. *Atmos. Environ.* 49. doi:10.1016/j.atmosenv.2011.10.069
- Brüggemann, E., Gnauk, T., Herrmann, H., Müller, K., Birmili, W., Engler, C., Weinhold, K., Wiedensohler, A., 2007. Abschlussbericht „Einfluss des Ferneintrages auf die Feinstaubbelastung im Ballungsraum“, LfUG Dresden, Aktenzeichen 13-0345.42/254, 254 Seiten.
- Dee, D.P., Uppala, S.M., Simmons, A.J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M.A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A.C.M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A.J., Haimberger, L., Healy, S.B., Hersbach, H., Hólm, E. V., Isaksen, I., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A.P., Monge-Sanz, B.M., Morcrette, J.-J., Park, B.-K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J.-N., Vitart, F., 2011. The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the data assimilation system. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 137, 553–597. doi:10.1002/qj.828
- Denier Van Der Gon, H.A.C., Bergström, R., Fountoukis, C., Johansson, C., Pandis, S.N., Simpson, D., Visschedijk, A.J.H., 2015. Particulate emissions from residential wood combustion in Europe - revised estimates and an evaluation. *Atmos. Chem. Phys.* doi:10.5194/acp-15-6503-2015
- Doms, G., Baldauf, M., 2018. A Description of the Nonhydrostatic Regional COSMO-Model Part I: Dynamics and Numerics, available from <http://www.cosmo-model.org/content/model/documentation/core/default.htm>.
- Doms, G., Forstner, J., Heise, E., Herzog, H.-J., Mironov, D., Raschendorfer, M., Reinhardt, T., Ritter, B., Schrodin, R., Schulz, J.-P., Vogel, G., 2011. A Description of the Nonhydrostatic Regional COSMO Model Part II : Physical Parameterization, available from <http://www.cosmo-model.org/content/model/documentation/core/default.htm>.
- EEA, 2018. Air quality in Europe -- 2018 report, EEA report 12/2018.
- Fabbri, D., Torri, C., Simoneit, B.R.T., Marynowski, L., Rushdi, A.I., Fabiańska, M.J., 2009. Levoglucosan and other cellulose and lignin markers in emissions from burning of Miocene lignites. *Atmos. Environ.* 43, 2286–2295. doi:https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.01.030
- Fountoukis, C., Nenes, A., 2007. ISORROPIAII: A computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K<sup>+</sup>-Ca<sup>2+</sup>-Mg<sup>2+</sup>-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Na<sup>+</sup>-SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Cl<sup>-</sup>-H<sub>2</sub>O aerosols. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 4639–4659.
- Harris, E., Sinha, B., van Pinxteren, D., Tilgner, A., Fomba, K.W., Schneider, J., Roth, A., Gnauk, T., Fahlbusch, B., Mertes, S., Lee, T., Collett, J., Foley, S., Borrmann, S., Hoppe, P., Herrmann, H., 2013. Enhanced role of transition metal ion catalysis during in-cloud oxidation of SO<sub>2</sub>. *Science* 340, 727–30. doi:10.1126/science.1230911
- He, H., Wang, Y., Ma, Q., Ma, J., Chu, B., Ji, D., Tang, G., Liu, C., Zhang, H., Hao, J., 2014. Mineral dust and NO<sub>x</sub> promote the conversion of SO<sub>2</sub> to sulfate in heavy pollution days. *Sci. Rep.* 4, 4172. doi:10.1038/srep04172
- Hendriks, C., Kranenburg, R., Kuenen, J., van Gijlswijk, R., Wichink Kruit, R., Segers, A., Denier van der Gon, H., Schaap, M., 2013. The origin of ambient particulate matter concentrations in the Netherlands. *Atmos. Environ.* 69, 289–303. doi:10.1016/j.atmosenv.2012.12.017
- Hendriks, C., Kranenburg, R., Kuenen, J.J.P.J.P., Van den Bril, B., Verguts, V., Schaap, M., 2016. Ammonia emission time profiles based on manure transport data improve ammonia modelling across north western Europe. *Atmos. Environ.* 131, 83–96. doi:10.1016/j.atmosenv.2016.01.043
- Kaiser, J.W., Heil, A., Andreae, M.O., Benedetti, A., Chubarova, N., Jones, L., Morcrette, J.-J., Razinger, M., Schultz, M.G., Suttie, M., van der Werf, G.R., 2012. Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power. *Biogeosciences* 9, 527–554. doi:10.5194/bg-9-527-2012
- Koeble, R., Seufert, G., n.d. Novel maps for forest tree species in Europe. Proc. Conf. "a Chang. Atmos. Sept 17-20, Torino, Italy.
- Kranenburg, R., Segers, A.J.J., Hendriks, C., Schaap, M., 2013. Source apportionment using LOTOS-EUROS: module description and evaluation. *Geosci. Model Dev.* 6, 721–733. doi:10.5194/gmd-6-721-2013
- Manders, A.M.M., Bultjes, P.J.H., Curier, L., Denier van der Gon, H.A.C., Hendriks, C., Jonkers, S., Kranenburg, R., Kuenen, J., Segers, A.J., Timmermans, R.M.A., Visschedijk, A., Wichink Kruit, R.J., Van Pul, W.A.J., Sauter, F.J., van der Swaluw, E., Swart, D.P.J., Douros, J., Eskes, H., van Meijgaard, E., van Ulft, B., van Velthoven, P., Banzhaf, S., Mues, A., Stern, R., Fu, G., Lu, S., Heemink, A., van Velzen, N., Schaap, M., 2017. Curriculum Vitae of the LOTOS-EUROS (v2.0) chemistry transport model. *Geosci. Model Dev. Discuss.* 1–53. doi:10.5194/gmd-2017-88
- Marécal, V., Peuch, V.-H., Andersson, C., Andersson, S., Arteta, J., Beekmann, M., Benedictow, A., Bergström, R., Bessagnet, B.,

- Cansado, A., Chéroux, F., Colette, A., Coman, A., Curier, R.L., Denier van der Gon, H.A.C., Drouin, A., Elbern, H., Emili, E., Engelen, R.J., Eskes, H.J., Foret, G., Friese, E., Gauss, M., Giannaros, C., Guth, J., Joly, M., Jaumouillé, E., Josse, B., Kadygrov, N., Kaiser, J.W., Krajsek, K., Kuenen, J., Kumar, U., Liora, N., Lopez, E., Malherbe, L., Martinez, I., Melas, D., Meleux, F., Menut, L., Moinat, P., Morales, T., Parmentier, J., Piacentini, A., Plu, M., Poupkou, A., Queguiner, S., Robertson, L., Rouil, L., Schaap, M., Segers, A., Sofiev, M., Tarasson, L., Thomas, M., Timmermans, R., Valdebenito, Á., van Velthoven, P., van Versendaal, R., Vira, J., Ung, A., 2015. A regional air quality forecasting system over Europe: the MACC-II daily ensemble production. *Geosci. Model Dev.* 8, 2777–2813. doi:10.5194/gmd-8-2777-2015
- Mårtensson, E.M., Nilsson, E.D., de Leeuw, G., Cohen, L.H., Hansson, H.C., 2003. Laboratory simulations and parameterization of the primary marine aerosol production. *J. Geophys. Res. D Atmos.* 108.
- Monahan, E.C., Spiel, D.E., Davidson, K.L., 1986. A Model of Marine Aerosol Generation Via Whitecaps and Wave Disruption. Springer, Dordrecht, pp. 167–174. doi:10.1007/978-94-009-4668-2\_16
- Mues, A., Kuenen, J., Hendriks, C., Manders, A., Segers, A., Scholz, Y., Hueglin, C., Bultjes, P., Schaap, M., 2014. Sensitivity of air pollution simulations with LOTOS-EUROS to the temporal distribution of anthropogenic emissions. *Atmos. Chem. Phys.* 14, 939–955. doi:10.5194/acp-14-939-2014
- Pesch, M., Frenzel, W., Kanitz, T., 2007. Source analysis of the PM<sub>2.5</sub> pollution in Berlin. Institute for Environment Process Technology of TU Berlin. Final report on behalf of Senate Department for Health, Environment and Consumer Protection. [www.stadtentwicklung.berlin.de/umwelt/luftqualitaet/d](http://www.stadtentwicklung.berlin.de/umwelt/luftqualitaet/d).
- Reimer, E., Kerschbaumer, A., Möller, D., Pesch, M., 2005. AFO2000 – Final Report: Investigation of Vertical and Horizontal Transport Processes and their Influence on the Concentrations of Ozone and Aerosols near the Surface (HoVerT). Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF), AFO 2000, Projekt-Nr. 07ATF.
- Schaap, M., Kranenburg, R., Curier, L., Jozwicka, M., Dammers, E., Timmermans, R., 2013. Assessing the sensitivity of the OMI-NO<sub>2</sub> product to emission changes across europe. *Remote Sens.* 5, 4187–4208. doi:10.3390/rs5094187
- Schaap, M., Manders, A.M.M., Hendriks, E.C.J., Cnossen, J.M., Segers, A.J.S., Denier van der Gon, H.A.C., Jozwicka, M., Sauter, F., Velders, G., Matthijsen, J., Bultjes, P.J.H., 2009. Regional Modelling of Particulate Matter for the Netherlands 99.
- Schaap, M., van Loon, M., ten Brink, H.M., Dentener, F.J., Bultjes, P.J.H., 2004. Secondary inorganic aerosol simulations for Europe with special attention to nitrate. *Atmos. Chem. Phys.* 4, 857–874. doi:10.5194/acp-4-857-2004
- Schneider, C., Pelzer, M., Toenges-Schuller, N., Nacken, M., Niederau, A., 2016. ArcGIS basierte Lösung zur detaillierten, deutschlandweiten Verteilung (Gridding) nationaler Emissionsjahreswerte auf Basis des Inventars zur Emissionsberichterstattung, UBA Texte | 71/2016.
- Seibert, P., Beyrich, F., Gryning, S.-E., Joffre, S., Rasmussen, A., Tercier, P., 2000. Review and intercomparison of operational methods for the determination of the mixing height. *Atmos. Environ.* 34, 1001–1027. doi:http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00349-0
- Stern, R., Bultjes, P., Schaap, M., Timmermans, R., Vautard, R., Hodzic, A., Memmesheimer, M., Feldmann, H., Renner, E., Wolke, R., Kerschbaumer, A., 2008. A model inter-comparison study focussing on episodes with elevated PM<sub>10</sub> concentrations. *Atmos. Environ.* 42, 4567–4588. doi:10.1016/j.atmosenv.2008.01.068
- Timmermans, R., Kranenburg, R., Manders, A., Hendriks, C., Segers, A., Dammers, E., Denier van der Gon, H., Schaap, M., Dammers, E., Zhang, Q., Wang, L., Liu, Z., 2017. Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> across China using LOTOS-EUROS. *Atmos. Environ.* 164. doi:10.1016/j.atmosenv.2017.06.003
- UBA, 2018. Luftqualität 2017: Rückgang der Stickstoffdioxidbelastung reicht noch nicht aus [WWW Document]. URL <https://www.umweltbundesamt.de/presse/pressemitteilungen/luftqualitaet-2017-rueckgang-der> (accessed 1.18.19).
- UBA, 2017a. Indikator: Gesundheitsrisiken durch Feinstaub [WWW Document]. URL <https://www.umweltbundesamt.de/indikator-gesundheitsrisiken-durch-feinstaub#textpart-1>
- UBA, 2017b. Nationale Trendtabellen für die deutsche Berichterstattung atmo-sphärischer Emissionen 1990-2015. [WWW Document].
- van Pinxteren, D., Mothes, F., Spindler, G., Fomba, K.W., Herrmann, H., 2019. Trans-boundary PM<sub>10</sub>: Quantifying impact and sources during winter 2016/17 in eastern Germany. *Atmos. Environ.* 200, 119–130. doi:https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.11.061
- van Pinxteren, D., Mothes, F., Spindler, G., Fomba, K.W., Herrmann, H., 2017. Auswertung der gravimetrischen PM<sub>10</sub>-Messungen in Sachsen, Brandenburg, Mecklenburg-Vorpommern und Berlin zur Identifikation des Anteils verschiedener Quellen an der Feinstaubbelastung anhand der Inhaltsstoffe und anhand von Rezeptormodellierung (PM-Ost),.
- Van Zanten, M.C., Sauter, F.J., Wichink Kruit, R.J., Van Jaarsveld, J.A., Van Pul, W.A.J., n.d. Description of the DEPAC module: Dry deposition modelling with DEPAC GCN2010. RIVM Rep. 680180001/2010.

- Waked, A., Favez, O., Alleman, L.Y., Piot, C., Petit, J.-E., Delaunay, T., Verlinden, E., Golly, B., Besombes, J.-L., Jaffrezo, J.-L., Leoz-Garziandia, E., 2014. Source apportionment of PM<sub>10</sub> in a north-western Europe regional urban background site (Lens, France) using positive matrix factorization and including primary biogenic emissions. *Atmos. Chem. Phys.* 14, 3325–3346. doi:10.5194/acp-14-3325-2014
- Walcek, C.J., 2000. Minor flux adjustment near mixing ratio extremes for simplified yet highly accurate monotonic calculation of tracer advection. *J. Geophys. Res. Atmos.* 105, 9335–9348.
- Wang, Y., Beirle, S., Lampel, J., Koukouli, M., De Smedt, I., Theys, N., Li, A., Wu, D., Xie, P., Liu, C., Van Roozendaal, M., Stavrou, T., Müller, J.-F., Wagner, T., 2017. Validation of OMI, GOME-2A and GOME-2B tropospheric NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> and HCHO products using MAX-DOAS observations from 2011 to 2014 in Wuxi, China: investigation of the effects of priori profiles and aerosols on the satellite products. *Atmos. Chem. Phys.* 17, 5007–5033. doi:10.5194/acp-17-5007-2017
- Whitten, G., Hogo, H., Killus, J., 1980. The carbon bond mechanism for photochemical smog. *Environ. Sci. Technol.*
- WHO, 2016. Ambient air pollution: A global assessment of exposure and burden of disease.
- Wichink Kruit, R.J., Schaap, M., Sauter, F.J., van Zanten, M.C., van Pul, W.A.J., 2012. Modeling the distribution of ammonia across Europe including bi-directional surface–atmosphere exchange. *Biogeosciences* 9, 5261–5277. doi:10.5194/bg-9-5261-2012
- Yan, C., Zheng, M., Sullivan, A.P., Shen, G., Chen, Y., Wang, S., Zhao, B., Cai, S., Desyaterik, Y., Li, X., Zhou, T., Gustafsson, Ö., Collett, J.L., 2018. Residential Coal Combustion as a Source of Levoglucosan in China. *Environ. Sci. Technol.* 52, 1665–1674. doi:10.1021/acs.est.7b05858
- Zhang, L., 2001. A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmos. Environ.* 35, 549–560. doi:10.1016/S1352-2310(00)00326-5