Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 201 43 250 auf dem Gebiet des Umweltschutzes "Anwendung modellgestützter Beurteilungssyteme für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien"

Immissionsklima 1995 - 2003 aus Beobachtung und Modellrechnung Einfluss von Wettervariabilität und Emissionstrends

Johannes Flemming Rainer Stern



Freie Universität Berlin Institut für Meteorologie Troposphärische Umweltforschung

Mai 2004

Berichts-Kennblatt										
BerichtsnummerUBA-FB	2.	3.								
4. Titel des Berichts										
Immissionsklima 1995 - 2003 aus Beoba Emissionstrends	achtung und Modellrechnung- E	Einfluss von Wettervariabilität und								
5. Autor(en), Name(n), Vorname(n) Flemming, Johannes Stern Rainer		8. Abschlußdatum Mai 2004								
6. Durchführende Institution (Name, A	nschrift)	9. Veröffentlichungsdatum Mai 2004								
Freie Universität Berlin, Institut für Meter	prologie	10. UFOPLAN-Nr.								
Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10	Jologie	201 43 250								
12165 Berlin										
7. Fördernde Institution (Name, Ansch	rift)	11. Seitenzahl 87								
Umweltbundesamt, Postfach 33 00	22, D-14191 Berlin	12. Literaturangaben 20								
		13. Tabellen und Diagramme 12								
		14. Abbildungen 65								
15. Zusätzliche Angaben										
16. Kurzfassung										
In diesem Bericht wurden die jährlichen Zeitraum 1995-2003 untersucht. Es wurd Variabilität der mittleren Immissionsbela beobachtete Immissionswerte, meteorol Transport-Modell REM-CALGRID. Ziel d Basisjahr und ein meteorologisch "ungür CALGRID-Modell wurden dazu europaw Berücksichtigung des Emissionstrends b zur Immissionsvariabilität erfolgte für alle Die Modellrechnungen für den Zeitraum beim SO ₂ am geringsten ist. Bei PM10 u Rolle. Die meteorologische Variabilität h In dem betrachteten Zeitraum 1995 bis 2 Deutschland im sommerwarmen Jahr 20 kalte und windschwache Jahr 1996. Dies könnten als meteorologische worst case	Unterschiede der Immission vor de versucht, den Einfluss von W stung in Deutschland zu bestim ogische Daten und europaweite er hier vorgestellten Untersuchu nstiges" Jahr für Emissionsszen eit die stündlichen Immissionsve berechnet. Die Separierung der I a Jahre anhand von Szenarierre 1995 bis 2003 zeigen, dass der und NO ₂ spielen beide Einflussgi at also insgesamt einen großen 2003 traten die meteorologisch b 003 auf. Für die anderen Stoffe i se beiden Jahre bilden eine deu e" Jahre in zukünftigen Emission	n Ozon, NO ₂ , PM10 und SO ₂ in Deutschland im /ettervariabilität und Emissionsänderungen auf die men. Grundlage der Untersuchung waren ausbreitungsrechnungen mit dem Chemie- ung war es weiterhin, ein meteorologisches iariorechnungen zu ermitteln. Mit dem REM- erteilungen für die Jahre 1995-2003 unter Beiträge des "Wetters" bzw. des Emissionstrends echnungen. r Wettereinfluss beim Ozon am stärksten und irößen, Wetter und Emissionstrend, eine wichtige Einfluss auf die Immissionswerte. bedingten positiven Anomalien für Ozon in ist das meteorologisch ungünstigste Jahr das utliche Besonderheit im betrachteten Zeitraum und nsszenarien mit REM-CAI GRID verwendet								

werden. Als mittleres meteorologische Basisjahr kann 1998 verwendet werden, da dieses Jahr am ehesten den Einfluss mittlerer meteorologischer Verhältnisse auf die Immissionen wiedergibt, bezogen auf den Zeitraum 1995 bis 2003.

17. Schlagwörter

Immissionsvariabilität, Emissionstrends, Wettereinfluss, Ausbreitungsrechnung, meteorologisches Referenzjahr, Szenariorechnungen, REM-CALGRID-Modell

Report Cover Sheet

Rep	oort No.UBA-FB	2.		3.	
4.	Report Title			·	
lm Em	missionsklima 1995 - 2003 aus Beo issionstrends	bachtung und Modellrechnung-	Einflu	ss von Wettervariabilität und	
con	Air quality climatology 1995 – 2003 ditions and emission trends	3 derived from observations and	d model	calculations- Influence of weather	
5.	Autor(s), Family Name(s), First Na	me(s)	8.	Report Date	
	Flemming, Johannes Stern Rainer			May 2004	
			9.	Publication Date	
6.	Performing Organisation (Name, A	Address)		May 2004	
Fre	ie Universität Berlin, Institut für Met	eorologie	10.	UFOPLAN-Ref. No.	
Car	I-Heinrich-Becker-Weg 6-10				
121	65 Berlin				
				201 43 250	
				201 43 250	
			11.	201 43 250 No. of Pages	
7			11.	201 43 250 No. of Pages 87	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre	ss)	11.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre Umweltbundesamt, Postfach 33 00	ss) 0 22, D-14191 Berlin	11.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference 20	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre Umweltbundesamt, Postfach 33 00	ss) 0 22, D-14191 Berlin	11. 12. 13.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference 20 No. of Tables, Diagrams	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre Umweltbundesamt, Postfach 33 00	ss) 0 22, D-14191 Berlin	11. 12. 13.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference 20 No. of Tables, Diagrams 12	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre Umweltbundesamt, Postfach 33 00	ss) 0 22, D-14191 Berlin	11. 12. 13. 14.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference 20 No. of Tables, Diagrams 12 No. of Figures	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre Umweltbundesamt, Postfach 33 00	ss) 0 22, D-14191 Berlin	11. 12. 13. 14.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference 20 No. of Tables, Diagrams 12 No. of Figures 65	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre Umweltbundesamt, Postfach 33 00 Supplementary Notes	ss) 0 22, D-14191 Berlin	11. 12. 13. 14.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference 20 No. of Tables, Diagrams 12 No. of Figures 65	
7.	Sponsoring Agency (Name, Addre Umweltbundesamt, Postfach 33 00 Supplementary Notes	ss) 0 22, D-14191 Berlin	11. 12. 13. 14.	201 43 250 No. of Pages 87 No. of Reference 20 No. of Tables, Diagrams 12 No. of Figures 65	

investigated by means of observations and model calculations employing the CTM REM-CALGRID. The influence of the weather conditions and the emission trend was separated in model scenario calculations. Furthermore, a meteorological reference and a meteorological worst case year were determined for the use in emissions scenario calculations.

The model calculations show that the influence of the weather conditions on air quality is large for ozone and rather small for SO2. For PM10 and NO2 both factors, weather and emission trend, play an important role in the year-to-year variability.

For ozone, the year 2003 can be used as a worst case year, for the other species the worst case year is 1996. As a reference year that reflects typical meteorological conditions for Germany, the year 1998 can be used.

17. Keywords

Air quality climatology, emissions trend, weather variability, dispersion modelling, emission scenario calculations, meteorological base year, REM-CALGRID-model

Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 201 43 250

auf dem Gebiet des Umweltschutzes

"Anwendung modellgestützter Beurteilungssyteme für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien"

Immissionsklima 1995 - 2003 aus Beobachtung und Modellrechnung Einfluss von Wettervariabilität und Emissionstrends

für: Umweltbundesamt II 6.1 Postfach 33 00 22 14191 Berlin

Johannes Flemming Rainer Stern

Institut für Meteorologie Freie Universität Berlin

Mai 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Einf	führung	1
2	Date	engrundlage und Auswertemethodik	4
	2.1	Auswertemethodik	4
	2.2	Rank Korrelation zur Quantifizierung von statistischen Zusammenhängen	6
	2.3	Qualität und Verfügbarkeit von Immissionsdaten	7
	2.4	Modellrechnungen	9
	2.5	Meteorologische Daten	11
	2.6	Regimeklassifikation	12
	2.7	Grenzwerte der EU-Richtlinien	15
3	Zwi	schenjährliche Variabilität von Immission und Wetter	. 17
	3.1	Zwischenjährliche Variabilität der Witterung	17
	3.2	Zwischenjährliche Variabilität der Immission	20
	3.3	Einfluss der Stationsauswahl auf die ermittelte Variabilität	24
	3.4	Wettervariabilität und Variabilität der beobachteten Immissionen	27
4	Mod	lellierung der zwischenjährlichen Immissionsvariabilität	. 32
	4.1	Zwischenjährliche Variabilität der Emission in RCG	32
	4.2	Die zwischenjährliche Variabilität in der Modellrechnung - räumliche Struktur.	35
	4.3	Variabilität aus Modellrechnung und Beobachtung	42
	4.3.1	Vergleich der Jahresmittelwerte	.42
	4.3.2	2 Vergleich anhand einer Auswertung bzgl. der EU-Ziel- bzw. Grenzwerte	51
5	Imn	nissionsvariabilität aufgrund von Emissions- und Wettervariabilität	. 54
	5.1	Überblick	54
	5.2	Wirkung von "Emissionstrendeinfluss" und "Wettereinfluss"	54
	5.3	Bandbreite und typische Verhältnisse	65
	5.3.1	1 Überblick	. 65
	5.3.2	2 Ozon	66
	5.3.3	3 NO ₂	69
	5.3.4	4 PM10	.71

	5.3.5 SO ₂	
6	Zusammenfassung	
7	Literatur	
8	Abbildungsverzeichnis	
9	Tabellenverzeichnis	

1 Einführung

In diesem Bericht wird der Versuch unternommen, den Einfluss von Wettervariabilität und Emissionstrends auf die zwischenjährliche Variabilität der Immission im Zeitraum 1995-2003 in Deutschland zu quantifizieren. Grundlage bilden die beobachteten Immissionswerte, die meteorologischen Daten sowie Modellrechnungen. Die Trennung des Einflusses von Wetter und Emissionstrends auf die Immission ist von größter Wichtigkeit für die Bewertung von Maßnahmen zur Senkung der Emission, da erst damit Aussagen getroffen werden können, wie weit die mit Ausbreitungsmodellen berechnete Wirkung einer Maßnahme von der durch die zwischenjährlichen meteorologischen Schwankungen vorgegebenen Bandbreite der Immissionsverteilungen überlagert werden kann.

Die Immission wird durch die Emission und durch die Ausbreitung der emittierten Schadstoffe in der Atmosphäre bestimmt. Die zwischenjährlichen Unterschiede im deutschen Immissionsklima sind demzufolge eine Folge von Veränderungen der Emission sowie der die Transmission bestimmenden meteorologischen Verhältnisse in Deutschland und Europa. Weiterhin können globale Veränderungen der Spurenstoffkonzentrationen die lokalen Immissionswerte beeinflussen.

Für die Luftreinhaltung stellt sich die Frage nach dem Einfluss von Emission und Wetter, da ersterer durch menschliche Aktivität in gewissen Umfang, d.h. durch Emissionsminderungsstrategien, steuerbar ist¹. Die Beobachtung und ihre korrekte Interpretation können die zwischenjährlichen Immissionsänderungen zwar beschreiben, eine Ursachenanalyse auf Basis von Messungen ist allerdings nur sehr beschränkt möglich. Eine Trennung von Wetter- und Emissionstrendeinfluss wurde z. B. durch die Untersuchung von "wetterbereinigten" Trends von Enke (1999) unternommen. Hierbei wurde der Wettereinfluss in den Immissionszeitreihen statistisch erfasst und anschließend beseitigt. Das statistische Verfahren kann jedoch nur relative geringe kurzfristige meteorologische Schwankungen erfassen und damit "bereinigen". Problematisch sind bei diesem Verfahren starke und längerfristige Abweichungen, d.h. langfristige Trends oder Besonderheiten wie z.B. der warme Sommer 2003, da diese die Grundgesamtheit deutlich verändern.

Rechnungen mit chemischen Transportmodellen bieten eine bessere Möglichkeit zur Abschätzung der meteorologisch und emissionsseitig bedingten Variabilität des Immissionsklimas, da die zugrunde liegenden Prozesse simuliert werden. Meteorologische Daten und die Emission können getrennt variiert werden, was einen Vergleich des Einflusses beider Einflussgrößen auf die Immission verschiedener Jahre erlaubt. Die interannuellen Unterschiede der Modellrechnung beruhen auf den Unterschieden in den meteorologischen Daten ("Jahreswitterung") und den jahresspezifischen Abschätzungen der Emission. Szenariorechnungen könnten somit Hinweise zur Trennung der Einflussfaktoren geben. Eine vollständige Trennung beider Faktoren ist aufgrund nichtlinearer Wechselwirkungen und aufgrund des Wettereinflusses auf die Emission jedoch nicht möglich.

Während Tages-, Wochen- oder Jahresgang der Immission die Folge "starker Anregungen²" sind, sind die Unterschiede von Jahr zu Jahr die Wirkung der kleinen Differenzen zwischen

¹ Die Frage nach dem durch menschliche Aktivität veränderten Klima stellt einen weiteren Gesichtspunkt dar. Erste Ansätze zur Beantwortung dieser Fragen liefert Dimov (2002).

² Sonnenstand, tägliche Emissionszyklen etc.

diesen Anregungen. Ihre Erfassung und Modellierung ist demzufolge schwierig. Die Fragen der langfristigen Variabilität sind jedoch von großer umweltpolitischer Bedeutung. Auch hierbei stellt sich die Frage nach den Ursachen, die sowohl im veränderten Emissionsaufkommen als auch in der unterschiedlichen "Jahreswitterung" oder im globalen Spurenstoffhaushalt liegen können. Die Beantwortung dieser Frage ist grundlegend für die Maßnahmenplanung, da die Wirkung von Emissionsänderungen durch die Wettervariabilität und durch globale Änderungen überdeckt werden kann.

Für die Untersuchung des Einflusses von Wetter- und Emissionsvariabilität auf die Immissionen in Deutschland wurde das chemische Transportmodell REM-CALGRID (RCG) verwendet. Dieses Modell wurde im Rahmen zweier vom Umweltbundesamt geförderter FE-Vorhaben speziell entsprechend den in den EU-Richtlinien zur Luftqualität definierten Anforderungen an die Ausbreitungsrechnung entwickelt (Stern, 2003a; Stern et al., 2003).

Die Variabilität des Wetters ist in dem betrachteten Zeitraum von 1995 bis 2003 durch die vorliegenden meteorologischen Beobachtungen und deren Analyse gut erfasst. Die für die Modellanwendungen verwendete Emissionsdatenbasis und ihre Veränderung sind mit weitaus größerer Unsicherheit aus Emissionserhebungen für das Jahr 1995 und stoff- und verursacherspezifischen Fortschreibungsfaktoren für die weiteren Jahre bekannt (Stern, 2003b; Builtjes et al. , 2002). Die Emission zu einem bestimmten Zeitpunkt der Rechnung wird mit Hilfe von Zeitfaktoren, die den Tages-, Jahres- und Wochengang beschreiben, aus den Jahreswerten bestimmt. Die Emission ist zudem in vielen Fällen vom Wetter beeinflusst. Dies betrifft vor allem die Emission organischer Substanzen aus biogenen und anthropogenen Quellen, die Emission durch Heiz- und Kühlaufwendung und die Windaufwirbelung von Staub.

Die durch die Wettervariabilität verursachten Immissionsunterschiede können mit dem Modell abgeschätzt werden, indem die Modellrechungen für die Jahre 1995-2003 mit den Emissionsdaten für ein bestimmtes Jahr durchgeführt werden. Der Wirkung der zeitlichen Emissionsänderungen zwischen 1995-2001, die mit Hilfe der Fortschreibungsfaktoren aus den Basisemissionen 1995 bestimmt werden, wird mit den meteorologischen Daten eines bestimmten Jahres (meteorologisches Basisjahr) berechnet.

Als meteorologisches Basisjahr wird das Jahr 1997 ausgewählt, da es nach der Untersuchung von Enke (2002) das hinsichtlich der Temperatur typischste Jahr für den Zeitraum 1990-2000 ist. Die Untersuchung von Enke wurde im Rahmen dieses UBA-Forschungsvorhabens durchgeführt

Die Bestimmung der Auswirkung eines Emissionsszenarios auf die Immission ist eine wichtige Aufgabe für die Modellierung. Dazu werden zwei Simulationen unter der Verwendung identischer meteorologischer Daten (meteorologisches Basisjahr) aber unterschiedlicher Emissionen durchgeführt. Bei der Bewertung der Unterschiede müssen die charakteristischen Eigenschaften des meteorologischen Basisjahrs, d.h. der "Wettereinfluss" berücksichtigt werden, da die Immissionsänderung aufgrund der Emissionsänderung bei unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen verschieden stark ausfallen kann. Insbesondere das Auftreten hoher Konzentrationswerte ist oft an extreme meteorologische Bedingungen geknüpft und kann damit stark von Jahr zu Jahr variieren. Damit hat der Wettereinfluss auch Auswirkungen auf die Zielvorstellungen der EU-Richtlinien zur Luftqualität, da deren Grenzwerte sich zum Teil aus einer Konzentrationsschwelle und einer zulässigen Anzahl von Überschreitungen innerhalb eines Jahres zusammensetzen. Gerade diese Überschreitungen werden aber durch extreme meteorologische Bedingungen werBandbreite der durch die meteorologische Variabilität entstandenen Immissionsvariabilität kann damit auch als Beitrag zur Luftreinhalteplanung verstanden werden. In diesem Bericht werden dazu auf Basis der RCG-Modellrechnungen hinsichtlich des Wettereinflusses auf die Immission typische und extreme meteorologische Jahre aus dem Zeitraum 1995-2003 ermittelt.

Massenbilanzgleichungen für die zeitliche Änderung der Konzentration sind die Grundlage der Chemie-Transport-Modellierung. Die Untersuchung der Simulation der zeitlichen Variation ist demzufolge besonders wichtig für eine prozessorientierte Modellevaluierung. Während die Evaluierung von CT-Modellen häufig die Wiedergabe des Tagesganges und in einigen Fällen auch die des Wochen- und Jahresganges betrachtet, sind Modellgüteuntersuchungen hinsichtlich der zwischenjährlichen Variabilität aufgrund des großen numerischen Aufwandes der Rechnungen noch nicht durchgeführt worden. Die Ergebnisse des vorliegenden Berichtes stellen damit einen qualitativ neuen Beitrag zur Anwendung der Chemie-Transport Modellierung dar.

2 Datengrundlage und Auswertemethodik

2.1 Auswertemethodik

In diesem Bericht wird der klimatologische Zusammenhang zwischen meteorologischen Feldern, der Emission und Immissionsgrößen untersucht. Im Mittelpunkt stehen die Ermittlung der typischen Verhältnisse und die Abschätzung der Bandbreite der zwischenjährlichen Variabilität der Immission. Die Variabilität der Immission soll dabei mit der Variabilität der meteorologischen Situation und der Emissionstrends erklärt werden.

Als Basis für die Untersuchungen werden an deutschen Messstationen ermittelte Zeitreihen verwendet:

- 1-stündige beobachtete Zeitreihen von Ozon, PM10/ TSP (zum Teil nur 24h- bzw. 3h-Mittelwerte), NO₂ und SO₂ für den Zeitraum 1995-2003 aus den Messnetzen der Bundesländer und des Umweltbundesamtes,
- 3-stündige meteorologische Zeitreihen von 2m-Temperatur, 10m-Wind, Niederschlag und Mischungsschichthöhe an den deutschen Immissionsmessstationen für den Zeitraum 1995-2003 (gewonnen aus der großräumigen diagnostischen Analyse),
- 1-stündige mit RCG berechnete Zeitreihen von Ozon, PM10, NO₂ und SO₂ für den Zeitraum 1995-2003 (Meteorologie und Emissionstrend-Einfluss),
- 1-stündige mit RCG berechnete Zeitreihen von Ozon, PM10, NO₂ und SO₂ für den Zeitraum 1995-2003 bei Verwendung von variabler Meteorologie und konstanter Jahresemission von 1997 (nur Meteorologie–Einfluss),
- 1-stündige mit RCG berechnete Zeitreihen von Ozon, PM10, NO₂ und SO₂ für den Zeitraum 1995-2000 bei Verwendung der Meteorologie von 1997 und angenommenen anthropogenen Emissionstrends (nur Emissionstrend-Einfluss).

Eine genauere Beschreibung der Datenbasis erfolgt in den Unterkapiteln 2.3 bis 2.5. Für die durchgeführte Untersuchung werden die vorliegenden Daten nach folgendem, in Abbildung 1 dargestelltem Vorgehen zusammengefasst:

1. Jede vorliegende beobachtete vollständige Jahreszeitreihe wird mit Hilfe verschiedener klimatologischer Parameter zusammengefasst, die die mittleren und extremen Verhältnisse charakterisieren. Für alle Stationen mit vollständiger Beobachtungsreihe wird der entsprechende Wert aus der Modellrechnung und den meteorologischen Daten bestimmt. Es handelt sich dabei um die folgenden Parameter:

• Mittelwert (ZRM) für das gesamte Jahr und die vier Jahreszeiten³,

³ Die Jahreszeit Winter (WIN) umfasst dabei die Monate Januar, Februar und Dezember eines Jahres. Frühling (SPR), Sommer (SUM) und Herbst (AUT) ergeben sich aus den Monaten März, April, Mai (SPR), Juni, Juli, August (SUM) sowie aus September, Oktober und November (AUT).

- 98-Perzentil (P98MA) der Tagesmittelwerte des gesamten Jahres und der vier Jahreszeiten,
- Überschreitung von Immissions-Grenzwerten nach den EU-Richtlinien⁴ (siehe Tabelle 8).

2. Das Ensemble der Parameter wird dann mit dem Mittelwert über alle bzw. nur über die Gruppe bestimmter Stationen für Beobachtung und Modellrechnung zu jeweils einem Wert zusammengefasst.

3. Zur Darstellung der zwischenjährlichen Variabilität werden die Anomalien betrachtet. Die Anomalien werden berechnet, indem der Mittelwert der jahresbezogenen und stationsübergreifenden Mittelwerte (nach 2.) von diesen Werten abgezogen wird. Die Summe der Anomalien über den gesamten Zeitraum beträgt Null. Jedes Jahr trägt damit unabhängig von der Anzahl der verfügbaren Stationen gleichermaßen zur Anomaliebildung bei.

4. Das Ensemble der stationsübergreifenden Mittelwerte (nach 2.) und deren Anomalien werden zur grafischen Darstellung der Unterschiede für jedes Jahr des betrachteten Zeitraums dargestellt. Weiterhin wird die Korrelation der Anomalien untersucht und die Bandbereite der Variabilität ermittelt.



Abbildung 1: Prinzip der Mittelwertbildung zur Untersuchung der zwischenjährlichen Variabilität

⁴ Neben den Mittelwerten und Maximalwerten ist für die Luftreinhaltung auch die Anzahl der Überschreitungen von Grenzwerten ein wichtiges Kriterium. Da es dabei um die Überschreitung von Schwellenwerten geht, können relativ geringe Änderungen des Immissionsniveaus zu großen Änderungen der Überschreitung führen.

2.2 Rank Korrelation zur Quantifizierung von statistischen Zusammenhängen

Zur Überprüfung des statistischen Zusammenhanges zwischen den zwischenjährlichen Anomalien von Modellrechnung, Beobachtung und meteorologischer Situation steht nur ein kleines Ensemble von maximal 9 Jahren zur Verfügung, das für die Berechnung einer aussagekräftigen Korrelation und von Trends zu klein ist.

Aus diesem Grund wird der Zusammenhang der Anomalien zunächst nur grafisch dargestellt. Weiterhin wird der Rank-Korrelationskoeffizient nach Spearmann (siehe z.B. Wilks 1995) als robustes Maß zur Quantifizierung des statistischen Zusammenhanges berechnet. Sein Wertebereich schwankt genau wie der des üblichen Korrelationskoeffizienten (Pearson) zwischen –1 und 1. Während der "gewöhnliche" Korrelationskoeffizient auf den gegenseitigen Abweichungen vom Mittelwert beruht, bewertet der Rank-Korrelationskoeffizient nach Spearmann den Rang der einzelnen Daten, d.h. ihre Reihenfolge, wenn sie der Größe nach sortiert werden. Die entscheidende Größe ist dabei die Differenz in den Perzentilen eines Wertepaares. Ein Korrelationskoeffizient von 1 tritt auf, wenn die Werte der Datenpaare jeweils die größten, zweitgrößten und so weiter in ihrem Ensemble sind. Die absoluten Unterschiede spielen jedoch keine Rolle. Durch diese Eigenschaft ist der Rank-Korrelationskoeffizent robust gegenüber Ausreißern, da es keinen Einfluss hat, ob z.B. der größte Wert deutlich oder nur wenig größer als der Rest ist. Der Rank Korrelationskoeffizient wird mit folgender Formel berechnet:

$$R = 1 - \frac{6\sum_{i=1}^{n} d_i^2}{n^3 - n}$$

n = Anzahl der Wertepaare
d = Differenz in der Reihenfolge (Rank)
R = Rank Korrelation

Das Signifikanzniveau⁵ des Rank-Korrelationskoeffizienten für nur 9 Wertepaare ist hoch. Man kann sich dies bewusst machen, indem man die aus zufällig konstruierten Ensembles mit 9 Datenpaaren ermittelten Korrelationen im Histogramm darstellt (siehe Abbildung 2). Ca. 20% der Korrelationskoeffizienten sind dabei größer als 0.5 oder kleiner als –0.5. Eine Korrelation größer 0.5 oder kleiner – 0.5 wird in den Auswertungen dieses Berichts als ein deutlicher statistischer Zusammenhang bewertet. Die zugehörige Irrtumswahrscheinlichkeit beträgt dabei folglich 20%. Die theoretisch abgeleiteten Signifikanzschwellen der Rank-Korrelation ergeben sich bei 9 Datenpaaren zu 0.976 (0.1% Irrtumswahrscheinlichkeit), 0.833 (1%), 0.73 (5%) und 0.6 (10%). Eine nicht erreichte Signifikanzschwelle bedeutet jedoch nicht, dass der gefundene statistische Zusammenhang nicht besteht, sondern nur, dass er auch mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit (=Irrtumswahrscheinlichkeit) zufällig in den Daten aufgetreten sein kann.

⁵ Das Signifikanzniveau gibt an, ab welcher Größe der Korrelation ein solcher Wert mit der zugehörigen Irrtumswahrscheinlichkeit rein zufällig aufgetreten sein kann.



Abbildung 2: Histogramm der Rank-Korrelationskoeffizienten aus 3000 zufällig konstruierten Ensembles aus je 9 Datenpaaren.

Es muss dabei betont werden, dass sich die Korrelation nur auf die stationsübergreifenden Anomalien (Mittel über alle Stationen) bezieht, d.h. z.B. ob ein im Mittel zu windstarker Sommer mit einem im stationsübergreifenden Mittel zu ozonarmen Sommer verbunden ist. Die Frage, inwieweit hohe Winde oder Temperaturen etc. mit den an den einzelnen Stationen gemessenen stündlichen Immissionswerten im Zusammenhang stehen, wird dabei nicht beantwortet.

Die Korrelation ist ein relatives Maß und gibt keine Auskunft über die absolute Größe der Abweichung. Aus diesem Grund ist es notwendig, auch die Bandbreite der zwischenjährlichen Immissionsschwankung zu ermitteln und zu vergleichen. Dazu wird der Schwankungsbereich, auch Bandbreite genannt, ermittelt und die Differenz zwischen dem höchsten und niedrigsten Jahreswert darstellt. Weiterhin kann der Median des Ensembles der neun betrachteten Jahre das für den Zeitraum typische bzw. repräsentative Jahr definieren.

2.3 Qualität und Verfügbarkeit von Immissionsdaten

Die Erfassung von troposphärischen Spurenstofftrends im nationalen, europäischen oder globalen Maßstab ist Inhalt umfangreicher Forschungsaktivität (z. B. Beilke und Uhse, 1999, Roemer, 2001 und Oltmans, 1998). Die korrekte Erfassung der zwischenjährlichen Variabilität aus der Beobachtung ist mit Problemen behaftet, denn die Anzahl der messenden und ausreichend vollständigen Stationen ist sehr uneinheitlich und die Messungen sind von unterschiedlicher Qualität. Dieses Problem wird auch von anderen Autoren, bei der Detektion von Immissionstrends in den Mittelpunkt gestellt (Roemer, 2001). Der Schwerpunkt dieser Untersuchung liegt aber nicht auf der Feststellung von Trends⁶, sondern auf der Untersuchung der Fähigkeit des Modells, die interannuelle Variabilität wiederzugeben.

Die hier verwendeten Beobachtungsdaten sind stündliche Zeitreihen der bodennahen Messung für Ozon (O₃), Stickstoffdioxid (NO₂), Schwefeldioxid (SO₂), Staub (TSP⁷) und Feinstaub (PM10⁸). Die Daten stammen aus den Messnetzen der deutschen Bundesländer und des Umweltbundesamtes. Die Daten des Zeitraumes 1995-2002 sind geprüfte und fehlerbereinigte Daten, die Daten des Jahres 2003 sind ungeprüft und stammen direkt aus dem opera-

⁶ Hierzu ist die betrachtete Periode zu kurz.

⁷ Total suspended matter

⁸ Particulate matter mit einem effektivem Durchmesser von weniger als 10µm

tionellen Daten-Länder-Austausch. Die Anzahl der vorliegenden Stationsmessungen ist für 2003 auch deutlich geringer als für den übrigen Zeitraum.

Für die EU-Rahmenrichtlinie ist nur die Fraktion des Staubes mit einem Durchmesser kleiner 10 μ m (PM10) von Interesse. PM10-Messungen liegen jedoch erst seit 2000 in größerem Umfang vor. Aus diesem Grund wird die PM10-Konzentration auch aus den TSP-Messungen abgeleitet. Dabei wird ein Anteil von 80%⁹ angenommen (Lenschow et al., 2001).

Die Bestimmung der Häufigkeit von Fehlwerten ist notwendig, da die Daten statistisch bearbeitet werden. In den Tochterrichtlinien (EU, 2002; EU, 2000; EU, 1999) zur EU-Rahmenrichtlinie (EU, 1996) ist festgelegt, dass mindestens 90% der Daten einer kontinuierlichen Jahreszeitreihe (Ozon nur Sommerwerte, siehe EU, 2002) für die Ableitung der Luftgütekriterien vorhanden sein müssen. Um die Anzahl der verwendbaren Zeitreihen zu erhöhen, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Vollständigkeitskriterium von 85% angewendet. Dies ist insbesondere für die Nachtwerte von Bedeutung, da hier die Ausfallquote überproportional hoch ist. Eine Fehlwertersetzung wurde nicht durchgeführt. Für Ozon¹⁰, NO₂, TSP und SO₂ erfüllen mehr als 80% und für PM10 weniger als die Hälfte der Zeitreihen das 85% Kriterium.

Tabelle 1 und Abbildung 3 zeigen die Anzahl der vorliegenden Jahreszeitreihen aus Deutschland für die Jahre 1995-2003. Es ist ersichtlich, dass für Ozon und NO₂ nur ca. die Hälfte, für SO₂ weniger als ca. ein Drittel und für PM10/TSP nur ca. 10% der 300-400 Stationen im gesamten Zeitraum verfügbar sind (Abbildung 3). Weiterhin ist die Stationsanzahl für das Jahr 2003 bei allen Stoffen deutlich geringer als für die anderen Jahre. Die Anzahl der verfügbaren PM10/TSP–Messungen schwankt besonders stark im betrachteten Zeitraum.

Eine weitere Quelle der Datenunsicherheit liegt in der unterschiedlichen Messstrategie der einzelnen Bundesländer. Dazu gehört die Festlegung der unteren Messbereichsschranke¹¹ und das Verhältnis¹² der Stationsanzahl in ländlichen und belasteten Regimes.

	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003
O ₃	336	337	361	332	342	348	342	352	268
NO_2	409	379	423	410	418	423	420	414	295
SO_2	443	357	426	360	406	398	381	278	191
TSP	232	342	340	341	288	129	104	-	-
PM10	-	-	36	38	34	98	155	274	130

Tabelle 1: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist.

⁹ Trotz regionaler Unterschiede wird dieser Wert für Deutschland häufig verwendet. Für tropische Großstadt (Jakarta) wird z.B. von einem Umrechnungsfaktor von 50% ausgegangen (Ostro, 1994)

¹⁰ Die Datenqualitätsanforderung wirkt sich besonders auf die Ozonbeobachtungen aus, bei der nach diesem Kriterium nur 70% der Zeitreihen verwendet werden könnten

¹¹ Für SO₂ in Brandenburg ist der kleinste mögliche Wert 3 μ g/m³, während er in den benachbarten Bundesländern der häufig gemessene Minimalwert 1 μ g/m³ ist.

¹² In Bayern finden PM10-Messungen nur in belasteten Regimes statt.



Abbildung 3: Anzahl der Stationen mit vollständigen Jahresmessreihen (>85% der stündlichen Daten). Rot ist der Anteil der Stationen, die in allen Jahren von 1995-2002 Zeitreihen liefern.

2.4 Modellrechnungen

Chemie–Transport-Modelle berechnen die Immissionsfelder aufgrund der Simulation von Emission, Transport, chemischer Umwandlung und Deposition. Die berechnete Immission ergibt sich letztendlich aus den Eingabedaten von Emission und Meteorologie. Die Variabilität dieser Eingabedaten bestimmt demzufolge die Variabilität der simulierten Immission. Durch die bewusste Veränderung dieser Eingabedaten im Sinne eines meteorologischen oder emissionsseitigen Szenarios kann die Wirkung dieser Einflussfaktoren auf die Immission getrennt untersucht werden.

Die hier ausgewerteten Modellrechnungen wurden mit dem Chemie-Transport-Modell REM-CALGRID (RCG) (Stern 2003a) durchgeführt. RCG ist ein Ausbreitungsmodell für die planetare Grenzschicht bis zu einer Höhe von circa 3500 m. Das hier gewählte Modell-gebiet (80x81 Gitterpunkte) umfasst Mitteleuropa mit einer horizontalen Auflösung von 0.25°*0.5° (ca. 25*25 bis 30*30 km²). Das Modellgebiet erstreckt sich von 42°-62° nördlicher Breite und von 10° westlicher bis 30° östlicher Länge und umfasst damit ein Gebiet von Irland bis Polen und von Norditalien bis Südnorwegen. Die unterste Modellschicht hat eine

Höhe von 20 m. Die Berechnungen für diese Schicht werden als Äquivalent der bodengestützten Messung angesehen.

Die gewählte horizontale Auflösung entspricht der Auflösung der zur Verfügung stehenden europaweiten Emissionsdatenbasen (Stern, 2003b), die auf das Jahr 1995 bezogen sind. Die Änderung der Emission für die Jahre 1996-2000 wird durch länder- und verursacherspezifische Veränderungsfaktoren (Stern, 2003b, Builtjes et al., 2002, siehe Kapitel 4.1) ausgedrückt.

Zur Untersuchung der zwischenjährlichen Variabilität wurden Modellrechnungen mit dem Chemie-Transport Modell RCG für die Jahre 1995- 2003 durchgeführt. Sie wurden ergänzt um Szenariorechnungen, bei denen immer nur die Jahresemission von 1997 (Szenario "Meteorologie-Einfluss") verwendet wurde. Um den Einfluss des Emissionstrends abzuschätzen, wurden weiterhin mit den meteorologischen Daten des Jahres 1997 die angenommenen Jahresemissionen der Jahre 1995-2000 in den Rechnungen benutzt (Szenario "Emissionstrend - Einfluss"). Somit liegen für jede Station und jedes Jahr insgesamt 3 modellierte Zeitreihen aus den in der Tabelle 2 zusammengestellten Jahresrechungen vor:

- **RCGR:** normale Simulation (Meteorologie- und Emissionstrendeinfluss)
- RCGM : Simulation mit der Emission von 1997, "Meteorologieeinfluss"-Szenario
- **RCGE:** Simulation mit den meteorologischen Daten von 1997 unter Verwendung der Emissionstrends, "Emissionstrendeinfluss"-Szenario

Die lateralen und die oberen Randbedingungen wurden aus Hintergrundwerten und für Ozon aus klimatologischen Auswertungen von Ozonsonden nach Logan (1999) gewonnen. Dabei wurde der Jahresgang in Form von Monatsmittelwerten, nicht aber die zwischenjährliche Variabilität berücksichtigt. Der gesamte hemisphärische und globale Einfluss auf die Immissionsvariabilität in Europa ist somit nicht durch die Modellrechnung erfasst. Dies gilt sowohl für einzelne Episoden als auch für die längerfristigen Trends im Jahresmaßstab.

Als Basisjahr für die Szenarien wurde das Jahr 1997 ausgewählt, da es nach der Untersuchung von Enke (2002) das hinsichtlich der Temperatur typischste Jahr für den Zeitraum 1990-2000 ist. Die Unterschiede zwischen den einzelnen Jahren werden durch die Häufigkeit des Auftretens von Großwetterlagen definiert. Die Großwetterlagen, die die Wettersituation in ganz Mittel- und Westeuropa zusammenfassen, sind so konstruiert, dass sie eine optimale Unterscheidung von Temperaturregimes¹³ im Elbeeinzugsgebiet ermöglichen. Die Bestimmung des typischen Jahres erfolgte bei Enke (2002) ohne die Einbeziehung von Immissionsdaten.

¹³ Hinsichtlich des Feuchteregimes stellt das Jahr 1996 das repräsentativste für den Zeitraum 1990-2000 dar.

	METEOROLOGISCHE DATEN											
	Jahr	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003		
	1995	RCGR		RCGE								
u	1996		RCGR	RCGE								
	1997	RCGM	RCGM	RCG	RCGM	RCGM	RCGM	RCGM	RCGM	RCGM		
ssic	1998			RCGE	RCGR							
mi	1999			RCGE		RCGR						
Ш	2000			RCGE			RCGR					
	2001			RCGE				RCGR				
	2002			RCGE					RCGR			
	2003			RCGE						RCGR		

Tabelle 2: Durchgeführte RCG-Modellrechnungen mit verschiedenen Kombinationen von meteorologischen Daten und Emissions-Daten.

2.5 Meteorologische Daten

Die meteorologische Situation bestimmt die Ausbreitung, die chemische Umwandlung und teilweise auch die Emission von Spurenstoffen. Von großer Bedeutung sind dabei Größen, die die großräumigen Transporte und die Ausprägung der Turbulenz beschreiben. Eine genaue Untersuchung der Wirkung ist sehr komplex, so dass hier nur die großräumigen Felder von

- Temperatur (2m) und
- Bodenwindstärke (10m)

betrachtet werden. Der Vorteil dieser Größen ist, dass sie direkt und mit guter Genauigkeit sowie räumlicher Repräsentativität beobachtet werden. Sie können meist sehr gut als zusammenfassende Beschreibung des atmosphärischen Zustandes einschließlich der Bewölkung aufgefasst werden. Letztendlich sind es auch diese beiden Größen, die die Basis für die Berechnung der im Modell verwendeten turbulenten Grenzschichtparameter darstellen. Ein weiterer Vorteil ist, dass sie als quantitative stationsbezogene Maße gut mit denselben statistischen Maßen (stationsübergreifende Mittelwerte, Anomaliebildung etc.) wie die Immissionsdaten behandelt werden können (siehe Abbildung 1).

Die zwischenjährliche Variabilität von Temperatur und Windstärke wird aus den meteorologischen Eingabedaten für die Rechnungen des Chemie-Transportmodells RCG abgeleitet. Die meteorologischen Daten für RGG werden mit Hilfe des an der Freien Universität Berlin entwickelten diagnostischen Systems erstellt, das aus synoptischen Daten und Radiosondendaten mit Methoden der optimalen Interpolation konsistente meteorologische Felder in einer Gitterauflösung von 0,5° Länge und 0,25° Breite berechnet (Reimer und Scherer, 1992). Die zeitliche Auflösung beträgt 3 Stunden. Die für diese Untersuchung verwendeten meteorologischen Daten sind demzufolge nicht die originalen meteorologischen Messungen sondern die durch bilineare Interpolation am Stationsort aus den großräumigen Analysen gewonnenen Zeitreihen. Durch dieses Vorgehen ist sichergestellt, dass Probleme durch kleinräumige Schwankungen und mangelnde Datenverfügbarkeit in hohem Maße eliminiert werden.

2.6 Regimeklassifikation

Alle vorliegenden Immissionszeitreihen aus Beobachtung und Modellrechnung wurden nach Flemming (2003) in Immissionsregimes klassifiziert. Eine Aufstellung der Regimes und eine Zusammenfassung der Klassifikationskriterien sind in Tabelle 3 zu finden. Die Unterscheidung von Regimes ist für die hier bearbeitete Aufgabe aus mehreren Gründen von Bedeutung:

- 1. Die Skala des Modells kann Regimes mit hoher lokaler Belastung wie "Strasse" nicht erfassen, was beim Vergleich zu beachten ist.
- 2. Die jährlichen Trends können in verschiedenen Regimes unterschiedlich ausgeprägt sein, da Emissionstrends und meteorologischer Einfluss von verschiedenartiger Bedeutung sind.
- 3. Die Land- und suburbanen Stationen sind für eine größere Fläche repräsentativ.

Damit die Änderung der Stationsanzahl pro Regime keinen Einfluss gewinnt, wird die Klassifikation für jedes Jahr des gesamten Zeitraums durchgeführt. Ist eine Station in einem Jahr nicht mit einer vollständigen Jahreszeitreihe vertreten, so wird sie nicht berücksichtigt.

In Tabelle 4 bis Tabelle 7 sind in Ergänzung zu Tabelle 1 zusätzlich die Anzahl der verfügbaren Stationen pro Regime für jedes Jahr und für den gesamten Zeitraum zusammengestellt. In Abbildung 4 ist die Verteilung der Stationen in Deutschland, ihr Regime und ihre Verfügbarkeit im Zeitraum 1995-2003 dargestellt.

		Nama	Name und Abkürzung des Regimes								
Spezies	Kriterium:	Ivanic		urzung des i	xegnites						
Ozon	Log (P50ME)	Berg	Land	Vorstadt	Stadt	Belastete	Straße				
Ozoli	P50TA	В	R	U1	U2	Stadt U3	S				
NO.	P50ME	Land		Vorstadt	Stadt	Belastete	Straße S	Straße ex-			
NO ₂	I JOIVIL	R		U1	U2	Stadt U3	Straise 5	trem S2			
PM10	P50ME	#1		#2	#3	#4	#5				
SO ₂	Log (P50ME)	#1		#2	#3	#4	#5				

Tabelle 3: Immissionsregimes nach Flemming (2003), Klassifikationskriterien: P50ME = Median des Tagesmittelwertes, P50TA = Median der normierten Tagesschwankung, Log = Logarithmische Transformation.

NO2	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	ALL
R	41	32	47	65	63	72	87	92	73	24
U1	81	56	77	87	98	111	118	105	86	28
U2	85	80	94	74	90	89	82	78	63	40
U3	131	128	106	109	108	95	92	85	66	64
S	59	60	85	57	48	49	43	36	27	54
s2	12	28	20	23	14	10	11	15	12	7
Total	409	384	429	415	421	426	433	411	327	217

Tabelle 4: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von NO₂ aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind.

03	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	ALL
В	8	13	20	21	21	19	21	26	24	
R	52	37	46	57	64	59	56	63	56	22
U1	64	58	67	96	91	78	92	91	79	35
U2	77	87	97	87	104	93	93	95	81	56
U3	83	85	75	48	47	66	68	59	53	45
s	50	56	57	26	18	37	21	13	8	44
Total	334	336	362	335	345	352	351	347	301	202

Tabelle 5: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von Ozon aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist, für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind.

SO2	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	ALL
#1	9	4	13	24	39	56	135	115	90	2
#2	52	57	101	141	157	184	158	98	82	34
#3	106	95	156	117	158	133	81	34	29	49
#4	145	112	114	69	47	30	15	5	4	37
#5	129	87	39	12	7	1	1	2	2	14
Total	441	355	423	363	408	404	390	254	207	136

Tabelle 6: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von SO₂ aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist, für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind.

PM10/TSP	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	ALL
#1	60	55	69	92	66	61	47	60	32	8
#2	61	60	85	122	100	79	107	123	54	7
#3	45	70	99	94	89	53	81	91	38	4
#4	44	111	100	57	56	35	49	37	13	4
#5	24	55	26	14	11	4	6	6	1	-
Total	234	351	379	379	322	232	290	317	138	23

Tabelle 7: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von PM10 und TSP aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist, für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind.



Abbildung 4: Lage der Immissionsmessstationen mit vollständigen Messungen für das Jahr 1997. Farbige ausgemalte Kreise: Stationen, die im gesamten Zeitraum 1995-2002 Messwerte besitzen. Die Farbe zeigt das für 1997 bestimmte Immissionsregime an. Die Skalierung entspricht der Nummerierung der Regime in Tabelle 3.

2.7 Grenzwerte der EU-Richtlinien

Die Zielvorstellung zur Luftgüte wird mit Grenzwerten ausgedrückt, deren Einhaltung vom Gesetzgeber in gewissen Zeitrahmen gefordert wird. Die Grenzwerte für die betrachteten Stoffe sind in den EU-Richtlinien zur Luftqualität festgelegt und in Tabelle 8 zu finden.

Die Grenzwerte zum Gesundheitsschutz sind als Höchstwert für das Jahresmittel oder als eine zulässige Anzahl von Überschreitungen eines Schwellenwertes mit einem kleineren Mittelungsintervall (z.B. 1 h, 8 h oder 24 h) formuliert.

Der Vergleich der Anzahl von Grenzwertüberschreitungen zwischen Modell und Beobachtungen ist häufig problematisch, da bereits geringe Veränderungen des Konzentrationsniveaus zu starken Unterschieden in den Überschreitungshäufigkeiten führen können. Darüber hinaus werden die Grenzwerte der primären Stoffe meist an verkehrsnahen Stationen überschritten, deren Messreihen vom Modell aufgrund der hier verwendeten Auflösung von 25x25 km² nicht reproduziert werden können. Der zwischenjährliche Vergleich kann darüber hinaus sehr stark durch die Anzahl und Art der verfügbaren Stationen beeinflusst werden.

Für die hier durchgeführten Vergleiche werden pro Stoff die folgenden Ziel-, bzw. Grenzwerte betrachtet:

- Ozon: Überschreitung des Tagesmaximums des 8-Stundemittelwertes von 120 μg/m³ an mehr als 25 Tagen im Jahr und Überschreitung des Warnwertes von 180 μg/m³
- NO₂: Überschreitung des Jahresmittelwertes von 40 μ g/m³
- PM10: Überschreitung des Jahresmittelwertes von 40 μ g/m³ und des Tagesmittelwertes von 50 μ g/m³ an mehr als 35 Tagen
- SO₂: Überschreitung des Jahresmittelwertes von 20 μg/m³

Der Ozon-Zielwert bezieht sich auf das dreijährige Mittel. Aus Gründen der Vereinfachung wird der Zielwert im Rahmen dieses Berichtes immer nur auf ein Jahr bezogen.

KOMPONENTE	ART DES SCHWELLENWERT ES	MITTEL ÜBER	KONZENTRA- TIONSSCHWELL E	ZULÄSSIGE ANZAHL VON ÜBERSCHREITUNGEN	GRENZWERT EINZUHALTEN BIS
SO2	Grenzwert zum Ge- sundheitsschutz	1 h	350 µg/m³	24 x / Jahr (99.73- Perzentil)	1.1.2005
	Grenzwert zum Ge- sundheitsschutz	24 h	125 µg/m³	3 x / Jahr (99.18- Perzentil)	1.1.2005
	Grenzwert zum Öko- systemschutz	1 Jahr Winterhj.	20 µg/m³		sofort
PM 10	Grenzwert zum Ge- sundheitsschutz	24 h	50 µg/m³	35 x / Jahr (90.41- Perzentil)	1.1.2005
		1 Jahr	40 µg/m³		1.1.2005
	Richtgrenzwert zum Gesundheitsschutz	24 h	50 µg/m³	7 x / Jahr (98.08- Perzentil)	1.1.2010
		1 Jahr	20 µg/m³		1.1.2010
NO ₂	Grenzwert zum Ge- sundheitsschutz	1 h	200 µg/m³	200 μg/m³ 18 x / Jahr (99.79- Perzentil)	
		1 Jahr	40 µg/m³		1.1.2010
Ozon	Zielwert zum Ge- sundheitsschutz	8 h	120 µg/m³	an 25 Tagen im 3 Jahres- mittel (93.15- Perzentil)	1.1.2010
	Langfristziel zum Gesundheitsschutz	8 h	120 µg/m³		
	Zielwert zum Vegeta- tionsschutz	AOT40 Mai - Juni	18.000 µg/m³h		1.1.2010
	Langfristziel zum Vegetationsschutz	AOT40 Mai - Juni	6.000 µg/m³h		
	Informations- schwelle	1 h	180 µg/m³		
	Alarmschwelle	1 h	240 µg/m³		
	Referenzwert zum Schutz der Wälder	AOT40 AprSept.	20.000 µg/m³h		

Tabelle 8 Ziel- und Grenzwerte für Ozon, PM10, NO2 und SO2 nach den EU-Richtlinien

3 Zwischenjährliche Variabilität von Immission und Wetter

Dieses Kapitel widmet sich der zwischenjährlichen Variabilität der beobachteten Zeitreihen von Temperatur und Wind sowie der Immissionszeitreihen von Ozon, NO₂ SO₂ und PM10. Es wird die beobachtete Variabilität der Witterung, der Immission und deren Zusammenhang im Zeitraum 1995-2003 dargestellt. Ein besonderer Schwerpunkt wird auf das Problem der korrekten Erfassung der beobachteten Immissionstrends gelegt. Dies ist ein Problem, da die Anzahl der verwendbaren Stationen stark von Jahr zu Jahr schwankt (siehe Kap. 2.5). Weiterhin wird die Immissionsvariabilität auch separat für die Stationen der Kategorie "Land" und "Vorstadt" (siehe Tabelle 3) ermittelt, da diese Regimes am besten der Skala des Modells entsprechen.

3.1 Zwischenjährliche Variabilität der Witterung

Abbildung 5 und Abbildung 6 zeigen die Anomalien der 2m -Temperatur und des Windes für jeweils das gesamte Jahr und die einzelnen Jahreszeiten aus dem Zeitraum 1995 - 2003. Es wird deutlich, dass die Variabilität der einzelnen Jahreszeiten größer als die des gesamten Jahres ist. Dies bedeutet, dass sich Anomalien in den unterschiedlichen Jahreszeiten eines Jahres häufig gegenseitig aufheben. Dieser Umstand entspricht den Ergebnissen von Enke (2002), der vorschlägt, besser repräsentative Jahreszeiten als ein gesamtes meteorologisches Basisjahr zu definieren. Die Jahre mit der höchsten, niedrigsten und typischsten Temperatur und Windstärke für das gesamte Jahr und die einzelnen Jahreszeiten sind in Tabelle 9 zu finden. Die größte zwischenjährliche Schwankung zeigen Temperatur und Wind im Winter. Der mit Abstand kälteste (Anomalie – 3 K) und windschwächste Winter (- 0.7 m/s) war der des Jahres 1996. Die negative Temperatur und Wind-Anomalie war auch im Frühling dieses Jahres stark und im Rest des Jahres schwach ausgeprägt, so dass insgesamt das gesamte Jahr 1996 auch das kälteste und windschwächste war.

Der Sommer 2003 war mit deutlichem Abstand der wärmste Sommer im gesamten Zeitraum mit einer positiven Anomalie von 2.5 K. Das gesamte Jahr 2003 war jedoch nur etwas wärmer als der Durchschnitt. Die positive Anomalie lag mit + 1 K in derselben Größenordnung wie diejenige der warmen Jahre 1999 und 2000. Der sehr warme Sommer 2003 war mit einer negativen Wind-Anomalie verbunden.

Wichtig für die Bewertung des Einflusses von jährlicher Wind- und Temperaturanomalie ist deren gegenseitiger Zusammenhang. Der jährliche Zusammenhang und die berechnete Korrelation sind in Abbildung 7 und Abbildung 8 zu finden. Zwischen Temperatur und Wind besteht eine positive Korrelation (Rank-Koeffizient > 0.5) im Sommer (warme Sommer sind windschwache Sommer und umkehrt) und eine negative Korrelation im Winter (kalte Winter sind windschwach). Dieser Zusammenhang ist einsichtig, da im Winter windschwache Hochdruckgebiete mit kalten und im Sommer mit hohen Temperaturen verbunden sind, während windstarke Westwindwetterlagen im Sommer zu relativ kalten und im Winter zu relativ warmen Temperaturen führen. In den Übergangsjahreszeiten ist kein ausgeprägter Zusammenhang zu erkennen. Tabelle 9 fasst die Jahre mit den höchsten, niedrigsten und typischsten Temperaturen und Windstärken zusammen.



Abbildung 5: Zwischenjährliche Anomalie des Mittelwertes der 2m –Temperatur im Zeitraum 1995-2003 für das gesamte Jahr und die vier Jahreszeiten. Dargestellt ist der Median des Ensembles aller Mittelwerte an den Messstationen. Winter (WIN=Januar, Februar, Dezember). Frühling (SPR= März, April, Mai). Sommer (SUM= Juni, Juli, August). Herbst (AUT= September, Oktober und November). Jahr =YEAR.



Abbildung 6: Zwischenjährliche Anomalie des Mittelwertes des 10m–Bodenwindes im Zeitraum 1995-2003 für das gesamte Jahr und die vier Jahreszeiten. Dargestellt ist der jährliche Median des Ensembles aller Mittelwerte an den Messstationen. Winter (WIN=Januar, Februar, Dezember). Frühling (SPR= März, April, Mai). Sommer (SUM= Juni, Juli, August). Herbst (AUT= September, Oktober und November). Jahr =YEAR.



Abbildung 7: Streudiagramm der Anomalie des Windes (y-Achse in 0.1 m/s) und der Temperatur (x-Achse in K). Winter (WIN=Januar, Februar, Dezember). Frühling (SPR= März, April, Mai). Sommer (SUM= Juni, Juli, August). Herbst (AUT= September, Oktober und November). Jahr =YEAR.

Anomaly OBSBWIND vs. OBSBTEMP ZRM YEAR

Rank Correlation OBSBTEMP OBSBWIND ZRM



Abbildung 8: Wind- und Temperaturanomalie des gesamten Jahres (links) und deren Korrelation (Rank) für die Jahresszeiten und das gesamte Jahr. Winter (WIN=Januar, Februar, Dezember). Frühling (SPR= März, April, Mai). Sommer (SUM= Juni, Juli, August). Herbst (AUT= September, Oktober und November). Jahr =YEAR.

	Temperatur					Windstärke				
Stat	Year	SUM	WIN	SPR	AUT	Year	SUM	WIN	SPR	AUT
MIN	1996	1996	1996	1996	2002	1996	1997	1996	1996	1995
BASIS	1998	2001	1997	2002	2003	2001	2002	1998	1997	2000
MAX	2000	2003	2000	2000	2000	1998	1998	1995	1995	1998

Tabelle 9: Jahre mit der höchsten (MAX), niedrigsten (MIN) und typischsten (BASIS) Temperatur und Windstärke für das gesamte Jahr und die einzelnen Jahreszeiten. Winter (WIN=Januar, Februar, Dezember). Frühling (SPR= März, April, Mai). Sommer (SUM= Juni, Juli, August). Herbst (AUT= September, Oktober und November). Jahr =YEAR.

3.2 Zwischenjährliche Variabilität der Immission

Für den Überblick über die mittlere Immission und die Maximalwerte sind in Abbildung 9 und Abbildung 10 die stationsübergreifenden Mittelwerte der Stationsmittelwerte und des 98-Perzentils dargestellt. Abbildung 11 zeigt die Anzahl der Stationen mit Überschreitungen von ausgewählten EU-Grenzwerten (siehe Kap. 2.7).

Tabelle 10 fasst die Jahre mit den höchsten, niedrigsten und typischsten Immissionsgrößen und deren zwischenjährliche Bandbreite zusammen.

Aus Abbildung 10 und Abbildung 9 wird zunächst deutlich, dass nur bei SO_2 und etwas schwächer bei PM10 zwischenjährliche Unterschiede im Bereich von 30 - 50 % für Mittelund Maximalwerte auftreten. Bei den anderen Stoffen sind die zwischenjährlichen Unterschiede wesentlich geringer ausgeprägt.

 SO_2 zeigt ab 1996 eine deutlich ausgeprägte Abnahme der mittleren und maximalen Konzentration. Bei NO_2 und PM10 sind eine Abnahme im Bereich 1996-2000 und dann ein erneuter leichter Anstieg zu erkennen. Die Mittelwerte von Ozon steigen im Gesamtzeitraum leicht an.

Die stärkste Variabilität ist bei NO₂, SO₂ und PM10 im Winter zu finden. Der kontinuierliche Anstieg der Mittelwerte von Ozon ist am ausgeprägtesten im Herbst und nicht im Sommer.

Die Jahre 2003 und 1996 sind besonders auffällig: Hinsichtlich der Mittelwerte von Ozon ist der Sommer 2003 mit seinen hohen Werten eine Ausnahme, genauso wie der Winter 1996 mit den hohen Werten bei den SO₂, PM10 und NO₂-Konzentrationen.

Die Variabilität der Maximalwerte (98-Perzentil) entspricht im Wesentlichen dem der mittleren Verhältnisse. Bemerkenswert erscheinen die hohen NO_2 –Maxima im Winter 1997 und die Tatsache, dass der Sommer 2003 sich bezüglich der Maxima deutlich weniger von dem gleichfalls ozonreichen Sommer 1995 unterscheidet als bezüglich der Mittelwerte.

Abbildung 11 zeigt die Anzahl der Stationen mit Überschreitungen von ausgewählten EU-Grenzwerten (siehe 2.7). Bei Ozon weisen die Jahre 1995 und 2003 an mehr als 200 Stationen Überschreitungen des 8h-mittelwertbezogenen Zielwertes auf (Abbildung 11, oben links). Damit ist die Anzahl der Überschreitungen in diesen beiden Jahren mehr als doppelt so hoch als in den übrigen Jahren. Auch der Alarmwert von 180 μ g/m³ wird in diesen beiden Jahren am häufigsten erreicht (Abbildung 11, oben rechts).

Bei NO₂ treten 1997 mit ca. 140 die meisten Überschreitungen des Grenzwertes für das Jahresmittel auf (Abbildung 11, Mitte links). Seit 2000 wird dieser Grenzwert nur noch an ungefähr 60 Stationen überschritten. Das Jahr mit den meisten Überschreitungen der Jahresgrenzwerte von SO₂ und PM10 ist 1995 bzw. 1996 (Abbildung 11, Mitte rechts und unten rechts). Ab 1999 gibt es bei SO₂ keine Stationen mehr mit Überschreitungen des Jahresmittelwerts. Bei PM10 hat sich die Anzahl von Stationen mit Überschreitungen des Jahresmittelwerts von 77 im Jahre 1976 auf unter 10 seit 2000 verringert. Generell wird der PM10-Kurzfristgrenzwert (Überschreitung des Tagesmittelwertes von 50 µg/m³ an mehr als 35 Tagen) an deutlich mehr Stationen verletzt als der Jahresmittelwert (Abbildung 11, unten links und unten rechts).



ZRM all

Abbildung 9: Stationsübergreifender Mittelwert des Jahresmittelwertes der beobachteten Immission von NO₂ (in ppb), O₃ (in ppb), PM10 (in $\mu g/m^3$) und SO₂ (in $\mu g/m^3$) für die Jahreszeiten (1_WIN, 2_SPR, 3_SUM, 4_AUT) und das gesamte Jahr (YEAR) für die Jahre 1995-2003, abgeleitet aus allen vollständigen Messreihen in Deutschland.



Abbildung 10: Stationsübergreifender Mittelwert des 98-Perzentils der beobachteten Tagesmaxima von NO₂ (in ppb), O₃ (in ppb), PM10 (in μ g/m³) und SO₂ (in μ g/m³) für die Jahreszeiten (1_WIN, 2_SPR, 3_SUM, 4_AUT) und das gesamte Jahr (YEAR) für die Jahre 1995-2003, abgeleitet aus allen vollständigen Messreihen in Deutschland.















2001

1999 2000 JAHR

2002 2003

0

1996 1997 1998

1995







Abbildung 11: Anzahl der Stationen mit Ziel-, bzw. Grenzwertüberschreitungen für O₃, SO₂, PM10 und NO₂.

Spezies	Größe	Min - Jahr	Max-Jahr	Delta
O3	Jahresmittel	1996	2003	7 ppb
O3	98-Perzentil	2002	2003	18 ppb
O3	ZW: 8h>120/25	2002 (85 St)	2003 (240 St)	155 St
O3	WW: 1h>180/1	1999 (111 St)	1995 (284 St)	173 St
NO2	Jahresmittel	2001	1996	5 ppb
NO2	98-Perzentil	2001	1997	15 ppb
NO2	GW:	2001 (60 St)	1997 (130 St)	70 St
	$JM>40\mu g/m^3$			
PM10	Jahresmittel	2000	1996	$9 \mu g/m^3$
PM10	98-Perzentil	2003	1996	$50 \mu g/m^3$
PM10	GW:	2000 (5 St)	1996 (78 St)	73 St
	$JM>40\mu g/m^3$			
PM10	GW: 24h>50/35	2000 (43 St)	1996 (219 St)	277 St
SO2	Jahresmittel	2002	1996	$12 \mu g/m^3$
SO2	98-Perzentil	2001	1997	$50 \mu g/m^3$
SO2	GW:	2000-3 (0 St)	1995 (75 St)	75 St
	$JM>20\mu g/m^3$			

Tabelle 10: Jahre mit der höchsten und niedrigsten gemessenen Immission hinsichtlich des Jahresmittelwertes, des 98-Perzentiles und der Überschreitung von Grenzwerten (GZ), Zielwerten (ZW), bzw. Warnwerten (WW) (siehe Kapitel 2.7) im Zeitraum 1995-2003. Delta: Unterschied zwischen dem höchsten und dem niedrigsten Wert. Die Angaben bei den Grenzwerten sind die Anzahl der Stationen (St), an denen der Grenzwert nicht eingehalten wurde.

3.3 Einfluss der Stationsauswahl auf die ermittelte Variabilität

Die im vorangehenden Kapitel 3.2 diskutierte zwischenjährliche Variabilität der Immission wurde aus der Gesamtheit aller vollständigen Jahreszeitreihen in Deutschland ermittelt. Da die Anzahl der verfügbaren Stationen sich jährlich ändert, können somit zwischenjährliche Immissionsänderungen ermittelt werden, die lediglich eine Folge der wechselnden Anzahl von verfügbaren Stationen sind. Zur Vermeidung dieses möglichen Artefakts wurde zusätzlich die zwischenjährliche Variabilität nur aus Stationen ermittelt, die im gesamten Zeitraum 1995-2003 verfügbar sind. Wie der Abbildung 3 zu entnehmen ist, ist der Anteil dieser Stationen jedoch kleiner als 50% und im Falle von PM10 noch deutlich geringer. Darüber hinaus ist die Verteilung der Stationen in Deutschland, die über alle betrachteten Jahre vollständig gemessen haben, nicht mehr gleichmäßig (siehe Abbildung 4).

Eine eindeutige Beantwortung der Frage, welches Vorgehen besser ist, kann nicht ohne weiteres gegeben werden. Für eine genaue Untersuchung von Trends scheint es angemessener, nur die Stationen zu verwenden, die im gesamten Zeitraum verfügbar sind, auch wenn die Aussagekräftigkeit bei PM10 wegen der wenigen Stationen dabei nur sehr lokal ist. In diesem Bericht steht jedoch die Bandbreite der Variabilität im Mittelpunkt, so dass hierfür alle verfügbaren Stationen verwendet werden. Das Datenkollektiv ist damit wesentlich größer und die variable jährliche Stationsanzahl wird durch die Mittelwertbildung kompensiert. Die ermittelten Trends bei den Überschreitungen hängen jedoch weiterhin von der jährlichen Gesamtanzahl der Stationen ab.

Im Folgenden werden die beiden Ansätze miteinander verglichen. Die Immissionsvariabilität wird demzufolge ermittelt aus:

- 1. allen verfügbaren Stationen mit entsprechender Vollständigkeit
- 2. nur Stationen, die in allen Jahren (bis auf 2003) vertreten sind.

Abbildung 12 bis Abbildung 15 zeigen die jährlichen Anomalien der Jahresmittelwerte und der 98-Perzentile nach beiden Ansätzen. Die Anzahl der jeweils verwendeten Stationen pro Immissionsregime ist Tabelle 4 bis Tabelle 7 zu entnehmen. Es ist festzustellen, dass quantitativ eine gute Übereinstimmung bei allen vier Stoffen besteht. Die Anomalien berechnet aus allen Stationswerten und nur aus den Werten derjenigen Stationen, die über alle Jahre vollständige Datenreihen liefern, weisen für Ozon, NO₂ und SO₂ durchweg dasselbe Vorzeichen auf. Bei den Jahresmittelwerten von Ozon und NO₂ liegen die größten Unterschiede bei 15-20%, d.h. bei weniger als $0.5 \,\mu g/m^3$. Bei SO₂ beträgt der maximale Unterschied aufgrund der stärkeren Anomalien ca. 2 $\mu g/m^3$. Deutliche Unterschiede ergeben sich beim Vergleich der Mittelwerte von PM10, was auf die sehr geringe Anzahl von Stationen, die im gesamten Zeitraum verfügbar sind, zurückzuführen ist.

Bei den Ozon und NO₂ -Perzentilen sind mit Ausnahme von 1996 die Unterschiede mit weniger als 10% deutlich geringer als bei den Mittelwerten. Die Unterschiede bei SO₂ und PM10 sind jedoch sehr hoch und übersteigen 50% der Anomalie. Dies kann als Hinweis gewertet werden, dass das Auftreten der hohen Konzentrationswerte dieser Stoffe sehr ungleich über Deutschland verteilt ist.



Abbildung 12: Anomalie des Jahresmittels der Immission bei Berücksichtigung aller Stationen (all) und nur der Stationen, die in allen Jahren vorhanden sind (95-03) für die Jahresmittelwerte (links) und die 98-Perzentile (rechts) von O₃.



Abbildung 13: Anomalie des Jahresmittels der Immission bei Berücksichtigung aller Stationen (all) und nur der Stationen, die in allen Jahren vorhanden sind (95-03) für die Jahresmittelwerte (links) und die 98-Perzentile (rechts) von NO₂.



Abbildung 14: Anomalie des Jahresmittels der Immission bei Berücksichtigung aller Stationen (all) und nur der Stationen, die in allen Jahren vorhanden sind (95-03) für die Jahresmittelwerte (links) und die 98-Perzentile (rechts) von PM10.



Abbildung 15: Anomalie des Jahresmittels der Immission bei Berücksichtigung aller Stationen (all) und nur der Stationen, die in allen Jahren vorhanden sind (95-03) für die Jahresmittelwerte (links) und die 98-Perzentile (rechts) von SO₂.

3.4 Wettervariabilität und Variabilität der beobachteten Immissionen

In diesem Kapitel wird der Zusammenhang zwischen den jährlichen Anomalien der Jahresmittelwerte der beobachteten Immission und denen der meteorologischen Größen Temperatur und Windstärke untersucht. Dazu wird die Rank-Korrelation der jahresbezogenen Anomalien in den einzelnen Jahreszeiten und im gesamten Jahr betrachtet. Die entsprechenden Korrelationskoeffizienten hinsichtlich der Temperatur sind in Abbildung 16 und die hinsichtlich der Windstärke in Abbildung 17 grafisch veranschaulicht. Ein Korrelationskoeffizient größer als 0.5 wird als ein im Folgenden deutlicher, mit 20 % Irrtumswahrscheinlichkeit signifikanter statistischer Zusammenhang betrachtet. Um einen Eindruck über die absolute Größe der Anomalien zu bekommen, wird zusätzlich das Streudiagramm zwischen der Wind- und der PM10–Anomalie (Abbildung 19) und der Temperatur- und der O₃–Anomalie (Abbildung 18) gezeigt.

Bei den Schadstoffen PM10 und NO₂ sind die Korrelationen mit dem Wind im gesamten Jahr negativ (Abbildung 17 rechts oben und links unten), d. h. höhere Windgeschwindigkeiten sind mit einer geringeren Immission verbunden. Hohe Windgeschwindigkeiten bewirken eine höhere Turbulenz und größeren Transport, was beides immissonsvermindernde Auswirkungen hat. Eine höhere PM10-Immission aufgrund erhöhter Emission durch Windaufwirbelung ist anhand der Anomaliewerte nicht zu erkennen. Weiterhin sind kalte Winter und Frühjahre (nur NO₂) mit höheren NO₂- und PM10-Immissionen verbunden (Abbildung 16). Hierfür können die verringerte Turbulenz und die in kalten Wintern und Frühjahren häufiger auftretenden Sperrschichten (Inversionen) die Ursache sein.

Bei Ozon führen über dem Durchschnitt liegende Temperaturen nur im Sommer und Frühjahr zu höheren Immissionswerten (Abbildung 16). Bei der SO₂-Immission sind aufgrund der starken, offensichtlich emissionsbedingten Trends nur schwache Signale des Wettereinflusses erkennbar. Wichtig für die Bewertung des Einflusses von Wind und Temperatur ist deren gegenseitiger Zusammenhang. Warme Sommer sind windschwache Sommer (negative Korrelation) und warme Winter sind windstark (positive Korrelation) (siehe Abbildung 7 und Abbildung 8). So treten hohe positive NO₂- und PM10-Anomalien in kalten und windarmen Wintern auf und eine Trennung von Wind und Temperatureinfluss ist nicht eindeutig.

Im Folgenden werden nochmals die "deutlichen" (R>0.5) statistischen Zusammenhänge zwischen den Anomalien der stationsübergreifenden Mittelwerte der Immission und der Temperatur bzw. der Windstärke zusammengefasst:

Windeinfluss auf Immission:

windstarker/schwacher Winter <-> niedrige/hohe NO₂ und PM10 Immission (negativ) windstarker/schwacher Frühling <-> niedrige/hohe NO₂ und PM10 Immission (negativ) windstarker/schwacher Sommer <-> niedrige/hohe NO₂ und PM10 Immission (negativ) windstarker/schwacher Herbst <-> niedrige/hohe NO₂ und PM10 Immission (negativ) kein Zusammenhang zwischen Ozon- und Windanomalien

Temperatureinfluss auf Immission:

warmer/kalter Sommer <-> hohe/niedrige O3 Immission (positiv)

warmer/kalter Frühling <-> hohe/niedrige O3 Immission (positiv)

warmer/kalter Winter <-> niedrige/hohe NO2 und PM10 Immission (negativ)

warmer/kalter Frühling <-> hohe/niedrige NO₂ Immission (negativ)

Meteorologie:

windstarke/windschwache Winter <->	warme/kalte Temperatur (positiv)
windstarke/windschwache Sommer <->	kalte/warme Temperatur (negativ)
Rank Korrelation OBSO3 OBSBTEMP ZRM



Rank Korrelation OBSPM10 OBSBTEMP ZRM





Rank Correlation OBSBTEMP OBSSO2 ZRM



Abbildung 16: Korrelation (Rank) zwischen den Anomalien der mittleren Temperatur und denen der mittleren Immission von Ozon (oben links), NO_2 (oben rechts), PM10 (unten links) und SO_2 (unten rechts) für die Jahreszeiten und das gesamte Jahr.

Rank Korrelation OBSNO2 OBSBTEMP ZRM



Rank Korrelation OBSO3 OBSBWIND ZRM Rank Korrelation OBSNO2 OBSBWIND ZRM

Rank Korrelation OBSPM10 OBSBWIND ZRM Rank Correlation OBSBWIND OBSSO2 ZRM



Abbildung 17: Korrelation (Rank) zwischen den Anomalien der mittleren Windstärke und denen der mittleren Immission von Ozon (oben links), NO₂ (oben rechts), PM10 (unten links) und SO₂ (unten rechts) für die Jahreszeiten und das gesamte Jahr.



Abbildung 18: Streudiagramm der Anomalie der Temperatur (y-Achse in K) und der Ozonimmission (x-Achse in ppb).



Abbildung 19: Streudiagramm der Anomalie des Windes (y-Achse in 0.1m/s) und der PM10-Immission (x-Achse in $\mu g/m^3$).

4 Modellierung der zwischenjährlichen Immissionsvariabilität

In diesem Kapitel wird die Modellierung der zwischenjährlichen Variabilität diskutiert. Dazu wird zunächst die Emissionsvariabilität vorgestellt, die aus der von der TNO für Europa erstellten Emissionsdatenbasis abgeleitet ist. Die Darstellung der räumlichen Struktur gibt einen Einblick über die modellierte Immissionsvariabilität im Zeitraum 1995-2003 im gesamten Modellgebiet. In einem weiteren Schritt wird die modellierte zwischenjährliche Variabilität mit der beobachteten verglichen. Dabei wird auf die stationsübergreifenden Mittelwerte und die Überschreitung von Grenzwerten eingegangen.

4.1 Zwischenjährliche Variabilität der Emission in RCG

Nach der im Kapitel 3.1 untersuchten Variabilität des "Wetters" wird nun der andere wichtige Faktor für die Immissionsvariabilität vorgestellt. Es handelt sich hierbei um die Emissionsdaten, die die Basis für die Modellrechnung sind. Im Gegensatz zu den meteorologischen Daten kann die Variation der Emission jedoch nicht aus Messungen gewonnen werden. Die zwischenjährliche Variabilität der Emission im Model RCG ergibt sich aus den von der Emissionsdatenbasis vorgegebenen anthropogenen Emissionstrends und aus dem Einfluss des Wetters auf die temperatur- und windabhängige Emissionsmodellierung.

Für den betrachteten Zeitraum wurden länder- und verursacherspezifische Veränderungsfaktoren des auf 1995 bezogenen Emissionskatasters für die Jahre 1996-2000 benutzt (Stern, 2003b, Builtjes et al., 2002). Für die folgenden Jahre 2001-2003 wurde keine Emissionsänderung aufgrund mangelnder Information angenommen. Die Veränderungsfaktoren betreffen die anthropogenen Emissionen von NOx, SOx und VOC im gesamten Modellgebiet. Da für die PM10-Emissionen kein eindeutiger Trend bekannt ist, bleiben diese Emissionen über alle Jahre auf dem durch die Basisemissionen vorgegebenen Niveau.

Die Temperatur hat Einfluss auf die Emission der biogenen Kohlenwasserstoffe, während der Wind die durch Aufwirblung entstandene PM10-Emission bestimmt. Weitere Zusammenhänge zwischen Emission und Wetter, wie z.B. der Einfluss der Temperatur auf die anthropogenen VOC-Emissionen und auf die SO₂- und NO_x–Emission aufgrund veränderten Heiz- und Kühlverhaltens, werden nur im klimatologischen Mittel (Jahresgang), nicht aber in ihrer vollständigen Variabilität berücksichtigt.

Abbildung 20 bis Abbildung 24 zeigen die Gesamtemissionen von VOC, NOx, PM10, der biogen emittierten Kohlenwasserstoffe Isopren, Terpen und OVOC (andere biogene Kohlenwasserstoffe) sowie von SOx in Deutschland für die einzelnen Jahre. Dargestellt sind die Emissionen der normalen Rechnungen (RCGR), die der "Wettereinfluss"-Szenariorechnungen mit variabler Meteorologie und der Jahresemission von 1997 (RCGM), sowie die der "Emissionstrend"-Szenariorechnungen (RCGE) mit der Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend. Die Szenariorechnungen dienen dazu, den Einfluss des Wetters und der angenommenen Emissionstrends voneinander zu unterscheiden. Für VOC, NOx und SOx dominieren die kontinuierlich fallenden anthropogenen Emissionen die zwischenjährliche Variabilität der Emission. Zwischen 1995 und 2000 sinkt entsprechend den Angaben der Emissionsdatenbasis der TNO (Stern, 2003b; Builtjes et al., 2002) in Deutschland die NO_x -Emission von 1800 auf 1485 kt/a, die VOC-Emission von 2770 auf 2170 kt/a und die SOx-Emission von 1926 auf 542 kt/a. Für die Emission von PM10 wurden wegen der großen Unsicherheit bei den Emissionsabschätzungen (Builtjes et al., 2002) keine Emissionstrends vorgegeben.

Die zwischenjährliche meteorologische Variabilität macht sich in den Emissionen von PM10 und den flüchtigen Kohlenwasserstoffen bemerkbar. Für PM10 ist die windbedingte Staubaufwirbelung die einzige Ursache für die zwischenjährlichen Unterschiede. Es muss in diesem Zusammenhang angemerkt werden, dass die Parametrisierung der Staubaufwirbelung im Modell mit großen Unsicherheiten behaftet ist und nur als Näherung betrachtet werden kann. Die deutsche PM10–Gesamtemission schwankt im gegebenen Zeitraum um ca. +/- 15 %. Der höchste Emissionswert betrug 441 kt/a im Jahr 1998 und der niedrigste 341 kt/a im Jahr 1996. Die gesamte VOC-Emission wird wieder in deutlich höherem Maße von den anthropogenen Trends gesteuert. Die Temperaturvariabilität bewirkt Schwankungen im Bereich von 1-2 %. Betrachtet man jedoch die biogene Emission von Terpen, Isopren und weiteren organischen VOCs, so sind Schwankungen im Bereich von 8 - 10 % feststellbar. Die geringsten Emissionen treten im Jahr 1996 auf.







Abbildung 21: Anthropogene (NOXA) und biogene (NOXB) NOx-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitte: Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend ("Emissionstrend"-Einfluss)



Abbildung 22: Anthropogene (PM10A) und aufgewirbelte (PM10D) PM10-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitte: Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend (Emissionstrend-Einfluss).



Abbildung 23: Isopren, Terpen und OVOC-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitte: Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend (Emissionstrend-Einfluss).



Abbildung 24: SO₂ und SO₄-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitte: Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend (Emissionstrend-Einfluss).

4.2 Die zwischenjährliche Variabilität in der Modellrechnung räumliche Struktur

Im Folgenden werden der Mittelwert der Rechnungen mit RCG im Zeitraum 1995-2003 und die Abweichung der einzelnen Jahresmittelwerte von diesem Gesamtmittel für die Stoffe Ozon, NO₂, PM10 und SO₂ gezeigt. Dazu werden die "normalen" Modellrechnungen RCGR (siehe Kapitel 2.4) verwendet, d.h. die Berechnungen mit den meteorologischen Daten jeden Jahres und den Emissionsdaten jeden Jahres (Abbildung 20 bis Abbildung 24 links).

Die höchsten Jahresmittelwerte von NO₂ werden in den europäischen Metropolen London, Paris und Mailand berechnet. Hohe Belastungen treten flächenmäßig in England, den Benelux-Ländern und im Ruhrgebiet auf (Abbildung 25). Die höchsten Mittelwerte von Ozon sind aufgrund der fehlenden nächtlichen Deposition über dem Meer zu finden (Abbildung 26). Die ozonärmsten Gebiete sind die Ballungsgebiete mit hoher NO₂-Belastung in England und im Ruhrgebiet. Die höchsten großflächigen Mittelwerte von PM10 berechnet das Modell über dem Meer, da die Emission von Seesalzaerosol eine bedeutende Quelle ist. Das Maximum der PM10-Konzentration ist in Paris zu finden; weitere Gebiete mit hoher Immission sind die Benelux-Länder, Nordrhein-Westfalen, Ost-Mitteleuropa und Norditalien (Abbildung 27). Die mit Abstand höchste SO₂–Immission im Modellgebiet tritt, offensichtlich als Folge einer einzigen Quelle, in Ungarn auf. Weitere Zentren mit hoher Immission sind London, Paris, Bilbao, Mailand, das Ruhrgebiet und Katowice in Polen (Abbildung 28).

Ausgeprägte positive NO₂-Anomalien sind 1995 in Deutschland und in England zu erkennen, ausgeprägte negative Anomalien treten im Jahr 2003 in Deutschland auf (Abbildung 29). Letztere können nicht auf den Emissionstrend zurückgeführt werden, da ab dem Jahr 2000 keine Verringerung der Emission mehr angenommen wird. Weiterhin auffällig sind die negativen Anomalien in Ungarn und Polen im Jahr 1995.

Die ozonarmen Jahre 1996 und 1998 (negative Anomalien) sind genauso wie das ozonreichste Jahr 2003 (positive Anomalien) ein Phänomen, das im gesamten Modellgebiet auftritt (Abbildung 30). Die negative NO_2 -Anomalie in Ungarn im Jahr 1995 korrespondiert mit einer positiven Ozonanomalie.

Die stärksten PM10-Anomalien sind über der Nordsee zu finden, wo 1995 die höchsten Werte und 2003 die niedrigsten 2003 auftraten (Abbildung 31). Diese zwischenjährlichen Unterschiede sind auf die variable Windstärke¹⁴ zurückzuführen, die die Seesalzaerosolemission steuert. Auffällig ist wiederum die negative PM10-Anomalie in Ungarn im Jahr 1995.

Deutlich erkennbar sind die positiven SO₂-Anomalien in Deutschland und England in den Jahren 1995 und 1996 (Abbildung 32). Die ausgeprägten negativen Anomalien in Polen und Ungarn im Jahre 1995 deuten darauf hin, dass es in diesen Ländern nach 1995 zu Erhöhungen der SO₂-Emission gekommen ist. Dies gilt insbesondere für die starke ungarische SO₂-Quelle (siehe Abbildung 28), deren Auswirkungen auf die Immissionsverteilung erst ab dem Jahr 1996 in Erscheinung treten.

¹⁴ Die korrekte Bestimmung des Windfeldes über dem Meer aus Beobachtungen ist schwierig, da man hierbei auf oft unzuverlässige Schiffs- und Bojenmeldungen angewiesen ist. Je nach dem, ob man diesen Meldungen vertraut, können deutliche Unterschiede im interpolierten Windfeld entstehen (E. Reimer, persönliche Mitteilung).



Abbildung 25: Mittelwert der berechneten NO₂-Immission für den Zeitraum 1995-2003 in ppb.



Abbildung 26: Mittelwert der berechneten O₃-Immission für den Zeitraum 1995-2003 in ppb.



Abbildung 27: Berechneter PM10-Mittelwert für den Zeitraum 1995-2003 in µg/m³.



Abbildung 28: Berechneter SO₂-Mittelwert für den Zeitraum 1995-2003 in µg/m³.

37



Abbildung 29: Anomalie der Jahresmittelwerte der NO₂–Immission in ppb.





Abbildung 30: Anomalie der Jahresmittelwerte der O₃–Immission in ppb.



Abbildung 31: Anomalie der Jahresmittelwerte der PM10–Immission in µg/m³.



Abbildung 32: Anomalie der Jahresmittelwerte der SO₂ – Immission in µg/m³.

4.3 Variabilität aus Modellrechnung und Beobachtung

Nachdem im vorangegangenen Kapitel die räumliche Struktur der modellierten zwischenjährlichen Variabilität vorgestellt wurde, wird sie hier mit der beobachteten Struktur verglichen. Dazu werden die Modellergebnisse bilinear auf die Stationsorte interpoliert und dann nach der in Abbildung 1 dargestellten Methodik, d.h. genauso wie die Messwerte, zusammengefasst. Es werden dabei wiederum die normalen RCG-Läufe (RCGR) verwendet, die sowohl die Wettervariabilität als auch die Emissionstrends berücksichtigen (siehe Kapitel 2.4.). Betrachtet werden die Jahresmittelwerte der Gesamtheit der Stationen, der Landstationen und die Überschreitung von Grenzwerten. Weitere Ergebnisse, wie z.B. die Bandbreite der Schwankungen, werden im Kapitel 5 behandelt, das sich der Auswertung der verschiedenen Szenarios zum Emissionstrend- und Wettereinfluss widmet.

4.3.1 Vergleich der Jahresmittelwerte

In Abbildung 33 bis Abbildung 40 werden die Anomalien des stationsübergreifenden Mittelwertes des Jahresmittelwertes für alle Stationen, und nur für die ländlichen und suburbanen Stationen dargestellt. Die Anomalien von Modellrechnung und Beobachtung stimmen qualitativ gut überein, da der Rank-Korrelationskoeffizient für den Jahresmittelwert von O₃, NO₂ und SO₂ größer als 0.7 und damit bei einer Irrtumswahrscheinlichkeit von 5% signifikant ist. Lediglich PM10 weist einen etwas niedrigeren, aber immer noch signifikanten Rank-Korrelationskoeffizienten auf (siehe dazu Kap. 5.2). Dies bedeutet, dass das Vorzeichen der beobachteten und der berechneten Anomalien in den meisten Fällen übereinstimmen, vor allem in Jahren oder Jahreszeiten mit größeren Anomalien. Betrachtet man jedoch nur Landstationen und Vorstadtstationen (zur Definition siehe Tabelle 3), so ist die Korrelation zwischen Modell und Messung etwas schlechter. Dies könnte mit den schwächeren "Signalen" der immissionsärmeren Stationen, d.h. der geringeren Abweichung vom langjährigen Mittel für die weniger belasteten Stationen, erklärt werden.

Bei Ozon (Abbildung 33 und Abbildung 34) und PM10 (Abbildung 37 und Abbildung 38) wird die beobachtete Schwankungsbreite der Gesamtheit aller Stationen in den meisten Jahren bzw. Jahreszeiten in der richtigen Größenordnung vom Modell wiedergegeben. Betrachtet man beim PM10 nur die Land- und Vorstadtstationen, so wechselt die beobachtete Anomalie im Vergleich zu der Anomalie gebildet aus allen Stationen im Gegensatz zur Rechnung in mehreren Jahren das Vorzeichen. Bei NO2 (Abbildung 35 und Abbildung 36) und SO₂ (Abbildung 39 und Abbildung 40) ist die modellierte Schwankungsbreite deutlich kleiner als die beobachtete. Dieser Umstand ist damit zu erklären, dass bei der stationsübergreifenden Mittelbildung auch die hochbelasteten und von der Modellskala nicht erfassten Stationen (Stadtstationen, Verkehrsstationen) einbezogen werden. Betrachtet man nur die Gruppe der Land- und Vorstadt-Stationen, so verbessert sich das Modellergebnis in den meisten Jahren für NO₂, da die beobachtete Anomalie des Stationsensemble ohne die hoch belasteten Stadtstationen geringer ist als die der Gesamtheit der Stationen und damit eher der Skala der Modellanomalien entspricht. Allerdings sind die Anomalien beim NO₂-Jahresmittelwert insgesamt relativ klein. Im Jahre 2003 fällt auf, dass die beobachtete NO2-Anomalie aus dem Mittel über alle Stationen negativ ist, während die Anomalie nur für die Land- und Vorstadtstationen leicht positiv ist.

Die hohe positive Ozon-Anomalie in den Jahreszeiten 2003 (alle Stationen) bzw. die des gesamten Jahres (alle Stationen und nur Land und Vorstadtstationen) wird vom Modell sehr gut nachvollzogen. Die positiven Anomalien von NO₂ und PM10 im Winter 1996 bzw. im gesamten Jahr werden vom Modell in ihrer Ausprägung deutlich unterschätzt. Offensichtlich ist das Modell weniger gut in der Lage, die extrem austauscharmen winterlichen Wettersituationen adäquat wiederzugeben. Gleichfalls unterschätzt werden die negativen Anomalien von NO₂ in den Jahren 2000-2002. Betrachtet man nur die Land- und Vorstadt-Stationen, so sind diese Anomalien in den Beobachtungen wesentlich schwächer ausgeprägt.

Insgesamt wird der Trend der Anomalien, d. h. hier der Wechsel zwischen positiven und negativen Abweichungen vom langjährigen Mittelwert vom Modell sehr gut reproduziert. Dies zeigt die Tabelle 11, in der die gemessenen und beobachteten Vorzeichen der Anomalie für alle Jahre zusammen gestellt sind. In der überwiegenden Anzahl von Jahren stimmen das Vorzeichen von Messung und Rechnung überein. Unterschiede im Vorzeichen ergeben sich meistens nur in Jahren, in denen die Abweichungen vom langjährigen Mittel gering sind.

Abbildung 41 zeigt die über alle Stationen gemittelten Jahresmittelwerte aus Messung und Rechnung. Der aus den Messungen ermittelte Ozon-Jahresmittelwert wird generell überschätzt. Allerdings muss berücksichtigt werden, dass zur Mittelung alle Stationen verwendet wurden, d.h. auch die Stationen in Stadtgebieten mit hoher NOx-Emission, die von der Skala der Modellrechnung nicht aufgelöst werden können. Solche Stationen zeichnen sich im Allgemeinen durch niedrige Ozonjahresmittelwerte aus. Da in diesem Bericht vor allem die Bandbreite der Immissionsvariabilität betrachtet wird, wurden aber alle Stationen verwendet, um ein möglichst großen Datenkollektiv betrachten zu können. Der Trend der über alle Stationen gemittelten Ozon-Jahresmittelwerte wird vom Modell aber sehr gut reproduziert. Die Verwendung aller Stationen zur Mittelbildung macht sich beim NO₂ noch sehr viel deutlicher bemerkbar als beim Ozon, da die Konzentrationsunterschiede zwischen belasteten Stadtstationen und weniger belasteten Landstationen bei diesem Stoff größer sind als beim Ozon. Die Modellrechnungen zeigen einen generell nach unten gerichteten Trend. Die hohen beobachteten Mittel der Jahre 1996 und 1997 werden nicht reproduziert, was sich schon in der unterschätzten Anomalie für diese Jahre andeutet (Abbildung 35). Auch der leichte Anstieg in 2003 wird vom Modell nicht wiedergegeben. Mögliche Ursachen sind die schon erwähnte Unterschätzung des Modells bei extrem austauscharmen Wetterlagen in Verbindung mit der für Stadtgebiete zu groben Auflösung. Weiterhin darf nicht vergessen werden, dass die Emissionsdaten den Stand und die Struktur von 1995 beschreiben und dass die Fortschreibungsfaktoren nicht notwendigerweise die reale Emissionsentwicklung bis 2003 beschreiben müssen.

Die beobachteten PM10-Jahresmittel werden generell unterschätzt. Die Unterschätzung beobachteter PM10-Konzentrationen ist ein Phänomen, das bei allen Modellrechnungen auftritt. Die Ursache dafür liegt wohl hauptsächlich in der ungenügenden Erfassung von Partikelquellen wie z.B. der Staubaufwirbelung in Stadtgebieten und in Gebieten mit nicht befestigten Oberflächen oder der Emission biogener Partikel. Diese Quellen spielen vor allem in der warmen Jahreszeit eine Rolle, in der die Unterschätzung demzufolge auch am stärksten auftritt (Stern 2003a). Da die Unterschiede der PM10-Konzentrationen zwischen den Stadt- und Landgebieten sehr viel geringer ist als bei den NO₂-Konzentrationen, macht sich das Skalenproblem beim PM10 nicht so bemerkbar. Der Trend der beobachteten PM10-Mittelwerte wird vom Modell im Verlauf gut reproduziert, wenn auch die beobachteten Konzentrationsunterschiede zwischen den Jahren von der Rechnung unterschätzt werden. Betrachtet man nur die Land- und Vorstadtstationen, so ist die Übereinstimmung zwischen Messung und Beobachtung generell besser (Abbildung 42), da der Repräsentanzbereich dieser Stationen eher der Auflösung der Modellrechung entspricht.

Beim SO₂ werden vor allem die Mittelwerte in den Jahren 1995 bis 1997 stark unterschätzt. SO₂ wird hauptsächlich von großen Punktquellen emittiert, deren Simulation in einer großräumigen Modellanwendung immer zu Unterschätzungen führt, da die Abgasfahnen nicht angemessen aufgelöst werden können. Mit zunehmender Abnahme der Emissionen, d.h. Verminderung des Beitrages der Punktquellen zu den Gesamtemissionen, nähern sich die Mittelwerte aus Beobachtung und Rechnung an. Wegen der starken Unterschätzung in den Jahren 1995 bis 1998 ist der berechnete Trend deutlich schwächer als der beobachtete Trend.



Abbildung 33: Anomalie des Jahresmittelwertes von Ozon aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts).



Abbildung 34: Anomalie des Mittelwertes von Ozon für die vier Jahreszeiten. Alle Stationen. WIN=Winter, SPR=Frühjahr, SUM=Sommer, AUT= Herbst. Alle Stationen.



Abbildung 35: Anomalie des Jahresmittelwertes von NO₂ aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts).



Abbildung 36: Anomalie des Mittelwertes von NO₂ für die vier Jahreszeiten. Alle Stationen.

Anomaly PM10 ZRM YEAR

Anomaly PM10 ZRM YEAR rural/subur.



Abbildung 37: Anomalie des Jahresmittelwertes von PM10 aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts).





Anomaly SO2 ZRM YEAR

Anomaly SO2 ZRM YEAR rural/subur.



Abbildung 39: Anomalie des Jahresmittelwertes von SO₂ aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts).



Abbildung 40: Anomalie des Mittelwertes von SO₂ für die vier Jahreszeiten. Alle Stationen.

Jahresmittelwert	03	NO2	PM10	SO2
Vorzeichen der Anomalie (M/R)	M/R	M/R	M/R	M/R
1995	-/-	+/+	<mark>+</mark> /+	+/+
1996	-/-	+/+	+/+	+/+
1997	-/-	+/+	+/+	+/+
1998	+/-	+/-	- / -	-/+
1999	+/+	-/-	- / -	- / -
2000	- / +	- / -	- / -	- / -
2001	+/+	- / -	- / -	- / -
2002	+/+	- / -	- / -	-/-
2003	+/+	- / -	+/-	- / -

Tabelle 11: Vorzeichen der Anomalien der Jahresmittelwerte für Messung (M) und Rechnung (R). Rot gekennzeichnet sind Anomalien, die weniger als 1 ppb bei Ozon und NO₂, und weniger als 1 µg/m³ bei SO₂ und PM10 betragen. Jahre mit unterschiedlichen Vorzeichen der Anomalie bei Rechnung und Messung sind grau unterlegt. Alle Stationen.



Abbildung 41: Stationsübergreifender Mittelwert der Jahresmittelwerte von O₃, NO₂ PM10 und SO₂ aus der Modellrechnung RCGR und der Beobachtung OBS. Alle Stationen.



Abbildung 42: Stationsübergreifender Mittelwert der Jahresmittelwerte von O₃, NO₂ PM10 und SO₂ aus der Modellrechnung RCGR und der Beobachtung OBS. Nur Land- und Vorstadtstationen.

4.3.2 Vergleich anhand einer Auswertung bzgl. der EU-Ziel- bzw. Grenzwerte

Die ermittelte Anzahl der Überschreitungen der Kurzfristgrenzwerte bzw. Zielwerte (Ozon) hängt nicht nur vom Immissionsklima (extreme Wettersituationen) sondern auch von der Anzahl der verfügbaren Stationen ab. Die Mehrzahl der Stationen gehören zu den Stadt- und Verkehrsregimen (siehe Tabelle 4 bis Tabelle 7), die von der hier verwendeten großräumigen Modellanwendung in vielen Fällen nur unzureichend aufgelöst werden können, an denen aber vor allem für NO₂ und PM10 die meisten Überschreitungen beobachtet werden. Die hohen Ozonwerte treten dagegen eher an Stationen auf, deren Repräsentanzbereich in der Größenordnung der Modellauflösung liegt. Aufgrund dieses Skalenproblems beschreibt RCG auch die Überschreitungen bei Ozon in der richtigen Größenordnung (Abbildung 43). Für den am 8-Stundenmittel orientierten Zielwert (Überschreitung eines maximalen täglichen 8h-Mittelwerts von 120 µg/m³ an nicht mehr als 25 Tagen im Jahr) ist die zwischenjährliche Variabilität sehr gut wiedergegeben. Die ca. doppelt so vielen Stationen mit Überschreitungen im Jahr 1995 und 2003 im Vergleich zum übrigen Zeitraum werden vom Modell sehr gut erfasst. Die Anzahl der Stationen mit mindestens einer Überschreitung des Warnwerts von 180µg/m³ (Stundenmittel) wird jedoch vom Modell unterschätzt.

Eine qualitative Übereinstimmung des Trends der Überschreitungen ist bei SO₂, nicht aber bei NO₂ und PM10 zu erkennen. Beobachtete Überschreitungen treten in vielen städtischen Regionen auf, die vom Modell nicht aufgelöst werden können. Insbesondere beim NO₂ führt dies zu einer starken Unterschätzung der Anzahl der Stationen, an denen der NO₂-Jahresmittelwert überschritten wird. Die Grenzwerte von NO₂ und PM10 werden vom RCG-Modell in der großräumigen Auflösung in Deutschland meist nur im Ruhrgebiet überschritten. Die Datenverfügbarkeit der dortigen Stationen steuert also sehr stark die zwischenjährliche Variabilität der berechneten Überschreitungen. Dies ist besonders bei PM10/TSP problematisch, da hier die Anzahl stark schwankt und in den Jahren 1995 und 2003 deutlich weniger Stationen zur Verfügung stehen (siehe Abbildung 3).

Betrachtet man nur die Land- und Vorstadtstationen (Abbildung 44) treten in der Beobachtung und der Messung keine Überschreitungen der Grenzwerte für NO₂-, SO₂- und PM10-Jahresmittelwert auf. Bei dem Ozon-Zielwert unterschätzt das Modell jetzt die Anzahl der Stationen mit mehr als 25 Überschreitungen. Auch die Anzahl der Stationen mit Übertretungen des PM10-Kurzfrist-Grenzwertes wird unterschätzt. Allerdings liegt auch in der Beobachtung die Anzahl der Land- und Vorstadtstationen mit Übertretungen in allen Jahren unter 10.



Abbildung 43: Anzahl der Stationen mit Überschreitungen der Ziel- bzw. Grenzwerte für O₃, SO₂, PM10 und NO₂ in Beobachtung (OBS) und Modellrechnung (RCG). Alle Stationen.



PM10 35 * 24h > 50µg/m3 rural



Abbildung 44: Anzahl der Stationen mit Überschreitungen der Ziel- bzw. Grenzwerte für O₃, SO₂, PM10 und NO₂ in Beobachtung (OBS) und Modellrechnung (RCG). Nur Land- und Vorstadtstationen. Keine Überschreitungen des Grenzwertes für den NO₂-, PM10 und SO₂-Jahresmittelwert.

5 Immissionsvariabilität aufgrund von Emissionsund Wettervariabilität

5.1 Überblick

In diesem Kapitel werden die Szenarios zum "Emissionstrendeinfluss" und zum "Wettereinfluss" (siehe Kapitel 2.4) ausgewertet, um eine quantitative Ursachentrennung zu ermöglichen. Es wird die Korrelation zwischen den Anomalien der Beobachtung und denjenigen aus den Modellrechungen untersucht. Ziel ist die Quantifizierung der statistischen Erklärungsanteile der Modellszenarien an der Variabilität der Immission. Bei der Auswertung muss berücksichtigt werden, dass der anthropogene Emissionstrend nur bis zum Jahr 2001 quantifiziert wurde, die Wettervariabilität jedoch im gesamten Zeitraum bekannt ist. Die betrachteten Gruppen von Modellrechnungen sind:

- **RCGM :** Simulation mit der Emission von 1997 und den aktuellen Wetterbedingungen jeden Jahres, "Wettereinfluss"-Szenario
- **RCGE:** Simulation mit den meteorologischen Daten von 1997 unter Verwendung der Emissionstrends, "Emissionstrendeinfluss"-Szenario
- **RCGR:** Simulation mit den aktuellen Wetterbedingungen jeden Jahres unter Verwendung der Emissionstrends, "Normallauf"

Neben der Korrelation als relativem Maß werden die absolute Schwankungsbreite und die mittleren Verhältnissen diskutiert. Die Bandbreite ergibt sich aus der Differenz zwischen dem immissionsärmsten und dem immissionsstärksten Jahr. Das typischste bzw. repräsentativste Jahre (Basisjahr) stellt der Median des neunjährigen Ensembles dar.

5.2 Wirkung von "Emissionstrendeinfluss" und "Wettereinfluss"

In Abbildung 45 bis Abbildung 52 sind die über alle Stationen gemittelten Jahresmittel, Maxima (98-Perzentil des Tagesmaximums) und Grenzwertüberschreitungen für Ozon, NO₂, SO₂ und PM10 aus den normalen Modellrechnungen (RCGR), aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997) gegenübergestellt. Die Jahresdaten werden zum einen als Zeitreihe für die Jahr 1995-2003 dargestellt und als relative, auf das Jahr 1997 bezogene Größen in Streudiagrammen den relativen Emissionsänderungen (siehe Kapitel 4.1) gegenübergestellt.

Da das Jahr 1997 das Basisjahr in beiden Szenarien ist, stimmt die normale Modellrechnung (RCGR) für dieses Jahr mit den beiden Szenarienrechnungen (RCGM und RCGE) überein (Abbildung 45 bis Abbildung 52). Vor 1997 weist das Szenario RCGM (alle Jahre mit der Emission 1997) für SO₂ und NO₂ geringere und danach höhere Jahresmittelwerte als der

Vergleichslauf RCGR auf (Abbildung 47 und Abbildung 49), was auf die seit 1995 abnehmenden SO₂- und NOx-Emissionen im Lauf RCGR zurückzuführen ist (Abbildung 21, Abbildung 24). Auch beim PM10 ist dieser Effekt zu sehen (Abbildung 48), obwohl die anthropogenen PM10-Emissionen über die betrachteten Jahre konstant bleiben. PM10 besteht zu einem guten Teil aus sekundären Aerosolpartikeln, die sich erst während der Ausbreitung aus den Vorläufern SO₂, NH₃ und HNO₃ bilden. Der abwärts gerichtete Emissionstrend bewirkt auch eine Abnahme dieser Vorläufer und damit indirekt auch eine Abnahme der PM10-Konzentrationen. Beim Ozon ist es umgekehrt: Das Szenario RCGM hat vor 1997 höhere Ozonjahresmittel als der Normallauf RCGR und danach niedrigere Jahresmittel (Abbildung 45).

Beim SO₂ unterscheiden sich die Jahresmittelwerte des Normallaufes RCGR und des Emissiontrendszenarios RCGE nur geringfügig, was auf einen relativen geringen Einfluss der Wettervariabilität hinweist. Bei den anderen Stoffen ist dieser Zusammenhang nicht so eindeutig.

Die hohen Ozonmittelwerte im Jahr 2003 erweisen sich erwartungsgemäß als eine Wirkung der meteorologischen Verhältnisse (Abbildung 45). Verwendet man für alle Jahre das Wetter von 1997 in Verbindung mit den jahresspezifischen Emissionen (Emissionstrendszenario RCGE) treten die hohen Ozonmittelwerte 2003 nicht auf. Im Szenario RCGM (Emission 1997, jahresspezifisches Wetter) liegt der Ozonjahresmittelwert etwas unter demjenigen für den Normallauf RCGR, der Emission und Wetter variiert, d.h. die Emissionen von 1997 führen unter gleichen meteorologischen Bedingungen zu einem niedrigeren Jahresmittelwert als die Emissionen 2001¹⁵. Generell zeigt das Szenario RCGE dementsprechend eine leichte Tendenz zu ansteigenden Mittelwerten. Dies bedeutet, dass der Emissionstrend möglicherweise ein langsames Ansteigen der Ozonjahresmittel bewirkt, zumindest nehmen die Ozonjahresmittel jedenfalls nicht ab, was auch aus Beobachtungen ableitbar ist (UBA, Jahresbericht 1998; Enke, 1999). Bei den Ozonspitzenwerten ist es dagegen umgekehrt. Betrachtet man die Anzahl der Stationen, an denen der Kurzfristgrenzwert für Ozon (maximales 8h-Mittel von 120 µg/m³ darf an nicht mehr als 25 Tagen im Jahr überschritten werden) überschritten wird (Abbildung 46), so ist offensichtlich, dass das Szenario RCGE (Emissionstrend mit Meteorologie von 1997) zu einer kontinuierlichen Abnahme der Anzahl von Überschreitungen führt während die Überschreitungen im Szenario RCGM (jahresspezifische Meteorologie und Emission von 1997) eindeutig eine Funktion der von Jahr zu Jahr unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen sind. Der mindernde Effekt des Emissionstrends auf die Ozonspitzenwerte zeigt sich auch darin, dass die Anzahl der Überschreitungen im Wettereinflussszenario RCGM vor 1997 niedriger und nach 1997 höher ist als diejenige der normalen Modellrechnung RCGR (Abbildung 43 oben rechts), in der Wetter und Emission variiert werden.

Wie schon bei der Beobachtung (siehe Kapitel 3.2) treten in der Modellierung (RCGR) nur bei den SO₂-Mittelwerten größere Unterschiede zwischen den einzelnen Jahresmittelwerten auf (>30%). Da das Szenario RCGM (konstante Jahresemission 1997) keinen drastischen Einfluss der meteorologischen Bedingungen auf die SO₂-Konzentrationen zeigt, liegt die Ursache eindeutig in der starken SO₂-Emissionsabnahme. Während jedoch die Emission in Deutschland zwischen 1995 und 2001 sich auf ein Viertel verringert (siehe Kapitel 4.1), ergibt sich im Szenario RCGE (Emissionstrendeinfluss) in demselben Zeitraum nur eine Im-

¹⁵ Die Emissionen 2003 stimmen mit den Emissionen 2001 überein, da für 2002 und 2003 keine Fortschreibungsfaktoren zur Verfügung standen.

missionsverringerung auf ungefähr die Hälfte der Werte von 1995. Die unterproportionale Abnahme der mittleren Immission kann der Abbildung 52 entnommen werden, die den Zusammenhang zwischen der relativen Änderung (Bezug 1997) der SO₂-Emission in Deutschland und dem stationsübergreifenden Mittelwert des Jahresmittelwertes von SO₂ (oben) bzw. dem stationsübergreifenden Mittelwert der 98-Perzentile der Tagesmaxima von SO₂ (unten) für die Modellszenarien RCGE, RCGM und RCGR zeigt. Wie schon bei den Jahresmittelwerten angesprochen wurde, sind die Zusammenhänge zwischen Emissions- und Immissionsänderung für den Normallauf RCGR und den Emissionstrendlauf RCGE nahezu identisch, was auf den dominierenden Einfluss des Emissionstrends hinweist.

Beim NO₂ liegt die berechnete relative Immissionsänderung von 1995 bis 2003 mit insgesamt ca. 20% Abnahme bei den Jahresmittelwerten und Maxima in derselben Größenordnung wie die Emissionsänderung. Den Unterschieden in den relativen Zusammenhängen zwischen Emissions- und Immissionsänderung der Läufe RCGR und RCGE (Abbildung 50) kann aber entnommen werden, dass die Störungen durch den Wettereinfluss größer sind als beim SO₂. Die Ursache der Unterschiede in den relativen Beziehungen zwischen Emissionsund Immissionsänderung könnten in der unterschiedlichen Quellverteilung der NOx- und SO₂-Emissionen zu suchen sein. Die SO₂-Emissionen werden zum Großteil über relativ wenige Einzelquellen mit hohen Schornsteinen in die Atmosphäre gebracht. NOx-Emissionen sind wegen des hohen Beitrags des Straßenverkehrs eher gleichmäßig verteilte Bodenquellen. Da die SO₂-Emissionsabnahmen der letzten Jahre zum Großteil über die Abgasreinigung oder das Abschalten einer relativ geringen Anzahl großer Punktquellen erreicht wurde, muss sich die dadurch erreichte Immissionsverminderung nicht entsprechend stark in der hier vorgenommenen deutschlandweiten Mittelung ausdrücken. Auf der anderen Seite führt die zum großen Teil bodennahe Emission der Stickoxide zu einem stärkeren Einfluss der Wetterbedingungen. Insbesondere extreme vertikale Schichtungsverhältnisse, wie sie z.B. bei austauscharmen Wetterlagen auftreten, haben auf die bodennahen Immissionen einen größeren Einfluss als auf Immissionen in der Höhe.

Für PM10 gibt es keinen Zusammenhang zwischen der relativen PM10-Emissionsänderung und der Immissionsänderung, d.h. die Änderungen in den PM10-Immissionen sind eine Folge des Wettereinflusses und der Änderung der Vorläuferemissionen der sekundären Aerosole (Abbildung 51). Es muss natürlich betont werden, dass dieses Ergebnis nicht allgemeingültig ist, sondern damit zusammenhängt, dass die relativen PM10-Emissionsänderungen vollständig auf die windabhängige Staubaufwirbelung zurückzuführen sind.

Abbildung 53 bis Abbildung 56 zeigen die zeitlichen Rank-Korrelationskoeffizienten (gebildet aus dem Ensemble der 9 Jahre) zwischen den Anomalien der Beobachtung und den drei Gruppen von Modellrechnungen für die Mittelwerte über die einzelnen Jahreszeiten und über das ganze Jahr und entsprechendes für die Maximalwerte (98-Perzentil). Diese Werte geben darüber Auskunft, inwieweit der Emissionstrend (RCGE), die meteorologische Variabilität (RCGM) oder deren Kombination (RCGR) die Variabilität der Beobachtung wiedergeben können. Es handelt sich dabei um die gesuchte Beziehung zwischen Immissionsvariabilität und der Variabilität von Wetter und Emission. Mit den Modellrechnungen wird hierbei die Wirkung dieser Einflussfaktoren auf die Immission einzeln simuliert und nicht mit statistischen Methoden aus der Immission herausgefiltert. Nachteilig für die Gültigkeit dieser Untersuchungen ist der geringe Umfang des Ensembles von nur 9 Jahren, da somit die Wahrscheinlichkeit von "zufälligen" Korrelationen bzw. das Signifikanzniveau verhältnismäßig hoch ist (siehe Kapitel 2 und Abbildung 2). Weiterhin wird mit der Rank-Korrelation nur relativ die Übereinstimmung der Reihenfolge der einzelnen Jahre hinsichtlich der Immission bewertet. Die Bewertung der absoluten Unterschiede ist Bestandteil des nächsten Kapitels 5.3.

Die Korrelationen zwischen Beobachtung und Modellrechnung sind durchweg positiv. Dies bedeutet zum einen, dass der Normallauf RCGR die Variabilität insgesamt richtig wiedergibt (siehe Kapitel 4.3) und zum anderen, dass der modellierte Wettereinfluss und der Emissionstrendeinfluss zur Erklärung der beobachteten Variabilität beiträgt. Das Verhältnis der Korrelation des Szenarios "Wettereinfluss" bzw. "Emissionseinfluss" zu der Korrelation des Normallaufes, bei dem beide Einflussfaktoren wirken, kann als Maß für die jeweilige Bedeutung einer der beiden Einflussgrößen benutzt werden.

Die Variabilität der Maxima und Mittelwerte der Ozonbeobachtung ist signifikant mit derjenigen der Modellierung korreliert (Abbildung 53). Bei den Jahresmittelwerten von Ozon ist der Wettereinfluss etwas bedeutsamer als der der Emission (siehe Abbildung 53). Wie schon bei den Jahresmittelwerten diskutiert wurde (Abbildung 45), liefert das wetterbereinigte Emissionstrendszenario RCGE ein geringes, aber kontinuierliches Ansteigen der Ozonmittelwerte, wie dies auch in trendbereinigten Beobachtungen gefunden wird (Enke, 1999). Dieser Anstieg wird im Szenario "Emissionstrendeinfluss" simuliert, ohne dass der globale Einfluss¹⁶ berücksichtigt wurde. Der Emissionstrend scheint allerdings keine Bedeutung für die Mittelwerte im Sommer zu haben. Dies kann ein Hinweis sein, dass die Ursache der leichten Zunahme der Ozonmittelwerte in der durch die Abnahme der NOx-Emissionen bewirkten Verminderung der Auswirkungen des Titrationseffektes¹⁷ in Perioden geringer photochemischer Aktivität liegt. Hinsichtlich der Maximalwerte (98-Perzentil) ist der Emissionstrendeinfluss gering und erreicht im Allgemeinen keine signifikanten Korrelationen. Die Korrelation mit der beobachteten Variabilität wird fast vollständig durch den Wettereinfluss bestimmt.

Bei den Mittel- und Maximalwerten von NO₂ ist der Emissionstrendeinfluss von großer Bedeutung für die Erklärung der beobachteten Variabilität (Abbildung 54). Teilweise ist die Korrelation des Szenarios "Emissionstrend" besser als die der normalen Modellrechnung. Abgesehen von dem Umstand, dass durch die Rank Korrelation nicht die absoluten Beträge sondern nur die Reihenfolge berücksichtigt wird, könnte dies auf Probleme des Modells bei der Erfassung der Auswirkungen bestimmter meteorologischer Einflüsse auf die NO₂-Konzentration sprechen. Insbesondere bei den Maximalwerten sind die Korrelationen der Anomalien für das Szenario "Wettereinfluss" deutlich niedriger als die des Szenarios "Emissionseinfluss". Im Sommer und im Herbst liefert der Wettereinfluss nur einen geringen Beitrag zur Korrelation. Dies kann ein Artefakt sein, der auf die meteorologische Datenbasis zurückzuführen ist. Aus den großräumigen RCG-Evaluierungen (Stern, 2003a) ist bekannt, dass die aus der meteorologischen Datenbasis abgeleiteten sommerlichen Stabilitätsbedingungen im Mittel etwas zu labil sind, was zur Unterschätzung der sommerlichen Immissionen von NO₂ beiträgt.

Beim PM10 ist der Einfluss der Wettervariabilität größer als der der Emission (Abbildung 55). Dabei muss berücksichtigt werden, dass für die anthropogene Emission der PM10- und PM2.5-Emission keine Trends angenommen wurden (siehe Kapitel 4.1) und der Emissionstrendeinfluss nur über den der Vorläufer der sekundären Aerosole wirken kann. Die Schwankung der PM10–Jahresemission (siehe Abbildung 22) ist allein wetterbedingt und

¹⁶ Die Randbedingungen sind bei allen Modellrechnungen und in allen Jahren die gleichen

¹⁷ Als Titrationseffekt bezeichnet man den schnellen Abbau von Ozon durch frisch emittiertes NO. Dieser Abbau erfolgt auch in den photochemisch weniger aktiven Jahreszeiten

wird somit durch das Szenario RCGM "Wettereinfluss" wiedergegeben. Für die Maximalwerte sind jedoch der Emissionstrendeinfluss und damit der Einfluss der sekundären Aerosolbildung aus den anthropogenen Vorläufern NO_x und SO_2 von Bedeutung.

Wie schon ausgeführt, ist beim SO₂ für Mittel- und Maximalwerte der Emissionstrend der dominierende Einflussfaktor (Abbildung 56). Mit hoher Korrelation beschreiben die normale Modellrechnung (RCGR) und das Emissionstrendszenario RCGE die beobachtete Variabilität.

O3 ZRM YEAR



Abbildung 45: Verlauf der über alle Stationen gemittelten Ozonjahresmittelwerte von 1995 bis 2003 aus der Modellrechnung RCGR, aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997).

O3 25 8h > 120 µg/m3 all



Abbildung 46: Anzahl der Stationen mit Überschreitung des 8h mittelwertbezogenen Zielwertes von Ozon (siehe Kapitel 2.7) für das Szenario RCGE (Emissionstrend mit Meteorologie von 1997) und das Szenario RCGM (jahresspezifische Meteorologie und Emission von 1997).



Abbildung 47: Verlauf der über alle Stationen gemittelten NO₂-Jahresmittelwerte von 1995 bis 2003 aus der Modellrechnung RCGR, aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997)





Abbildung 48:Verlauf der über alle Stationen gemittelten PM10-Jahresmittelwerte von 1995 bis 2003 aus der Modellrechnung RCGR, aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997).



Abbildung 49: Verlauf der über alle Stationen gemittelten SO₂-Jahresmittelwerte von 1995 bis 2003 aus der Modellrechnung RCGR (Normal) aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997



Abbildung 50: Zusammenhang zwischen der relativen Änderung (Bezug 1997) der NO_x -Emission in Deutschland und dem stationsübergreifenden Mittelwert des Jahresmittelwertes von NO_2 (oben) bzw. dem stationsübergreifenden Mittelwert der 98-Perzentile von NO_2 (unten) für die Modellszenarien RCGE, RCGM und RCGR.



REL DELTA 1997 PM10 P98MA vs PM10 EMI SOURCE



Abbildung 51: Zusammenhang zwischen der relativen Änderung (Bezug 1997) der PM10-Emission in Deutschland und dem stationsübergreifenden Mittelwert des Jahresmittelwertes von PM10 (oben) bzw. dem stationsübergreifenden Mittelwert der 98-Perzentile der Tagesmaxima von PM10 (unten) für die Modellszenarien RCGE, RCGM und RCGR.



Abbildung 52: Zusammenhang zwischen der relativen Änderung (Bezug 1997) der NO_x -Emission in Deutschland und dem stationsübergreifenden Mittelwert des Jahresmittelwertes von NO_2 (oben) bzw. dem stationsübergreifenden Mittelwert der 98-Perzentile von NO_2 (unten) für die Modellszenarien RCGE, RCGM und RCGR.



Abbildung 53: Korrelation (Rank) zwischen der beobachteten und berechneten (RCGR, RCGM und RCGE) Anomalie des stationsübergreifenden Mittelwertes pro Saison und Jahr. Jahresmittelwerte (links), 98-Perzentile (rechts) für Ozon.



Abbildung 54: Korrelation (Rank) zwischen der beobachteten und berechneten (RCGR, RCGM und RCGE) Anomalie des stationsübergreifenden Mittelwerts pro Saison und Jahr. Jahresmittelwerte (links) und der 98-Perzentile (rechts) für NO₂.



Abbildung 55: Korrelation (Rank) zwischen der beobachteten und berechneten (RCGR, RCGM und RCGE) Anomalie des stationsübergreifenden Mittelwerts pro Saison und Jahr. Jahresmittelwerte (links) und der 98-Perzentile (rechts) für PM10.


Abbildung 56: Korrelation (Rank) zwischen der beobachteten und berechneten (RCGR, RCGM und RCGE) Anomalie des stationsübergreifenden Mittelwerts pro Saison und Jahr. Jahresmittelwerte (links) und der 98-Perzentile (rechts) für SO₂.

5.3 Bandbreite und typische Verhältnisse

5.3.1 Überblick

Im vorangegangenen Kapitel wurde die Rank-Korrelation benutzt, um den Anteil von Wetter- und Emissionsvariabilität an der zwischenjährlichen Variabilität zu ermitteln. In diesem Kapitel werden nun absolute Werte der Immission, d.h. Maxima, Minima und deren Differenzen, betrachtet, denn für Probleme der Luftreinhaltung sind die absoluten Konzentrationsänderungen wichtiger als relative Maße.

Untersucht wird die Bandbreite der Immission aufgrund der Variabilität von Wetter und Emission. Dazu wird das Jahr der höchsten und niedrigsten Immissionsbelastung (Mittelwerte, 98-Perzentil, Grenzwertüberschreitung) bestimmt. Deren Differenz ergibt die Bandbreite. Der Median des Ensembles der neun betrachteten Jahre wird als das jeweils typischste bzw. repräsentativste Referenzjahr betrachtet.

Durch den Vergleich der Extrema und Bandbreiten aus Beobachtung, Modell- und Szenariorechnung kann die Reaktion des Modells auf die betrachteten Variationen überprüft werden und die absolute Bedeutung von Wetter und Emissionsvariabilität auf die modellierte Immission bestimmt werden. Für die Bestimmung der Bandbreite der Beobachtung wurde auf das Ensemble aller Stationen und das der Land- und Vorstadt-Stationen zurückgegriffen. Da im ersten Ensemble auch Stationen, die von der Modellskala nicht erfasst werden können, enthalten sind, ist eine zu geringe modellierte Bandbreite kein Hinweis auf eine Schwäche des Modells.

Dem typischen Jahr sowie den Jahren der Extrema des Szenarios "Wettereinfluss" kommt große Bedeutung für die Bewertung von Emissionsszenarien zu. Das typische Jahr kann als meteorologisches Basisjahr für Emissionsszenarien, das Maximaljahr als "worst case" und das Minimaljahr als "best case" angesehen werden. Diese meteorologisch vorgegebene Bandbreite ist weiterhin wichtig, um die Auswirkung einer möglichen Klimaänderung auf das Immissionsklima zu ermitteln.

Abbildung 57 bis Abbildung 64 zeigen Bandbreite, Maximal-, Minimal und Medianwert der stationsübergreifenden Mittelwerte des Jahresmittels und des 98-Perzentils aus der Beobachtung, der normalen Modellrechnung und den beiden Szenarien für alle Stoffe. Abbildung 58 zeigt darüber hinaus die Bandbreite der Überschreitungen des 8h-mittelwertbezogenen Zielwertes von Ozon. Die Grenzwertüberschreitungen der anderen Stoffe werden hier nicht diskutiert, da das Modell in der hier verwendeten Auflösung die dafür notwendige Skala nur bedingt erfasst (siehe Kapitel 4.3.2). Tabelle 12 listet die Jahre mit höchster und niedrigster und typischer Belastung (Median) auf.

In allen Fällen ist die absolute Bandbreite der Gesamtheit der Beobachtung größer als die der Modellrechnungen. Dies gilt besonders für die stationsübergreifenden Mittelwerte der 98-Perzentile. Die Bandbreite der Land- und Vorstadt-Stationen liegt meist deutlich unter dem Wert aus der Gesamtheit aller Messstationen. Im Fall der Jahresmittelwerte liegt die Bandbreite der Modellrechnung in dem durch diese beiden Werte vorgegeben Intervall. Bei den 98-Perzentile ist jedoch die Bandbreite der Modellrechnung auch geringer als die aus den Beobachtungen der Land- und Vorstadt-Stationen abgeleitete Bandbreite.

Weiterhin ist erkennbar, dass die Summe der Bandbreiten von "Emissionstrend"– und "Wettervariabilität"-Szenario größer ist als die Bandbreite der normalen Modellrechnung. Dies weist auf einen nichtlinearen Zusammenhang zwischen Wetter- und Emissionstrendeinfluss und der Immission hin.

Die über alle Stationen gemittelte Immissionsbelastung des Jahres mit typischer Belastung (Referenz- oder Basisjahr) für die Mittelwerte aller Stoffe und die Maxima von Ozon und SO₂ liegen deutlich näher bei der Belastung des Jahres mit der geringsten Belastung. Dies gilt für die Beobachtung und die Berechnung (Normallauf RCGR) und spricht für den Umstand, dass die Jahre mit maximaler Belastung einzelne markante Besonderheiten darstellen. Ein Emissionsszenario könnte sich demzufolge auf den meteorologischen Basis- und den "worst case"-Fall beschränken. Die hier beschriebene Bandbreite ist somit eine obere Abschätzung für die mittleren Immissionsunterschiede zwischen dem "worst-case"-Fall und dem meteorologischen Referenzfall. Es zeigt sich weiterhin, dass "worst-case"-Jahr und Referenzjahr für die einzelnen Schadstoffe nicht notwendigerweise identisch sind. In den folgenden Kapiteln werden die Bandbreiten getrennt für die einzelnen Stoffe diskutiert.

5.3.2 Ozon

Die Bandbreite der Ozonmittelwerte ermittelt aus den Beobachtungen aller Stationen beträgt im Zeitraum 1995-2003 ca. 5 bis 6 ppb (Abbildung 57), die der Modellrechnung RCGR ist ca. 1 bis 2 ppb geringer. Bei den 98-Perzentilen beträgt die beobachtete Bandbreite 17 ppb, das Modell liefert hierfür nur knapp 10 ppb. Die Bandbreite der Land- und Vorstadt-Stationen (OBS_r) liegt deutlich unter dem Wert aus der Gesamtheit aller Messstationen (OBS). Für die Ozonjahresmittelwerte liegt der Wert der Modellrechnung in dem durch diese beiden Werte vorgegebenen Intervall. Die Bandbreite der Maxima wird vom Modell auch nur für die Land- und Vorstadtstationen unterschätzt.

Die berechnete Bandbreite durch die Wettervariabilität (RCGM) beträgt für die Mittelwerte ca. 4 ppb und für die Maxima knapp 10 ppb. Diese Werte entsprechen ca. 80 % der model-

lierten Gesamtvariabilität. Die Bandbreite durch die Emissionsvariabilität ist deutlich geringer und liegt im Bereich von 20% der beobachteten Gesamtvariabilität.

Aus meteorologischer Sicht, d.h. ohne Berücksichtigung des Emissionstrends, ist für Ozon das mittlere Jahr (Referenz- oder Basisjahr) das Jahr 1995 bezüglich der Jahresmittelwerte und das Jahr 1998 bezüglich der 98-Perzentile (Tabelle 12, Spalte RCGM). Das Jahr 2003 ist das Jahr mit den höchsten Mittelwerten und den höchsten 98-Perzentilen. 1996 und 1999 waren die Jahre der meteorologisch bedingten niedrigsten Mittel- bzw. Maximalwerte. Diese Jahre unterscheiden sich zum Teil von den aus Sicht der Immissionsbelastung mittleren und extremen Jahren, die aus der Beobachtung und der normalen Modellrechnung RCGR ermittelt werden, da Beobachtung und der Normallauf sowohl die Einflüsse der Wettervariabilität als auch die des Emissionstrends wiedergeben. Als Maximaljahr ("worst case"-Jahr) ergibt sich aber übereinstimmend das Jahr 2003, was den starken Einfluss der Wettervariabilität auf die Ozonimmissionen aufzeigt. Für das wetterbereinigte Szenario RCGE ist das Minimumjahr für den Jahresmittelwert das Jahr 1995 und das Maximumjahr das Jahr 2001¹⁸. Bei den Perzentilen ist der Trend umgekehrt: Das Maximumjahr ist 1995, das Minimumjahr 2000. Wie schon ausgeführt führt der Emissionstrend also zu einer Zunahme der Mittelwerte und einer Abnahme der Maximalwerte, wenn man den Einfluss der Wettervariabilität ausschaltet.

Im Maximaljahr der Beobachtung (2003) kommt es an 150 Stationen mehr zu mehr als 25 Überschreitungen des täglichen 8h-Mittelwerts als im Minimaljahr 1996 (Abbildung 58). Die berechnete Differenz zwischen dem Minimaljahr und dem Maximaljahr beträgt für das das Wettereinfluss-Szenario RCGM 180 Stationen, für das Emissionstrendszenario RCGE nur 50 Stationen, was wiederum den starken Einfluss der Wettervariabilität auf die Ozonspitzenwerte aufzeigt. Wie schon in Kap. 5.2 gezeigt wurde, ist die Wirkung beider Einflussfaktoren in dem hier betrachteten Zeitraum entgegengesetzt, da das Maximumjahr 2003 auch das Jahr mit den niedrigsten Emissionen ist.. Die Bandbreite der normalen Modellrechung RCGR liegt daher zwischen den Bandbreiten der beiden Einflussszenarien und stimmt sehr gut mit der beobachteten Bandbreite überein.

Die absolute Höhe der Jahresmittelwerte wird vom Modell für das Basis-, Maximal- und Minimaljahr leicht überschätzt (Abbildung 59). Die Gesamtheit der 98-Perzentile wird im Maximaljahr leicht unterschätzt, während in Basis- und Minimaljahr das Niveau gut getroffen wird.

¹⁸ Es muss berücksichtigt werden, dass ab 2001 mit konstanten Emissionen gerechnet wurde, da für die Jahre 2002 und 2003 keine Fortschreibungsfaktoren zur Verfügung standen



Abbildung 57: Differenz zwischen den Jahren mit der höchsten und der niedrigsten Jahresimmission im Zeitraum 1995-2003 für Ozon aus der Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Beobachtung nur unter Verwendung der Land- und Vorstadtstationen (OBS_r), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.



Abbildung 58: Differenz zwischen den Jahren mit der höchsten und der niedrigsten Anzahl der Überschreitung des 8h-mittelwertbezogenem Grenzwert von Ozon (siehe Kapitel 2.7) im Zeitraum 1995-2003 aus der Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR).



Abbildung 59: Höchste (Maximum), niedrigste (Minimum) und typische Jahresimmission (Median) im Zeitraum 1995-2003 für Ozon aus der Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.

5.3.3 NO₂

Beim NO₂ (Abbildung 60) beträgt die modellierte Bandbreite der Mittelwerte ca. 2/3 der Bandbreite der Beobachtung (4 ppb) und weniger als die Hälfte der Bandbreite der beobachteten Maximalwerte (15 ppb). Im Gegensatz zum Ozon ist die für die Emissionsvariabilität berechnete Immissionsbandbreite größer als die für den Wettereinfluss. Die Bandbreite durch die Emissionsvariabilität beträgt für Mittelwerte und Maxima ca. 3/4 der Bandbreite des Normallaufs RCGR, der Wettereinfluss bewirkt eine Bandbreite, die ca. die Hälfte der des Normallaufs RCGR beträgt.

Die absolute Höhe der beobachteten Jahresmittelwerte und der Perzentile wird vom Modell für das Basis-, Maximal- und Minimaljahr unterschätzt (Abbildung 61), da ein großer Teil der Stationen in Stadtgebieten liegt, die in der hier benutzten Modellauflösung nicht dargestellt werden können. Das meteorologische Referenzjahr bei Nichtberücksichtigung des Emissionstrends ist 1998 hinsichtlich der Jahresmittelwerte und 2001 hinsichtlich der 98-Perzentile (Tabelle 12, Spalte RCGM). Für 1996 werden die meteorologisch bedingten höchsten Mittelwerte und für 1995 die höchsten 98-Perzentile sowie 1999 die niedrigsten Mittel- bzw. Maximalwerte berechnet. Die hohen Maximalwerte der Beobachtung im Jahre 1997 waren nach Experteneinschätzung hauptsächlich durch meteorologische Ursachen bestimmt (Extrem austauscharme Wetterlagen mit niedrigen Temperaturen im Winter, siehe Enke, 2002). Diesem Jahr wird nach dem Wettereinflussszenario jedoch nur das drittgrößte Potenzial hinsichtlich der Maximalwerte zugewiesen. Offensichtlich gelingt es dem Modell bei NO₂ nur zum Teil, die Wirkung der extremen Wettersituation auf die Maxima wiederzugeben. Mögliche Gründe dafür sind die zu grobe räumliche horizontale Auflösung und die unzureichende Wiedergabe der Inversionswetterlagen im Modell. Ebenso muss davon ausgegangen werden, dass die statistischen Ansätze zur Berechnung der stündlichen Emission nicht geeignet sind, die realen Emissionen unter extremen Wettersituationen zu beschreiben.

NO2 RANGE 1995-2003 P98MA

NO2 RANGE 1995-2003 ZRM



Abbildung 60: Differenz zwischen den Jahren mit der höchsten und der niedrigsten Jahresimmission im Zeitraum 1995-2003 für NO₂ aus der Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Beobachtung nur unter Verwendung der Land- und Vorstadtstationen (OBS_r), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.



NO2 MAX MED MIN 1995-2003 P98MA



Abbildung 61: Höchste (Maximum), niedrigste (Minimum) und typische Jahresimmission (Median) im Zeitraum 1995-2003 für NO₂ aus Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.

5.3.4 PM10

Die Bandbreite der beobachteten PM10-Mittelwerte von ca. 8 μ g/m³ im Zeitraum 1995-2003 wird vom Modell mit ca. 6 μ g/m³ modelliert (Abbildung 62). Bei den Maximalwerten¹⁹ gelingt es jedoch nicht, die Bandbreite von fast 50 μ g/m³ adäquat wiederzugeben. Die Bandbreite aufgrund des meteorologischen Einflusses beträgt ca. 80% und die des Emissionstrendeinflusses ca. 50% der modellierten Gesamtvariabilität. Damit überwiegt wie beim Ozon und im Gegensatz zu NO₂ der meteorologische Einfluss. Die berechnete Variabilität ist bei den Maximalwerten gering. Die absolute Höhe der beobachteten Jahresmittelwerte wird vom Modell leicht, die der 98-Perzentile dagegen stark unterschätzt (Abbildung 63), Aufgrund der großen Variabilität der Stundenmessungen von PM10 und TSP ist dieser Umstand nicht verwunderlich.

Das meteorologische Basisjahr hinsichtlich der Jahresmittelwerte ist 2003 und 1999 hinsichtlich der 98-Perzentile (Tabelle 12, Spalte RCGM). Für 1996 wurden die höchsten Mittelwerte und 1997 die höchsten 98-Perzentile berechnet. 2001 und 2003 sind die Jahre der meteorologisch bedingten niedrigsten Mittel- und Maximalwerte. Für das Jahr 1996 ergeben sich sowohl in der Beobachtung als auch in allen Modellrechnungen die höchsten PM10-Jahresmittelwerte. Für die Modellrechnungen ist dies bemerkenswert, da die PM10-Emission aufgrund geringer Windgeschwindigkeit in diesem Jahr die niedrigsten im gesamten Zeitraum gewesen sind (siehe Abbildung 22). Offensichtlich überwieg der Einfluss der ungünstigen Ausbreitungsbedingungen in Verbindung mit den noch relativ hohen Emissionen der Vorläufer der sekundären Aerosole den Einfluss der niedrigeren Emission des primären PM10-Anteils. Es muss darauf hingewiesen werden, dass die Emissionsbestimmung für Partikel mit deutlich größeren Unsicherheiten versehen ist als die der anderen Schadstoffe. Insbesondere sind natürliche Emissionsquellen und Partikelemission durch landwirtschaftliche Aktivitäten nur bedingt erfasst.

¹⁹ Aufgrund des starken "Rauschens" der stündlichen Werte wäre es für PM10 angemessen, bei den Maxima nur Tagesmittel zu betrachten

PM10 RANGE 1995-2003 ZRM





Abbildung 62: Differenz zwischen den Jahren mit der höchsten und der niedrigsten Jahresimmission im Zeitraum 1995-2003 für PM10 aus der Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Beobachtung nur unter Verwendung der Land- und Vorstadtstationen (OBS_r), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.



Abbildung 63: Höchste (Maximum), niedrigste (Minimum) und typische Jahresimmission (Median) im Zeitraum 1995-2003 für PM10 aus Beobachtung (OBS), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.

5.3.5 SO₂

Auch bei SO₂ ist die beobachtete Bandbreite aus dem Ensemble aller Stationen deutlich größer als die der Modellrechnung und Szenarien (Abbildung 64). Während bei allen anderen Stoffen die Bandbreite der normalen Modellrechnung RCGR größer als die der Szenarien ist, ist im Fall von SO₂ die Bandbreite des Emissionstrendszenarios RCGE etwas größer als die der normalen Modellrechnung RCGR. Die beobachtete Bandbreite der Mittelwerte beträgt 11 μ g/m³, das Szenario RCGE ermittelt 5 μ g/m³. Die Abnahme der mittleren Maximalwerte ist sehr groß und beträgt ca. 100 μ g/m³, der entsprechende Wert der Modellrechnung beträgt ca. 20 μ g/m³. Die hohen Jahresmittel- und Maximalwerte im Jahr 1996 werden vom Modell deutlich unterschätzt, während das Basis- und Minimaljahr (1999 und 2002) im Niveau gut getroffen wird. Das meteorologische Basisjahr ist 1998 hinsichtlich der Jahresmittelwerte und der 98-Perzentile. 1996 traten die meteorologisch bedingten höchsten Mittel und die höchsten 98-Perzentile auf. 1999 ist das Jahr der niedrigsten Mittel- bzw. Maximalwerte.



Abbildung 64: Differenz zwischen den Jahren mit der höchsten und der niedrigsten Jahresimmission im Zeitraum 1995-2003 für SO₂ aus der Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Beobachtung nur unter Verwendung der Land- und Vorstadtstationen (OBS_r), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.



Abbildung 65: Höchste (Maximum), niedrigste (Minimum) und typische Jahresimmission (Median) im Zeitraum 1995-2003 für SO₂ aus Beobachtung (OBS), aus der Modellrechnung zum Emissionstrendeinfluss (RCGE), zum Wettereinfluss (RCGM) und der normalen Modellrechnung (RCGR). Dargestellt ist links der stationsübergreifende Mittelwert des Jahresmittelwertes und rechts der des 98-Perzentil der Tagesmaxima.

		Jahresmittel				98-Perzentil			
Stoff	Statistik	OBS	RCGR	RCGM	RCGE	OBS	RCGR	RCGM	RCGE
NO2	MIN	2001	2003	1999	2000	2001	2000	1999	2000
NO2	BASIS	1999	2002	1998	1999	1995	1999	2001	1999
NO2	MAX	1996	1995	1996	1995	1997	1995	1995	1995
SO2	MIN	2002	2002	1999	2003	2001	2001	1999	2003
SO2	BASIS	1999	1999	1998	1999	1999	1999	1998	1999
SO2	MAX	1996	1995	1996	1995	1996	1995	1996	1995
PM10	MIN	2000	2001	2001	2003	2002	2003	2003	2003
PM10	BASIS	2002	1998	2003	2000	1998	2002	1999	2000
PM10	MAX	1996	1996	1996	1996	1996	1996	1997	1996
03	MIN	1996	1996	1996	1995	2002	1999	1999	2000
03	BASIS	2001	2001	1995	1999	2001	2000	1998	1999
O3	MAX	2003	2003	2003	2001	2003	1995	2003	1995

Tabelle 12: Jahre mit der höchste (MAX), niedrigsten (MIN) und mittleren (BASIS) Immission hinsichtlich des Jahresmittelwertes und des 98-Perzentils des Tagesmaximums im Zeitraum 1995-2003 aus der Beobachtung (OBS), der Modellrechnung mit Emissions- und Wettereinfluss (RCGR) und der Modellrechnung unter Ausschaltung des Emissionstrend (RCGM).

6 Zusammenfassung

In diesem Bericht wurden die jährlichen Unterschiede der Immission von Ozon, NO₂, PM10 und SO₂ in Deutschland im Zeitraum 1995-2003 untersucht. Es wurde versucht, den Einfluss von Wettervariabilität und Emissionsänderungen auf die Variabilität der mittleren Immissionsbelastung in Deutschland zu bestimmen. Grundlage der Untersuchung waren beobachtete Immissionswerte, meteorologische Daten und europaweite Ausbreitungsrechnungen mit dem Chemie-Transport-Modell REM-CALGRID mit einer horizontalen Maschenweite von ca. 25 bis 30 km.

Den Immissionsunterschieden, die alleine durch die zwischenjährliche Wetterunterschiede entstehen, kommt besondere Bedeutung zu, da sie in Relation zu denjenigen Immissionsänderungen gesetzt werden müssen, die sich aus der Prognose der Auswirkungen geplanter Maßnahmen ergeben. Solche Prognoserechnungen, die für jede Maßnahmenplanung unabdinglich sind, da die Auswirkungen von Maßnahmen auf die Luftqualität nicht auf der Basis von Messungen abgeschätzt werden können, werden mit chemischen Transportmodellen wie dem REM-CALGRID-Modell durchgeführt. Dieses Modell wurde bereits im Rahmen der UBA F&E-Vorhaben 29841252 und 29943246 für Szenarienrechnungen in der großräumigen und der regionalen Skala verwendet (Stern, 2003a und Stern et al., 2003).

Für die Prognose der Auswirkungen von Maßnahmen werden gewöhnlich zwei Simulationen unter der Verwendung identischer meteorologischen Daten (meteorologisches Basisjahr) aber unterschiedlicher Emissionen durchgeführt. Bei der Bewertung der sich daraus ergebenden Immissionsunterschiede spielen die charakteristischen Eigenschaften des meteorologischen Basisjahrs, d.h. der "Wettereinfluss", eine wichtige Rolle, da die Immissionsänderung aufgrund der Emissionsänderung bei unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen verschieden stark ausfallen kann. Insbesondere das Auftreten hoher Konzentrationswerte ist oft an extreme meteorologische Bedingungen geknüpft und kann damit stark von Jahr zu Jahr variieren.

Ziel der hier vorgestellten Untersuchung war es daher auch, ein meteorologisches Basisjahr und ein meteorologisch "ungünstiges" Jahr für Emissionsszenariorechnungen zu ermitteln. Mit dem REM-CALGRID-Modell wurden dazu europaweit die stündlichen Immissionsverteilungen für die Jahre 1995-2003 unter Berücksichtigung des Emissionstrends berechnet. Die Separierung der Beiträge des "Wetters" bzw. des Emissionstrends zur Immissionsvariabilität erfolgte für alle Jahre anhand zweier Szenarienrechnungen. Insgesamt wurden für die Jahre 1995 bis 2003 also drei Serien von Berechnungen durchgeführt:

- "Normallauf": Simulation mit den aktuellen Wetterbedingungen der Jahre 1995 bis 2003 unter Verwendung der Emissionstrends,
- "Wettereinfluss"-Szenario: Simulation mit der Emission von 1997 und den aktuellen Wetterbedingungen der Jahre 1995 bis 2003,
- "Emissionstrendeinfluss"-Szenario: Simulation mit den meteorologischen Daten von 1997 unter Verwendung der Emissionstrends 1995 bis 2003.

Das Jahr 1997 wurde als meteorologisches Basisjahr für das Emissionstrendszenario ausgewählt, da es nach der Untersuchung von Enke (2002) das meteorologisch repräsentativste im Zeitraum 1990-2000 ist. Die Evaluierung der berechneten Immissionsvariabilität wurde anhand eines Vergleichs mit der beobachteten Immissionsvariabilität durchgeführt. Die verwendeten Beobachtungen setzten sich aus allen verfügbaren und vollständigen Messzeitreihen (85% der stündlichen Daten) der Messnetze der Bundesländer und des UBA zusammen. TSP–Messungen wurden unter Annahme des Faktors 0.83 in PM10-Werte umgerechnet. Die Wettervariabilität wurde anhand von Temperatur und Windstärke untersucht. Die dazu benötigten meteorologischen Daten stammen aus den meteorologischen Eingabedaten des Modells.

Für die Orte der Messstationen mit vollständigen Zeitreihen wurden die entsprechenden Zeitreihen aus der Modellrechnung und aus den meteorologischen Feldern bestimmt und mit statistischen Parametern (Jahresmittelwert, 98-Pezentil und Überschreitung von EU-Grenzwerten) zusammengefasst. Die über alle Stationen gemittelten Werte dieser Parameter bilden dann das Datenmaterial für die Untersuchung der zwischenjährlichen Unterschiede. Es wurden die jährlichen Anomalien gebildet und deren Zusammenhang mit dem Rank-Korrelationskoeffizient quantifiziert.

Die Untersuchung der Wettervariabilität mit Hilfe der über alle Stationen gemittelten Anomalien von Windgeschwindigkeit und Bodentemperatur ergab zunächst, dass eine Unterscheidung von Jahreszeiten offensichtlich eine wesentlich bessere Differenzierung bietet, da die Anomalien des Jahres eine Summe von oft gegensätzlichen Anomalien der Jahreszeiten sind. Das kälteste und windschwächste Jahr war 1996, das wärmste Jahr war 2000 und das windreichste 1998. Hinsichtlich der Temperatur kann 1998 und hinsichtlich der Windstärke kann 2001 als das typischste, d.h. als Referenz- oder Basisjahr betrachtet werden. Im Winter zeigen sich signifikante negative Korrelationen zwischen Wind und Temperatur, im Sommer kehrt sich dieser Zusammenhang um.

Die Ableitung der zwischenjährlichen Immissionsvariabilität aus der Immissionsbeobachtung wird dadurch erschwert, dass für Ozon, NO₂ und SO₂ nur ca. 30% - 50% der Stationen in allen Jahren mit vollständigen Jahreszeitreihen vertreten sind, bei PM10 sind es sogar weniger als 10% Prozent. Ein Vergleich der Anomalien, zum einem gebildet aus allen verfügbaren und zum anderen aus allen Stationen, die im gesamten Zeitraum vorhanden sind, ergab eine gute qualitative Übereinstimmung mit quantitativen Unterschieden von 20% bis 50% (98-Perzentil). Aufgrund der deutlich höheren Anzahl von Messungen wurde entschieden, alle Stationen zu verwenden und die statistischen Auswirkungen durch jährlich unterschiedliche Datenverfügbarkeit in Kauf zu nehmen.

Die ausgeprägteste Variabilität der beobachteten Immission tritt für SO₂ auf. Im Zeitraum von 1995 bis 2003 verringern sich die Mittelwerte auf ca. 50%, die Maximalwerte auf ca. 30%. Bei den anderen Stoffen liegt die Variabilität im Bereich von 10%-20%. Außer bei Ozon treten die größten Immissionsunterschiede im Winter auf. Bei Ozon ist ein leichter Anstieg der Jahresmittelwerte erkennbar, der seinen Ursprung offensichtlich nicht in den Sommermonaten hat. Das Jahr 2003 tritt mit seinen hohen Mittel- und Maximalwerte zusammen mit 1995 deutlich hervor. Überschreitungen des 8h-mittelwertbezogenen Zielwertes für Ozon gibt es in den Jahren 1995 und 2003 etwa an doppelt so vielen Stationen wie in den übrigen Jahren. 1996 zeichnete sich durch besonders hohe Mittelwerte von NO₂ und PM10 aus. Die höchsten NO₂-Maxima sind aber im Jahr 1997 zu finden. PM10 und NO₂ lassen von 1996 bis 2000 eine Abnahme der Mittel- und Maximalwerte, sowie der Grenzwertüberschreitungen erkennen.

Betrachtet man die Zusammenhänge zwischen der beobachteten Immissions- und Wetteranomalie, so findet sich bei SO₂ aufgrund des starken Emissionstrendeinflusses keine ausgeprägte Korrelation. PM10- und NO₂-Anomalien sind in allen Jahreszeiten negativ mit Anomalien der Windstärke korreliert. Windärmere Jahre sind demzufolge immissionsreicher. Hinsichtlich der Ozonimmission lässt sich nur in Sommer und Frühling eine positive Korrelation zur Temperaturanomalie ermitteln, ein Einfluss der Windstärke ist dagegen nicht erkennbar.

Die in den Modellrechnungen benutzten Emissionstrends beruhen auf Fortschreibungsfaktoren, die auf die Basisemission 1995 aufgesetzt werden. Solche Faktoren liegen für den Zeitraum 1996 bis 2001 für jedes europäische Land vor. Ab 2001 wird die Emission konstant gehalten, da zur Zeit der Untersuchung keine Informationen über den weiteren Emissionstrend vorlagen. Für Deutschland ergibt sich im Zeitraum von 1995 – 2001 eine Abnahme der anthropogenen NO_x-Emission um 20%, der VOC-Emission um 10% und der SO₂–Emission um 75%. Die Emission von primärem PM10 schwankt allein aufgrund der im Modell berechneten windabhängigen Staubaufwirblung um ca. 20% und hat ihren niedrigsten Wert in Jahr 1996. Die meteorologischen Daten für das Modell wurden mit Hilfe des an der Freien Universität Berlin entwickelten diagnostischen Systems erstellt, das aus synoptischen Daten und Radiosondendaten mit Methoden der optimalen Interpolation konsistente meteorologische Felder in der benötigten Gitterauflösung berechnet.

Die Modellrechnungen reproduzieren die beobachteten zwischenjährlichen Anomalien gut. Es bestehen durchweg positive Korrelationen zwischen den beobachteten und modellierten Anomalien, die Vorzeichen der Anomalien stimmen meistens überein. Die Bandbreite der modellierten Anomalien ist bei NO₂, PM10 und SO₂ geringer als diejenige der beobachteten Anomalien, die aus der Gesamtheit der vorliegenden Messungen abgeleitet sind. Dies gilt insbesondere für die Maximalwerte aber auch für die sehr hohen Mittelwerte im Jahr 1996. Für diese Stoffe wird auch die Anzahl der Grenzwertüberschreitungen deutlich unterschätzt. Die Variabilität der Überschreitungen des Ozon-Zielwertes (8h-Mittelwert) wird jedoch sowohl in der Variabilität als auch in der absoluten Anzahl sehr gut vom Modell wiedergegeben. In diesem Zusammenhang gilt zu berücksichtigen, dass die Mehrzahl der Messstationen einem Stadt- oder Verkehrsregime zugeordnet sind, so dass deren Repräsentanzbereich von der hier verwendeten großräumigen Modellanwendung in vielen Fällen nur unzureichend aufgelöst werden kann. An diesen Stationen werden in der Regel die höchsten NO2- und PM10-Konzentrationen beobachtet. Die hohen Ozonwerte treten dagegen eher an Land- oder Vorstadtstationen auf, deren Repräsentanzbereich in der Größenordnung der Modellauflösung liegt. Aufgrund dieses Skalenproblems beschreibt die großräumige Modellanwendung auch die Überschreitungen bei Ozon in der richtigen Größenordnung.

Da das Modell imstande ist, die beobachtete zwischenjährliche Variabilität zu reproduzieren, kann mit Hilfe der Szenarien "Emissionstrend" und "Wettereinfluss" versucht werden, den jeweiligen Einfluss der beiden Faktoren auf die jährliche Immissionsvariabilität zu bestimmen. Dazu wurde die Korrelation der Anomalien beider Szenarien sowie die des Normallaufs mit den beobachteten Anomalien ermittelt. Diese Korrelation dient als Maß für die "Erklärung" der Immissionsvariabilität durch einen der Einflussfaktoren. Da die Korrelation nur ein relatives Maß ist, wurde weiterhin für die Beobachtung und alle Modellrechnungen aus der Differenz der mittleren Immissionen der Jahre mit maximaler und minimaler Belastung die absolute Bandbreite der Variabilität ermittelt. Diesen Extremjahren kommt eine besondere Bedeutung zu, da sie die günstigsten und ungünstigsten Jahre bezüglich des Witterungeinflusses auf die Immission darstellen. Aus den Beobachtungen können diese Jahre nicht direkt ermittelt werden, da der Emissionstrendeinfluss und der Witterungseinfluss nicht ohne weiteres getrennt werden können. In der Modellrechnung wird der Witterungseinfluss dagegen direkt berechenbar, wenn man den Emissionstrend ausschaltet, wie dies beim Szenario "Witterungseinfluss" der Fall ist. Der Median des neunjährigen Ensembles des Wettereinflussszenarios kann dementsprechend als das meteorologische Basisjahr verwendet werden.

Das Emissionstrendszenario, das die durch den Witterungseinfluss hervorgerufene Immissionsvariabilität ausschaltet, führt bei NO2, SO2 und PM10 im Mittel über Deutschland zu einer Abnahme der Mittel- und Maximalwerte der Immission. Die relative Immissionsabnahme bei den Jahresmittelwerten von NO2 im Zeitraum 1995 bis 2003 entspricht in etwa der entsprechenden relativen NOx-Emissionsabnahme in Deutschland. Bei den NO2-Maximalwerten ist die erreichbare mittlere Immissionsabnahme etwas geringer und beim SO2 nur etwas halb so groß wie die entsprechende relative Emissionsabnahme. Die Ursache dieser unterschiedlichen Reaktion auf Emissionsveränderungen kann in der unterschiedlichen Quellverteilung von SO2 und NOx liegen. SO2 wird vorwiegend aus relativ wenigen hohen Punktquellen emittiert, NOx-Emissionen sind dagegen wegen des hohen Kfz-Anteils eher bodennah und gleichmäßiger verteilt. Die geographisch ungleichmäßig verteilten SO₂-Emissionsminderungen müssen sich daher in der hier vorgenommenen mittlere Betrachtung, d.h. der Mittelung über alle verfügbaren Stationen in Deutschland, nicht entsprechend auswirken. Bei Ozon führt das Emissionstrendszenario zu einem leichten Anstieg der Mittelwerte und einer Verringerung der Maxima, was mit "wetterbereinigten" Beobachtungsreihen (Enke, 1999) gut übereinstimmt. Der Anstieg der Mittelwerte ist eine Folge der innereuropäischen Emissionsentwicklung, da das Modell in allen Jahren mit den gleichen Randbedingungen rechnet und somit den globalen Einfluss nicht berücksichtigt.

Bei Ozon tragen sowohl Wettereinfluss als auch Emissionstrendeinfluss zur statistischen Erklärung der beobachteten Variabilität der Mittelwerte bei. Der Emissionstrendeinfluss ist jedoch relativ unbedeutend im Sommer und bei den Maximalwerten. Aufgrund der guten Übereinstimmung der berechneten und gemessenen Ozonvariabilität lässt sich daraus ableiten, dass die beobachtete Schwankungsbreite der Jahresmittelwerte und insbesondere der Maxima fast ausschließlich durch die meteorologische Variabilität bestimmt wird. Dies zeigt sich auch deutlich für die Anzahl der berechneten und beobachteten Überschreitungen des Ozon-Kurzfrist-Zielwertes der EU-Richtlinien. Aufgrund der extremen Witterung kam es im ozonreichsten Jahr 2003 an doppelt so vielen Stationen, d.h. an zusätzlich 140 Stationen, zu mehr als 25 Überschreitungen des 8h-Mittelwertes von 120 μ g/m³ als im ozonärmsten Jahr 1996.

Beim SO₂ ist der Emissionstrendeinfluss der dominierende Faktor. Auch beim NO₂ überwiegt der Emissionstrendeinfluss, die meteorologische Variabilität ist nur bei den Mittelwerten ein bedeutender Einflussfaktor. Hier muss allerdings berücksichtigt werden, dass das Modell in der hier verwendeten Auflösung die unter extremen Wetterbedingungen gemessenen hohen Immissionen unterschätzt. Insbesondere für die Maximalwerte kann dieser Umstand zu einer Unterschätzung des Wettereinflusses führen.

Auch bei PM10 sind beide Einflussfaktoren von Bedeutung, nur dass bei diesem Stoff nach den Modellrechnungen die Wettervariabilität der wichtigere Einflussfaktor zur Erklärung der Schwankungsbreite ist. Hier gilt es allerdings zu berücksichtigen, dass für die anthropogenen Emissionen von PM10 wegen der Unsicherheiten in der Gesamtemission kein Emissionstrend berücksichtigt wurde. Die Schwankungen der PM10-Emission in den Modellrechnungen werden daher nur durch die windabhängige Staubaufwirbelung hervorgerufen. Die Emissionsänderungen der Vorläufer der sekundären Aerosole tragen allerdings auch zum E-

missionstrendeinfluss bei. Die Bildung der sekundären Aerosole hängt auch von den Temperatur- und Feuchteverhältnissen der Atmosphäre ab, was wiederum zur Verstärkung des Einflusses der Wettervariabilität beiträgt.

Die Modellrechnungen für den Zeitraum 1995 bis 2003 zeigen, dass der Wettereinfluss beim Ozon am stärksten und beim SO_2 am geringsten ist. Bei PM10 und NO_2 spielen beide Einflussgrößen, Wetter und Emissionstrend, eine wichtige Rolle. Die meteorologische Variabilität hat also insgesamt einen großen Einfluss auf die Immissionswerte. Es zeigt sich auch, dass die bezüglich des meteorologischen Einflusses auf die Immissionen definierten "worstcase"-Jahre und Referenzjahre für die einzelnen Schadstoffe unterschiedlich sind.

Die hier vorgenommene Ableitung bestimmter Jahre zur Verwendung als meteorologisches "worst-case"- bzw. Basisjahr beruht auf Auswertungen, denen mittlere Immissionszustände in Deutschland zugrunde liegen. Regionale Auswertungen oder entsprechende Auswertungen für andere Länder können zu anderen Ergebnissen führen. Diese in einer nationalen Betrachtung nicht zu vermeidende Einschränkung muss berücksichtigt werden, insbesondere wenn die Modellrechnungen gekoppelt für unterschiedliche Skalen, z.B. europaweit und regionales Ballungsgebiet, durchgeführt werden sollen.

In dem betrachteten Zeitraum 1995 bis 2003 treten die meteorologisch bedingten positiven Anomalien für Ozon im sommerwarmen Jahr 2003 auf. Für die anderen Stoffe ist das meteorologisch ungünstigste Jahr das kalte und windschwache Jahr 1996. Diese beiden Jahre bilden eine deutliche Besonderheit im betrachteten Zeitraum und könnten als meteorologische "worst case" Jahre in zukünftigen Emissionsszenarien mit REM-CALGRID verwendet werden. Die Bestimmung eines eindeutigen Referenz- oder Basisjahres ist schwierig, da sich je nach Betrachtung von Mittelwerten oder Maxima für die verschiedenen Schadstoffe verschiedene Jahre ergeben. Allerdings sind die Unterschiede zwischen den einzelnen Jahren oft gering. Als ein für alle Schadstoffe zu verwendendes, mittlere Immissionszustände beschreibendes meteorologisches Basisjahr wird 1998 vorgeschlagen, da es nach den Auswertungen häufig Basisjahr ist, bzw. sehr nah am jeweiligen Basisjahr liegt. Dieses meteorologische Basisjahr ist das Jahr, das am ehesten den Einfluss mittlerer meteorologischer Verhältnisse auf die Immissionen wiedergibt, bezogen auf den Zeitraum 1995 bis 2003. Es unterscheidet sich von dem von Enke (2002) ermittelten Basisjahr 1997, das auf einer Auswertung der Wetterlagenhäufigkeit beruht und im Gegensatz zu dem hier vorgenommenen Auswahlverfahren nicht die Immission berücksichtigt.

7 Literatur

Beilke, S. und Uhse, K. (1999), Jahresbericht 1998 aus dem Messnetz des Umweltbundesamtes, UBA-Texte, Bd. 66.

Builtjes, P., M. van Loon, M. Schaap, S. Teeuwisse, A. Visschedijk, P. Bloos (2002), The development of an emission data base over Europe and further contributions of TNO-MEP. TNO-Report R2002/322. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts "Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon".

Dimov, I. Geernaert, G. und Zlatev, Z. (2002), Influence of Future Climate Changes in Europe on Exceeded Ozone Critical Levels, A contribution to EUROTRAC subproject GLOREAM,http://www.dmu.dk/atmosphericenvironment/gloream/eurotrac2002/Glo04dimo v.pdf.

Enke, W., Seewöster, J., und Heiermeier, H., (1998), Erfassung und Beschreibung der Immissions-Meßzeitreihen in Deutschland, Teil I Kategorisierung der Ozonstationen Im Auftrag des Umweltbundesamt FE-Vorhaben 20402841.

Enke, W. (1999), Analyse historischer Ozonzeitreihen und Entwicklung einer Methode zur quasi wetterbereinigten Trendanalyse von bodennahem Ozon, Bericht zum UBA-Forschungsvorhaben 10402131.

Enke, W. (2002), Ermittlung eines Basisjahres für die Ausbreitungsrechnung, Zwischenbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhabens 20143250 des Umweltbundesamtes "Anwendung modellgestützter Beurteilungssysteme für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien".

EU (**1996**), Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27.9.1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 296/55 vom 21.11. 1996

EU (1999), Richtlinie 1999/30/EG des Rats vom 22.4.1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 163/41 vom 29.6. 1999.

EU (2000), Richtlinie 2000/69/EG des Europäischen Parlaments und des Rats vom 16.11.2000 über Grenzwerte für Benzol und Kohlenmonoxid in der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 313/12 vom 13.12. 2000.

EU (2002), Richtlinie 2002/3/EG des Europäischen Parlaments und des Rats vom 12.2.2002 über den Ozongehalt der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 67/14 vom 9.3. 2002.

Flemming J. (2003), Klimatische Auswertung von modellierten und beobachteten Zeitreihen für Ozon, NO2, NO, SO2 und PM10 in Deutschland für die Jahre 1995-2001 und deren Charakterisierung nach Immissionsregimes mit einem Clusterverfahren. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts "Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon".

Lenschow, P., H.-J. Abraham, K. Kutzner, M. Lutz, J.-D. Preuß, and W. Reichenbächer (2001). Some ideas about the sources of PM10, Atmos. Environ. 35 (2001) S23-S33.

Logan, J. A. (1999), An analysis of ozone sonde data for the troposphere: Recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, Journal of Geophysical Research, Bd. 104104, 16, S. 115-16

Oltmans, S. J. (**1998**), Trends of ozone in the troposphere, Geophysical Research Letters, Bd. 25, 2, S. 139-142.

Reimer, E. und Scherer, B. (1992), An operational meteorological diagnostic system for regional air pollution analysis and long term modeling, in Air Pollution Modelling and its Application IX, eds. H. v. Dop und G. Kallos, NATO Challenges of Modern Society, Kluwer Academic/Plenum Publisher, New York.

Roemer, M. (2001), Trends of ozone and precursors in Europe, TNO-report, Bd. R2001/244, Appeldoorn.

Stern, R., Kerschbaumer, A. und Fath, J. (2003), Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID auf die Region Berlin-Brandenburg, Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 299 43 246 auf dem Gebiet des Umweltschutzes "Entwicklung eines Modellsystems für das Zusammenspiel von Messung und Rechnung für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität"

Stern, R. (2003a), Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts "Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon".

Stern, R. (2003b), Erstellung einer europaweiten Emissionsdatenbasis mit Bezugsjahr 1995 und die Erarbeitung von Emissionsszenarien für die großräumigen Ausbreitungsrechnungen mit REM/CALGRID. Abschlußbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts "Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon".

Wilks, Daniel S. (1995), Statistical Methods in Atmospheric Science, International Geophysics Series, Academic Press, Bd. 59, London.

8 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Prinzip der Mittelwertbildung zur Untersuchung der zwischenjährlichen Variabilität... 5

- Abbildung 3: Anzahl der Stationen mit vollständigen Jahresmessreihen (>85% der stündlichen Daten). Rot ist der Anteil der Stationen, die in allen Jahren von 1995-2002 Zeitreihen liefern... 9

- Abbildung 11: Anzahl der Stationen mit Grenzwertüberschreitungen für O₃, SO₂, PM10 und NO₂, 22

Abbildung 14: Anomalie des Jahrsmittels der Immission bei Berücksichtigung aller Stationen (all) und nur der Stationen, die in allen Jahren vorhanden sind (95-03) für die Jahresmittelwerte (links) und die 98-Perzentile (rechts) von PM10
Abbildung 15: Anomalie des Jahrsmittels der Immission bei Berücksichtigung aller Stationen (all) und nur der Stationen, die in allen Jahren vorhanden sind (95-03) für die Jahresmittelwerte (links) und die 98-Perzentile (rechts) von SO ₂
 Abbildung 16: Korrelation (Rank) zwischen den Anomalien der mittleren Temperatur und denen der mittleren Immission von Ozon (oben links), NO₂ (oben rechts), PM10 (unten links) und SO₂ (unten rechts) für die Jahreszeiten und das gesamte Jahr
Abbildung 17: Korrelation (Rank) zwischen den Anomalien der mittleren Windstärke und denen der mittleren Immission von Ozon (oben links), NO ₂ (oben rechts), PM10 (unten links) und SO ₂ (unten rechts) für die Jahreszeiten und das gesamte Jahr
Abbildung 18: Streudiagramm der Anomalie der Temperatur (y-Achse in K) und der Ozonimmission (x-Achse in ppb)
Abbildung 19: Streudiagramm der Anomalie des Windes (y-Achse in 0.1m/s) und der PM10- Immission (x-Achse in µg/m ³)
 Abbildung 20: Anthropogene (VOCA) und biogene (VOCB) Kohlenwasserstoff-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitter Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend ("Emissionstrend"-Einfluss)
Abbildung 21: Anthropogene (NOXA) und biogene (NOXB) NOx-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitter Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend ("Emissionstrend"-Einfluss)
Abbildung 22: Anthropogene (PM10A) und aufgewirbelte (PM10D) PM10-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie f ür die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitter Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 (,,Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 f ür alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend (Emissionstrend-Einfluss)
Abbildung 23: Isopren, Terpen und OVOC-Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitte: Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend (Emissionstrend-Einfluss)
Abbildung 24: SO ₂ und SO ₄ -Emission (kt/a) in Deutschland wie sie für die Simulationen verwendet wurden. Links: normale Simulation, Mitte: Simulationen mit variabler Meteorologie und Jahresemission von 1997 ("Wetter"–Einfluss), Rechts: Simulation mit Meteorologie von 1997 für alle Jahre und angenommenem anthropogenem Emissionstrend (Emissionstrend-Einfluss). 34
Abbildung 25: Mittelwert der berechneten NO ₂ -Immission für den Zeitraum 1995-2003 in ppb 36
Abbildung 26: Mittelwert der berechneten O ₃ -Immission für den Zeitraum 1995-2003 in ppb 36

- Abbildung 27: Berechneter PM10-Mittelwert für den Zeitraum 1995-2003 in μ g/m³......37

_

Abbildung 29: Anomalie der Jahresmittelwerte der NO ₂ –Immission in ppb
Abbildung 30: Anomalie der Jahresmittelwerte der O ₃ -Immission in ppb
Abbildung 31: Anomalie der Jahresmittelwerte der PM10–Immission in $\mu g/m^3$
Abbildung 32: Anomalie der Jahresmittelwerte der SO $_2$ – Immission in $\mu g/m^3$
Abbildung 33: Anomalie des Jahresmittelwertes von Ozon aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts)
Abbildung 34: Anomalie des Mittelwertes von Ozon für die vier Jahreszeiten. Alle Stationen. WIN=Winter, SPR=Frühjahr, SUM=Sommer, AUT= Herbst. Alle Stationen
Abbildung 35: Anomalie des Jahresmittelwertes von NO ₂ aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts)
Abbildung 36: Anomalie des Mittelwertes von NO2 für die vier Jahreszeiten. Alle Stationen 46
Abbildung 37: Anomalie des Jahresmittelwertes von PM10 aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts)
Abbildung 38: Anomalie des Mittelwertes von PM10 für die vier Jahreszeiten. Alle Stationen 47
Abbildung 39: Anomalie des Jahresmittelwertes von SO ₂ aller Stationen (links) und der der Immissionsregimes "Land" und "Vorstadt" (rechts)
Abbildung 40: Anomalie des Mittelwertes von SO2 für die vier Jahreszeiten. Alle Stationen
Abbildung 41: Stationsübergreifender Mittelwert der Jahresmittelwerte von O ₃ , NO ₂ PM10 und SO ₂ aus der Modellrechnung RCGR und der Beobachtung OBS. Alle Stationen
Abbildung 42: Stationsübergreifender Mittelwert der Jahresmittelwerte von O ₃ , NO ₂ PM10 und SO ₂ aus der Modellrechnung RCGR und der Beobachtung OBS. Nur Land- und Vorstadtstationen. 50
Abbildung 43: Anzahl der Stationen mit Überschreitungen der Ziel- bzw. Grenzwerte für O ₃ , SO ₂ , PM10 und NO ₂ in Beobachtung (OBS) und Modellrechnung (RCG). Alle Stationen
 Abbildung 44: Anzahl der Stationen mit Überschreitungen der Ziel- bzw. Grenzwerte für O₃, SO₂, PM10 und NO₂ in Beobachtung (OBS) und Modellrechnung (RCG). Nur Land- und vorstadtstationen. Keine Überschreitungen des Grenzwertes für den NO₂-, PM10 und SO₂-, Jahresmittelwert
Abbildung 45: Verlauf der über alle Stationen gemittelten Ozonjahresmittelwerte von 1995 bis 2003 aus der Modellrechnung RCGR, aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997)
Abbildung 46: Anzahl der Stationen mit Überschreitung des 8h mittelwertbezogenen Zielwertes von Ozon (siehe Kapitel 2.7) für das Szenario RCGE (Emissionstrend mit Meteorologie von 1997) und das Szenario RCGM (jahresspezifische Meteorologie und Emission von 1997)
Abbildung 47: Verlauf der über alle Stationen gemittelten NO ₂ -Jahresmittelwerte von 1995 bis 2003 aus der Modellrechnung RCGR, aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997)
Abbildung 48: Verlauf der über alle Stationen gemittelten PM10-Jahresmittelwerte von 1995 bis 2003 aus der Modellrechnung RCGR, aus dem Szenario RCGM "Wettereinfluss" RCGM (=konstante Jahresemission 1997) und aus dem Szenario "Emissionstrendeinfluss" RCGE (=Meteorologie von 1997)

- Abbildung 60: Differenz zwischen den Jahren mit der höchsten und der niedrigsten Jahresimmission im Zeitraum 1995-2003 für NO₂ aus der Beobachtung mit allen Stationen (OBS), aus der Beobachtung nur unter Verwendung der Land- und Vorstadtstationen (OBS_r), aus der

9 Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist
Tabelle 2: Durchgeführte RCG-Modellrechnungen mit verschiedenen Kombinationen von meteorologischen Daten und Emissions-Daten. 11
Tabelle 3: Immissionsregimes nach Flemming (2003), Klassifikationskriterien: P50ME = Median des Tagesmittelwertes, P50TA = Median der normierten Tagesschwankung, Log = Logarithmische Transformation.12
Tabelle 4: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von NO ₂ aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind. 13
Tabelle 5: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von Ozon aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind
Tabelle 6: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von SO ₂ aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind. 13
Tabelle 7: Anzahl der verwendeten Jahreszeitreihen von PM10 und TSP aus Deutschland, deren Vollständigkeit größer als 85% ist für die Immissionsregimes nach Tabelle 3. ALL gibt die Anzahl der Stationen pro Regime an, die im gesamten Zeitraum mit 85% Vollständigkeit verfügbar sind
Tabelle 8 Ziel- und Grenzwerte für Ozon, PM10, NO2 und SO2 nach den EU-Richtlinien16
Tabelle 9: Jahre mit der höchsten (MAX), niedrigsten (MIN) und typischsten (BASIS) Temperatur und Windstärke für das gesamte Jahr und die einzelnen Jahreszeiten. Winter (WIN=Januar, Februar, Dezember). Frühling (SPR= März, April, Mai). Sommer (SUM= Juni, Juli, August). Herbst (AUT= September, Oktober und November). Jahr =YEAR
Tabelle 10: Jahre mit der höchsten und niedrigsten gemessenen Immission hinsichtlich des Jahresmittelwertes, des 98-Perzentiles und der Überschreitung von Grenzwerten (GW) bzw. Warnwerten (WW) (siehe Kapitel 2.7) im Zeitraum 1995-2003. Delta: Unterschied zwischen dem höchsten und dem niedrigsten Wert. Die Angaben bei den Grenzwerten sind die Anzahl der Stationen (St), an denen der Grenzwert nicht eingehalten wurde
$\begin{array}{l} Tabelle 11: Vorzeichen der Anomalien der Jahresmittelwerte für Messung (M) und Rechnung (R). \\ \mbox{Rot gekennzeichnet sind Anomalien, die weniger als 1 ppb bei Ozon und NO_2, und weniger als 1 $$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$$
Tabelle 12: Jahre mit der höchste (MAX), niedrigsten (MIN) und mittleren (BASIS) Immission hinsichtlich des Jahresmittelwertes und des 98-Perzentil des Tagesmaximums im Zeitraum 1995-2003 aus der Beobachtung (OBS), der Modellrechnung mit Emissions- und Wettereinfluss (RCGR) und der Modellrechnung unter Ausschaltung des Emissionstrend (RCGM)