

Bericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben FKZ 202 43 270 auf dem Gebiet des Umweltschutzes „Entwicklung von Modellen zur Identifizierung von Schadstoffquellen -insbesondere im Verkehrsbereich- im Rahmen der 22. BImSchV – Dokumentation, Weiterentwicklung, Validierung und Maßnahmenplanung für ein bundeseinheitliches Vorgehen“

Einfluss der Randbedingungen aus dem hemisphärischen Chemie-Transport-Modell EURAD auf das regionale Aerosol-Chemie-Transport-Modell REM-CALGRID

Andreas Kerschbaumer

Rainer Stern



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

Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10
12165 Berlin

Januar 2006

F+E-Vorhaben FKZ 202 43 270

„Entwicklung von Modellen zur Identifizierung von Schadstoffquellen -insbesondere im Verkehrsbereich- im Rahmen der 22. BImSchV – Dokumentation, Weiterentwicklung, Validierung und Maßnahmenplanung für ein bundeseinheitliches Vorgehen“

Einfluss der Randbedingungen aus dem hemisphärischen Chemie-Transport-Modell EURAD auf das regionale Aerosol-Chemie-Transport-Modell REM-CALGRID

Andreas Kerschbaumer

Rainer Stern

für:

Umweltbundesamt

II 6.1

Postfach 1406

06813 Dessau

Institut für Meteorologie

Freie Universität Berlin

Januar 2006

Berichts-Kennblatt

Berichtsnummer UBA-FB 202 43 270	2.	3.
4. Titel des Berichts Einfluss der Randbedingungen aus dem hemisphärischen Chemie-Transport-Modell EURAD auf das regionale Aerosol-Chemie-Transport-Modell REM-CALGRID		
5. Autor(en), Name(n), Vorname(n) Kerschbaumer, Andreas Stern, Rainer	8. Abschlußdatum 31. Januar 2006	
	9. Veröffentlichungsdatum 31. März 2006	
6. Durchführende Institution (Name, Anschrift) Troposphärische Umweltforschung Institut für Meteorologie Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10 D-12165 Berlin	10. UFOPLAN-Nr. UBA-F+E 202 43 270	
	11. Seitenzahl 106	
7. Fördernde Institution (Name, Anschrift) Umweltbundesamt, Wörlitzer Platz 1, D-06844 Dessau	12. Literaturangaben 46	
	13. Tabellen und Diagramme 0	
	14. Abbildungen 103	
15. Zusätzliche Angaben		
16. Kurzfassung Dieser Bericht beschreibt die Koppelung des regionalen REM-CALGRID-Modell (RCG) mit der hemisphärischen Version des EURAD-Modells. Das RCG-Modell wird normalerweise mit aus Beobachtungen und Literatur abgeleiteten seitlichen und oberen Randbedingungen betrieben. Ob die Berücksichtigung hemisphärischer oder globaler Emissionsentwicklungen für die Beurteilung der zukünftigen europäischen Luftqualität notwendig ist, wird in diesem Bericht untersucht. Die hemisphärischen EURAD-Konzentrationsverteilungen wurden ausschließlich für die seitlichen und oberen Randbedingungen des RCG-Modells verwendet. Beide Modelle wurden vollständig mit ihren eigenen Datenbasen betrieben. Als meteorologischen Treiber benutzt EURAD das prognostische MM5-Modell während das RCG-Modell eine Analyse von meteorologischen Beobachtungen verwendet. EURAD verwendet eine globale Emissionsdatenbasis mit Bezugsjahr 1995, RCG eine europäische Emissionsdatenbasis mit Bezugsjahr 2000. Die Standardversion des RCG-Modells, die klimatologische Randbedingungen verwendet, lieferte dabei die besten Resultate. Der Jahresmittelwert der Ozonstagesmaxima wird um 3% unterschätzt, die Simulation des Tagesganges mit einem Korrelationskoeffizient von 0.64 war zufrieden stellend. EURAD überschätzte den Mittelwert der Tagesmaxima um 9%. Die RCG-EURAD-Version, die als Randbedingungen die von EURAD berechneten Konzentrationen benutzt, überschätzte diesen Mittelwert sogar um 20%. Die Wahl der Randbedingungen hat also einen starken Einfluss auf die Ozonkonzentrationen. Sowohl die NO _x - als auch die Aerosolkomponenten werden in der EURAD-Simulation am Boden überschätzt. In der Höhe sind die Unterschiede zwischen den klimatologischen Randbedingungen und den aus den EURAD-Rechnungen abgeleiteten Randbedingungen für NO _x und die PM ₁₀ -Komponenten deutlich geringer als für Ozon. In den Ballungsgebieten macht sich die Wahl der Randbedingungen auf die PM ₁₀ -Konzentrationen kaum bemerkbar. Die Hintergrundwerte werden über dem Kontinent um 2 bis 2.5 µg/m ³ höher simuliert, werden die Randbedingungen aus EURAD-Rechnungen abgeleitet. Die Unterschiede der Randbedingungen von der Ist-Situation zur Situation 2010 sind bei beiden Paaren von Simulationen (RCG-Standard Ist-Zustand und 2010, RCG-EURAD Ist-Zustand und 2010) sehr viel geringer als die Unterschiede zwischen den klimatologischen Randbedingungen und den aus den EURAD-Läufen abgeleiteten Randbedingungen. Damit sind die Unterschiede in den Immissionsdeltas auch weniger auf die zeitliche Variation der Randbedingungen als auf die unterschiedlichen Konzentrationsniveaus der Basissimulationen zurückzuführen.		
17. Schlagwörter Luftschadstoffe Aerosol-Chemie-Transport-Modell Interkontinentaler Ferntransport Feinstaub, Ozon		
18. Preis	19.	20.

Report Cover Sheet

Report No.UBA-FB 202 43 270	2.	3.
4. Report Title On the influence of boundary conditions taken from the hemispheric chemistry-transport-model EURAD on the regional Aerosol-Chemistry-Transport-Model REM_CALGRID		
5. Autor(s), Family Name(s), First Name(s) Kerschbaumer, Andreas Stern, Rainer	8. Report Date 31 January 2006	
	9. Publication Date 31 March 2006	
6. Performing Organisation (Name, Address) Troposphärische Umweltforschung Institut für Meteorologie Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10 D-12165 Berlin	10. UFOPLAN-Ref. No. UBA-F+E 202 43 270	
	11. No. of Pages 106	
	12. No. of Reference 46	
7. Sponsoring Agency (Name, Address) Umweltbundesamt, Postfach 1406, D-06813 Dessau	13. No. of Tables, Diagrams 0	
	14. No. of Figures 103	
15. Supplementary Notes		
16. Abstract <p>The regional REM_CALGRID model (RCG) was coupled with the hemispherical EURAD model. RCG applications normally use observed lateral and upper boundary conditions. This report examines whether the consideration of hemispherical or global emission developments is necessary for the evaluation of the future European air quality. The hemispherical EURAD concentration field was used exclusively for the lateral and upper boundary conditions of the RCG model. Both models were operated with their own databases. As meteorological driver EURAD uses the prognostic MM5-Model while the RCG model uses an analysis of meteorological observations. EURAD uses a global emission database with year of reference 1995, RCG a European emission database with year of reference 2000. The standard version of the RCG Model, which uses climatologic boundary conditions, gave the best results. The annual average value of the ozone daily maxima is underestimated by around 3% and the simulation of the diurnal variation gives a correlation coefficient 0.64. EURAD overestimates the average value of the daily maxima by around 9%. The RCG EURAD version (RCG with boundary conditions computed by EURAD) overrated the average value circa 20%. Thus the choice of the boundary conditions has a strong influence on the ozone concentrations. Both the NOx and the aerosol components were overestimated in the EURAD simulation at the surface. In the upper levels the differences between the climatologic boundary conditions and the boundary conditions for NOx and the PM10-components, derived from the EURAD calculations, are smaller than for ozone. In densely populated areas the choice of the boundary conditions becomes less important on the PM10-concentrations. The background values are simulated over the continent around 2 to 2,5 µg/m3 higher if the boundary conditions were derived from EURAD calculations.</p> <p>The differences of the boundary conditions from the actual situation to the situation 2010 with both pairs of simulations (RCG standard actual condition and 2010, RCG EURAD actual condition and 2010) are much smaller than the differences between the climatologic boundary conditions and the boundary conditions derived from the EURAD runs.</p>		
17. Keywords Air Pollution, Aerosol-Chemistry-Transport-Model, Intercontinental long range transport, Aerosols, Ozone		
18. Price BBBB	19. BBBB	20. BBBB

Inhalt

1	Einleitung	3
2	Modellbeschreibung	6
2.1	<i>REM-CALGRID</i>	6
2.1.1	Gitterdefinition	6
2.1.2	Gasphasenchemie	6
2.1.3	Aerosolbehandlung	7
2.1.4	Meteorologie	9
2.1.5	Emissionen	9
2.1.6	Randbedingungen	10
2.2	<i>EURAD</i>	10
2.2.1	Gitterdefinition	10
2.2.2	Gasphasenchemie	10
2.2.3	Aerosolbehandlung	11
2.2.4	Meteorologie	11
2.2.5	Emissionen	11
3	Koppelung RCG-EURAD	12
3.1	<i>Einleitung</i>	12
3.2	<i>Gitterproblematik</i>	12
3.3	<i>Gasphasenmechanismus</i>	13
3.4	<i>Aerosolbehandlung</i>	14
3.5	<i>Nicht behandelte Spezies</i>	14
4	Modellauswertungen für das Basisjahr	15
4.1	<i>Modellvergleich EURAD und RCG mit Beobachtungen</i>	15
4.1.1	Ozon	16
4.1.2	NO – NO ₂	20
4.1.3	PM10-Inhaltsstoffe	23
4.2	<i>Einfluss der unterschiedlichen Randbedingungen auf die RCG-Ergebnisse – Flächenplots</i>	27
4.2.1	Ozon	27
4.2.2	NO ₂	32
4.2.3	PM10	33
4.3	<i>Vergleich zwischen den unterschiedlichen Modellversionen - Monatsmittel</i>	35
4.3.1	Ozon	35
4.3.2	NO ₂	44
4.3.3	Statistische Zusammenfassung	47
5	Szenariorechnungen 2010	52
5.1	<i>Flächenplots</i>	52
5.1.1	Ozon: „RCG-Standard“–„RCG-EURAD“ 2010 – 2001	52
5.1.2	NO ₂ : „RCG-Standard“–„RCG-EURAD“ 2010 – 2001	56

5.1.3	PM10: „RCG-Standard“– „RCG-EURAD“ 2010 – 2001	57
5.2	<i>Monatsmittel an ausgewählten Stationen</i>	58
5.2.1	Ozon	58
5.3	<i>Unterschiede in den Immissionsdeltas 2001 bis 2010</i>	62
5.3.1	Flächendarstellungen.....	62
5.3.2	Monatsmittel für Ozon an ausgewählten Stationen.....	67
5.4	<i>Bewertung</i>	71
6	Sensitivitätsuntersuchungen	73
6.1	<i>RCG nur mit den seitlichen Randbedingungen von EURAD</i>	73
6.2	<i>RCG mit Null-Randbedingungen</i>	76
6.2.1	Ozon	76
6.2.2	NO2	79
6.2.3	PM10	81
6.3	<i>Monatsmittel vs. Stundenmittel aus EURAD-Simulationen</i>	82
6.4	<i>RCG-Lauf 2010 mit EURAD-Randbedingungen 2001</i>	88
7	Zusammenfassung	90
8	Literatur	95
9	Abbildungsverzeichnis	99

1 Einleitung

Die Kenntnis von Ursachen und Quellen der Luftschadstoffe ist von größter Wichtigkeit, will man realistische Minderungsstrategien ausarbeiten. Dabei müssen lokale, regionale und auch überregionale Beiträge berücksichtigt werden. Auf der lokalen Skala hat sich gezeigt, dass der regionale und überregionale Beitrag zu den lokalen Immissionsbelastungen insbesondere bei den sekundären Schadstoffen im Größenbereich von 50% und mehr liegen kann (Kerschbaumer et al., 2005; Stern, 2006a). Der Ferntransport von Schadstoffen über unterschiedliche Distanzen kann also zu erhöhten Schadstoffkonzentrationen führen, die nicht unmittelbar mit lokalen Verursachern in Verbindung zu setzen sind. Dieser Transport kann nicht nur auf der kontinentalen sondern auch auf der hemisphärischen oder sogar der globalen Skala stattfinden. Die quantitative Bestimmung des Einflusses überregionaler und hemisphärischer Hintergrundkonzentrationen auf lokale Luftbeimengungen ist daher von größter Wichtigkeit, will man realistische Minderungsstrategien für einzelne Gebiete ausarbeiten. In den letzten Jahren ist neben den kontinentaleuropäischen Transporten vor allem auch der interkontinentale Transport von Schadstoffen in den Mittelpunkt des wissenschaftlichen Interesses gerückt. Sowohl Beobachtungen als auch Modellrechnungen haben gezeigt, dass interkontinentaler Transport

- Ozon und dessen Vorläuferstoffe,
- feine Staubpartikel,
- Versäuerungssubstanzen,
- Quecksilber
- und schwer abbaubare organische Schadstoffe

betrifft.

Vor allem auf der Nordhalbkugel kann dieser Transport wichtig für ein korrektes Verständnis der Luftkonzentrationen sowohl in Ballungsgebieten als auch in ländlichen Gegenden sein. Interkontinentaler Transport kann sowohl in der atmosphärischen Grenzschicht, als auch in der freien Atmosphäre stattfinden. Orographische Effekte sowie starke Konvektion können Luftmassen in die mittlere bis obere Troposphäre verfrachten, wo sie dann mit den großräumigen Drucksystemen transportiert werden („warm conveyor belt“). Dieses Phänomen scheint beispielsweise nach dem jetzigen Kenntnisstand der wichtigste Mechanismus für den Transport nordamerikanischer Luft nach Europa zu sein. Der Luftschadstofftransport von Europa nach Asien hingegen scheint sich eher in der atmosphärischen Grenzschicht abzuspielen¹.

Die Emissionen eines Kontinents können die Luftqualität in einem anderen Kontinent durch ein generelles Anheben der Hintergrundbelastung beeinflussen aber auch durch episodisch auftretende Transporte erhöhter Schadstoffkonzentrationen. Der Beitrag dieser interkontinentalen episodischen Schadstofftransporte ist ort-, zeit- und schadstoffspezifisch.

Bei Ozon scheint eher die allgemeine Zunahme des hemisphärischen Hintergrunds als der Beitrag einzelner Transportphänomene eine Rolle zu spielen. Die hemisphärischen Ozonkonzentrationen haben sich verglichen mit den vorindustriellen Konzentrationsniveaus um 50 bis

¹ Siehe Ergebnisprotokoll des Workshops: Hemispheric Air Pollution: Trends and Intercontinental Transport of Photo-Oxidants, Particles and their Precursors across the Northern Hemisphere (Observations, Models, Policy Implications), Bad Breisig, Germany, 7-9 October 2002, http://www.physchem.uni-wuppertal.de/PC-WWW_Site/Bad_Breisig/badbreisig_final_report.pdf.

100% erhöht und auf Basis der gegenwärtig zur Verfügung stehenden Beobachtungen kann davon ausgegangen werden, dass die mittlere hemisphärische Ozonbelastung weiter ansteigen wird. Der interkontinentale Transport von Ozon nach Europa wurde in mehreren Modellstudien untersucht. Li et al. (2002) schätzen den Beitrag nordamerikanischer Quellen zur Bodenozonbelastung in Europa im Mittel auf 2 bis 4 ppb für die Tagesmittelwerte, in extremen Transportlagen auf 5 bis 10 ppb. Derwent et al. (2002) berechneten in Zentraleuropa aufgrund des Transports von Nordamerika nach Europa eine Ozonproduktion in der gesamten troposphärischen Ozonsäule über Zentraleuropa von 10 bis 15 ppb. Der asiatische Beitrag wird zu 5 bis 7 ppb abgeschätzt. Aus der Analyse von Beobachtungen in Mace Head an der irischen Atlantikküste lassen sich im Mittel für den Winter 0.4 ppb, das Frühjahr 0.2 ppb, den Sommer 0.3 ppb und den Herbst 0.9 ppb als Transportbeitrag der nordamerikanischen Quellen identifizieren (Derwent et al., 1998).

Bei den Aerosolen und deren Vorläuferstoffen scheinen im Gegensatz zum Ozon episodisch auftretende Transportlagen den größten Beitrag zu den interkontinentalen Transporten zu liefern¹, da die hemisphärische Aerosolverteilung wegen der episodischen Emissionscharakteristik der Hauptverursacher (Waldbrände, Sandstürme) und der örtlich- und zeitlich stark variablen Wirkung der nassen Entfernung sehr viel inhomogener als die von Ozon ist. Die Abschätzung dieser Transporte ist wegen der großen Kenntnislücken im Wissenstand zur Entstehung und des Transports von Aerosolen noch sehr viel unsicherer als für Ozon. Generell ist die mittlere Lebenszeit von Aerosolen kürzer als die von Ozon (circa 1 Woche). Warneck (1988) berechnete die Verbleibdauer in der Atmosphäre von Aerosolen im Größenbereich zwischen 0.1 und 2.5 μm mit ca. 5 Tagen, im Größenbereich zwischen 2.5 und 10 μm nur noch mit ca. 1. Tag. Sehr feine Partikel (im Größenbereich von 0.01 μm) hingegen haben eine typische Verweildauer von ca. 1 Stunde in der Luft. Der Übergang in den Größenbereich von 0.1 bis 2.5 μm ist durch Koagulation stark bevorzugt. Dies bedeutet, dass vor allem feinere Partikel (0.1 – 2.5 μm) über sehr weite Distanzen mit dem Wind transportiert werden können. Feine Partikel setzen sich außerdem stark aus sekundären, nicht direkt emittierten schwefel-, stickstoff- und ammoniakhaltigen Bestandteilen sowie aus organischen Kohlenstoffverbindungen zusammen. Da die durchschnittliche Lebenszeit von Aerosolen kurz ist und da auch die gemessenen Hintergrundwerte klein sind, ist ein großer Beitrag des interkontinentalen Transports auf die regionale und lokale PM10-Luftqualität in Europa nicht zu erwarten.

Feichter (1997) hat mit dem ECHAM-Modell einen US-Sulphateinfluss von ca. 2-4% auf die europäische PM10-Gesamtkonzentration berechnet. Andere Abschätzungen gehen von einem Beitrag von circa 0.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ der US Quellen zu der europäischen PM10-Belastung aus (Bultjes, 2005). Sandstürme in der Sahara können bei entsprechenden Wetterlagen ebenfalls zur Erhöhung der Aerosolbelastung in Europa beitragen. Nach Modellrechnungen beträgt der Beitrag von Saharastaub zum PM10 im Jahresmittel circa 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, in Frühjahr circa 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Nach dem Überblick von Bultjes (2005) lassen sich in Europa von den beobachteten 15 bis 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM2.5 circa 3% auf den transatlantischen Einfluss (US Quellen und internationaler Schiffsverkehr) und circa 1 % auf asiatische Quellen zurückführen.

Die meisten kontinentaleuropäischen Modellrechnungen benutzen als seitliche und obere Randbedingungen beobachtete mittlere Konzentrationsverteilungen und in den seltensten Fällen die Ergebnisse hemisphärischer oder globaler Transportmodelle (siehe dazu van Loon et al., 2004). Mit klimatologischen Randbedingungen lassen sich Transportphänomene naturgemäß nicht abbilden, der generelle hemisphärische Anstieg der Ozonkonzentrationen kann aber berücksichtigt werden. Auch Modellrechnungen, die als Randbedingungen auf hemisphärische Modellergebnisse zurückgreifen, benutzen diese oft nur als Mittelwert über Ort und Zeit (z.B. Monatsmittel), da die hemisphärischen Modelle meistens nur eine sehr viel gröbere räumliche und auch zeitliche Auflösung liefern als die Modelle für die Europaskala.

Mit der fortschreitenden Entwicklung der Globalmodellierung gewinnt die Koppelung von Hemisphärenmodellen mit Kontinentalmodellen eine immer größere Bedeutung, da die Auswirkungen globaler Minderungsstrategien auf die regionale Luftqualität nur mit Hilfe solcher Koppelungen untersucht werden können. Der gegenwärtige Stand der Hemisphärenmodellierung ist bereits so weit fortgeschritten, dass die beobachteten interkontinentalen Schadstoffverteilungen im Mittel gut simuliert werden. Ob dieser Entwicklungsstand ausreicht, um einzelne interkontinentale Transportphänomene angemessen simulieren zu können, darf bezweifelt werden. Dazu ist die Auflösung der meisten Modelle noch zu grob und der Entwicklungsstand abgestimmter hemisphärischer und globaler Emissionsdatensätze noch zu niedrig. Bei der Aerosolmodellierung kommt noch erschwerend hinzu, dass gerade die Hauptverursacher der interkontinentalen Transporte, nämlich Waldbrände und Sandstürme, in den Modellrechnungen wegen fehlender Information über Entstehungsprozesse und Emissionsmengen nur unzureichend modelliert werden können. Zudem gibt es kaum Beobachtungen, mit deren Hilfe die Hemisphärenmodelle umfassend evaluiert werden könnten. Dies gilt insbesondere für die Simulation von Transportereignissen, die sich in den wenigsten Fällen in Messungen nachweisen lassen, da das dazu notwendige Messnetz praktisch nicht existiert.

In diesem Bericht wird die Koppelung eines Hemisphärenmodells mit einem kontinentalen Modell vorgestellt. Es wird untersucht, wie weit die Prognosen der regionalen Luftqualität in Europa von der Wahl der Randbedingungen beeinflusst werden. Das mit Unterstützung des Umweltbundesamts entwickelte REM-CALGRID-Modell (RCG), das von der europäischen bis zur urbanen Skala eingesetzt werden kann (Stern 2003; Stern et al., 2003; Stern 2004a) wurde dazu mit der hemisphärischen Version des an der Universität Köln entwickelten EURAD-Modells (RIU, 2005) gekoppelt. Beide Modelle sind dreidimensionale Gittermodelle, die alle für die Ozon- und Aerosolbildung wesentlichen physikalisch-chemischen Prozesse in stündlicher Auflösung simulieren.

Das RCG-Modell wird normalerweise mit aus Beobachtungen abgeleiteten seitlichen und oberen Randbedingungen betrieben. Diese Randbedingungen sind für alle Spezies außer Ozon zeitlich konstant gesetzt. Lediglich für Ozon werden aus einer von Logan (1998) erstellten Ozonklimatologie zeitlich (Monatsmittel) und räumlich variierende Randbedingungen benutzt. Auch für die Prognose der Auswirkungen von zukünftigen Emissionsszenarien werden die für den Ist-Zustand geltenden Randbedingungen benutzt. Damit ist es nicht möglich, hemisphärische oder globale Emissionsentwicklungen zu berücksichtigen. Ob eine solche Berücksichtigung für die Beurteilung der zukünftigen europäischen Luftqualität notwendig ist, wird ebenfalls in diesem Bericht untersucht. Dazu wurden vom EURAD-Modell gelieferte hemisphärische Schadstoffprognosen für 2010 als Randbedingungen für kontinentaleuropäische Prognoseläufe mit dem RCG-Modell verwendet.

Der Schwerpunkt des vorliegenden Berichts liegt in der Analyse des Einflusses der verschiedenen Randbedingungen auf die berechneten Bodenkonzentrationen von Ozon, den Stickoxiden und PM10. Ein Vergleich der Modellergebnisse des hemisphärischen EURAD-Modells und dem RCG-Modell wird nur soweit vorgenommen, wie es zum Verständnis der RCG-Reaktion auf die verschiedenen Rand-Antriebe notwendig erscheint.

Der vorliegende Bericht enthält im Kapitel 2 einen kurzen Überblick zu den beiden Modellsystemen einschließlich ihrer Datenbasen, Kapitel 3 beschreibt die Vorgehensweise bei der Koppelung. Kapitel 4 bis 6 beschreiben die Simulationen mit den verschiedenen Sätzen von Randbedingungen für die gegenwärtige Emissionssituation bzw. für die Situation 2010. Eine ausführliche Zusammenfassung der Ergebnisse ist in Kapitel 7 zu finden.

2 Modellbeschreibung

2.1 REM-CALGRID

An der Freien Universität Berlin (FUB), Institut für Meteorologie, wurde im Rahmen mehrerer FE-Vorhaben des Umweltbundesamts ein Modellinstrumentarium entwickelt, das den in der EU-Rahmenrichtlinie (EU, 1996) über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität sowie deren Tochtrichtlinien (EU, 1999, 2000, 2002) definierten Anforderungen an die Ausbreitungsrechnung genügt (Stern 2003, 2004a; Stern et al. 2003). Das Modellsystem ermöglicht es, die in den EU-Richtlinien definierten Luftqualitätswerte zu bestimmen. Betrachtet werden die Schadstoffe SO₂, NO_x, Benzol, Ozon, PM10 und CO.

2.1.1 Gitterdefinition

Für die in diesem Bericht beschriebenen Anwendungen wurde das RCG-Modell horizontal in einem geographischen und vertikal in einem Mischungsschichthöhen-abhängigen Koordinatensystem angewandt. Dabei wurde die Auflösung in der horizontalen Ebene auf 0,5° in West-Ost-Richtung und auf 0,25° in Süd-Nord-Richtung gewählt. Dies entspricht in mittleren Breiten ungefähr einer Auflösung von 30x30 km². Das Ausbreitungsgebiet umfasst Mitteleuropa und erstreckt sich von 10,5° West bis 30,5° Ost und von 41,75° Nord bis 62,5° Nord.

Die vertikale Schichtung ist abhängig von der Mischungsschicht. Dabei werden eine Bodenschicht konstant auf 20 m Höhe über Grund definiert, jeweils zwei variable Schichten unterhalb und oberhalb der Mischungsschichthöhe und eine konstante Modellobergrenze, die auf 3000 m Höhe über Grund festgelegt worden ist.

2.1.2 Gasphasenchemie

Das RCG-Modell wird mit einem chemischen Gasphasenmechanismus betrieben, der ein moderner Vertreter einer bestimmten Art der Klassifizierung der für die Oxidantienbildung relevanten Luftbeimengungen und deren Reaktionen ist. Der Gasphasenmechanismus ist:

- der CBM-IV (Carbon Bond-IV-Mechanismus)

Der von Systems Applications Inc. in den USA entwickelte Carbon-Bond-IV-Mechanismus (CBM-IV) ist ein "lumped-structure"-Mechanismus, bei dem die Kohlenwasserstoffe in symbolische Gruppen entsprechend den Bindungseigenschaften der C-Atome aufgeteilt werden (Gery et al., 1989). In der aktuellen RCG-Version enthält der Mechanismus die von Carter (1996) entwickelte 1-Produkt-Isopren-Chemie. Der CBM-IV-Mechanismus in RCG entspricht der im CMAQ-Modellsystem der US EPA verwendeten Form (Gipson and Young, 1999).

Als numerischer Lösung wird der QSSA-Algorithmus mit variabler Zeitschrittkontrolle verwendet. Die Implementierung des Lösers wurde direkt vom CALGRID-Modell übernommen (Yamartino et al., 1992).

2.1.3 Aerosolbehandlung

2.1.3.1 Primäres Aerosol

Primärpartikel werden chemisch nicht weiter umgewandelt und unterliegen nur dem Transport. Eingespeist werden sie im Emissionsmodul, und über vereinfachte windgeschwindigkeits- und landnutzungsklassen-abhängige Parametrisierungsansätze, um aufgewirbelten Staub zu behandeln.

2.1.3.2 Anorganisches Aerosol

Die in Stern (2003) verwendete Modellversion des RCG-Modells enthielt zur Berechnung der sekundären anorganischen Aerosole Sulfat, Nitrat und Ammonium eine leicht modifizierte Version des MARS-A-Aerosolmoduls (Binkowski und Shankar, 1995; Schaap, 2000). Zur zusätzlichen Erfassung der Aerosolkomponenten Na und Cl wurde das RCG-Modell um ein weiteres anorganisches Aerosolmodul ergänzt (Stern, 2004a). Es handelt sich um das in den USA entwickelte ISORROPIA-Modul (Nenes et al., 1998a, 1998b). Dieses Modul wurde speziell für die Bedürfnisse urbaner und regionaler Ausbreitungsmodelle auf Geschwindigkeit und Robustheit hin optimiert und behandelt folgendes Gas-Aerosolsystem:

Gasphase: NH_3 , HNO_3 , HCl , H_2O ,

Nassphase: NH_4^+ , Na^+ , H^+ , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} ,

Feste Phase: $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, NH_4HSO_4 , $(\text{NH}_4)_3\text{H}(\text{SO}_4)_2$, NH_4NO_3 , NH_4Cl , NaCl , NaNO_3 ,
 NaHSO_4 , Na_2SO_4

Damit sind in ISORROPIA alle wichtigen anorganischen Aerosolkomponenten abgedeckt. Die Anzahl der anorganischen Aerosolkomponenten, die im RCG-Modell transportiert werden, ist fünf.

2.1.3.3 Organisches Aerosol

Das organische Aerosol hat einen bedeutenden Anteil an der Gesamtaerosolmasse (Seinfeld und Pandis, 1998). Der primäre Anteil des organischen Aerosols wird direkt emittiert während der sekundäre Anteil in der Atmosphäre aus der Gasphase gebildet wird. Organische sekundäre Aerosole entstehen aus schwerflüchtigen Folgeprodukten der Oxidation biogener Kohlenwasserstoffe wie der Terpene und aus der Oxidation anthropogen emittierter Aldehyde. Die zur Simulation dieser Prozesse verfügbaren Module sind jedoch weitaus weniger entwickelt als diejenigen für die anorganischen Aerosole, da das Wissen über die Bildungsprozesse organischer Aerosole noch lückenhaft ist. Zur Beschreibung der sekundären organischen Aerosolbildung wurde das von Schell entwickelte und im EURAD-Modell (Schell et al., 2001) verwendete SORGAM-Modul in das RCG-Modell integriert. SORGAM beschreibt die Bildung sekundärer organischer Aerosole in zwei Schritten:

- Produktion schwerflüchtiger organischer Materialien aus der Oxidation reaktiver organischer Vorläufersubstanzen und
- Partitionierung des schwerflüchtigen Materials zwischen der Gas- und der Partikelphase (thermodynamisches Gleichgewicht).

SORGAM unterscheidet zwischen vier biogenen und vier anthropogenen sekundären organischen Aerosolkomponenten. Die anthropogenen Komponenten entstehen aus den Reaktionen von aromatischen Verbindungen, höheren Alkanen und höheren Alkenen. Die biogenen Komponenten beinhalten die Beiträge der Reaktionen von α -Pinen und Limonenen. Die Konzentrationen jeder Komponente werden sowohl in der Gas- als auch in der Partikelphase berechnet. Da im RCG-Modell Partikelwachstum nicht behandelt wird, wird angenommen, dass alle

sekundären Aerosole im Fein-Modus enthalten sind (PM mit Durchmesser kleiner 2.5 μm). Das SORGAM-Modul verlangt eine explizite Behandlung der organischen Komponente. Die primären organischen Emissionen werden dazu aus den Gesamtemissionen der Partikel mit Hilfe verursachergruppenspezifischer Faktoren abgeleitet und getrennt von den anderen primären Emissionen im Modell transportiert. Insgesamt müssen durch die Integration des SORGAM-Moduls 17 neue Spezies betrachtet werden.

2.1.3.4 Staubaufwirbelung

Zahlreiche Untersuchungen zeigen, dass aufgewirbelter Staub einen nicht unbeträchtlichen Anteil an der PM10-Masse haben kann. Für das RCG-Modell wurde ausgehend von den Untersuchungen von Claiborn et al. (1998) und Loosemore und Hunt (2000) ein Modul erstellt, das die Emission von aufgewirbeltem Staub auf Grund von zwei Prozessen berechnet:

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

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

Gegenwärtig werden die von Claiborn et al. (1998) vorgeschlagenen Werte für mäßig feuchte und mäßig erodierende Böden genommen und auf die Landnutzungsklassen „Ackerland“ und „unbebauter Boden“ angewandt.

2.1.3.5 Gesamtstaubermittlung

Die sekundären organischen und anorganischen Aerosole stellen nur einen Teil des PM10, das alle Partikel mit einem Durchmesser von weniger als 10 μm umfasst, unabhängig von deren chemischen Zusammensetzung, deren Entstehungsgeschichte oder deren Ursprung. Da die Aerosolbehandlung in RCG relativ einfach gehandhabt wird und viele der chemischen und physikalischen Prozesse vernachlässigt werden müssen, um den Charakter eines operationell einsetzbaren Langfristmodells nicht zu verlieren, setzt sich PM10 im Modell nur aus relativ wenigen Spezies zusammen. Die Emissionsdatenbasis liefert die primären PM10-Emissionen aufgeteilt in zwei Kategorien, PM10 gesamt und Partikel mit einem Durchmesser kleiner 2.5 μm (PM2.5). Die PM2.5-Emissionen werden mit Hilfe verursacherspezifischer Faktoren in die Untergruppen EC (Elementarer Kohlenstoff) und OC (Organischer Kohlenstoff) und den Rest (PM2.5prim) aufgeteilt. Diese Emissionen werden den vier Modellspezies PMCO = PM10 – PM2.5, EC, OC und RPM25 = PM2.5-EC-OC zugeordnet. Der photochemische Gasphasenmechanismus enthält die Gasphasenoxidation des Schwefeldioxids zu Schwefelsäure einschließlich einer einfachen Parametrisierung der Nassphasenoxidation unter Berücksichtigung der O₃- und H₂O₂-Reaktionen in der Nassphase. Das anorganische Aerosolmodul behandelt die thermodynamischen Gleichgewichtsreaktionen der Sulfat-, Nitrat-, Ammoniumaerosol-komponenten SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, sowie von Na und Cl in Abhängigkeit von Temperatur, Feuchte und den Gasphasenkonzentrationen von Salpetersäure, Ammoniak und Schwefelsäure. Die anorganischen Aerosole werden unter dem Begriff SIA zusammengefasst. Das organische Modul liefert die Konzentrationen der organischen Aerosole, die unter dem Begriff SOA zusammengefasst werden. Damit setzt sich das PM10 zusammen aus:

$$\text{PM10} = \text{RPM25} + \text{PMCO} + \text{EC} + \text{OC} + \text{SIA} + \text{SOA}.$$

RPM25, PMCO, EC und OC bezeichnen die primären Aerosole, SIA und SOA die sekundären Aerosole. Alle PM10-Komponenten werden transportiert und unterliegen der nassen und trockenen Deposition.

2.1.4 Meteorologie

Das meteorologische Daten-Aufbereitungssystem für die RCG-Anwendung ist ein großräumiges SYNOP-Interpolationsmodell. Die für die numerische Analyse benötigten geophysikalischen Eingangsdaten wie z.B. Rauigkeitslängen und Verdrängungshöhen werden als Funktion der Landnutzungsklassen bestimmt. Die meteorologischen Daten für das Untersuchungsgebiet werden von Dienststellen des Deutschen Wetterdienstes zur Verfügung gestellt und beinhalten Radiosonden- und Pilotmeldungen der synoptischen Aerologiestationen. Die meteorologischen Daten werden diagnostisch aufbereitet. Die großräumigen Analysen meteorologischer Felder über Mitteleuropa werden mit dem an der FU Berlin entwickelten, diagnostischen Analysesystem TRAMPER (Tropospheric Realtime Applied Procedures for Environmental Research) erstellt (Reimer und Scherer, 1992).

Das hier angewandte Analyseverfahren besteht im Kern aus einer statistischen Interpolation (optimum interpolation, O/I) beobachteter und abgeleiteter Feldgrößen auf isentropen Flächen am Gitterpunkt und einem physikalischen Abgleich der Felder mittels Variationsrechnung. Die Analysen werden auf isentropen Flächen mit einer Gitterweite von ca. 25 km in geographischen Koordinaten dargestellt. Der Abstand der isentropen Flächen ist der vertikalen Struktur der Atmosphäre angepasst mit hoher Auflösung in der Troposphäre und wachsendem Gitterabstand in der Stratosphäre. Die unterste Modellfläche liegt vollständig unterhalb der Topographie. In der unteren Troposphäre beträgt der Gitterabstand gleichmäßig $\Theta=1.K$ und nimmt zur Modelobergrenze in der Stratosphäre, schrittweise zu. So befinden sich ca. 15-18 Niveaus innerhalb der Troposphäre.

Durch die Wahl des isentropen Koordinatensystems und seiner recht hohen Auflösung werden insbesondere vertikal gering ausgedehnte thermische Strukturen besser wiedergegeben als in einer Standard-Druckflächenanalyse. Z.B. werden Inversionen oder allgemein die lokale Stabilität flächenhaft erfasst und ihre im Allgemeinen schräge Raumlage wiedergegeben. Druck und Temperatur unterhalb der Topographie werden mit Standardverfahren reduziert bzw. extrapoliert.

Das Analyseverfahren für einen Termin verläuft in drei Schritten:

- Erzeugung der „first guess“-Felder
- Korrektur der Gitterwerte mittels statistischer Interpolation
- Vertikaler Abgleich der Felder zur Erzeugung physikalischer Konsistenz.

Pro Tag werden zusammenhängend acht Analysen (00, 03, 06, 09, 12, 15, 18, 21 UTC) ausgeführt. Die Grundfelder für Zwischentermine, die keine ausreichende Basis an Beobachtungen aufweisen, werden durch Interpolation der nächstliegenden Termine erzeugt, wobei evtl. vorhandene Messungen örtlich berücksichtigt werden.

2.1.5 Emissionen

Emissionsdaten für die Ausbreitungsrechnungen wurden für das Basisjahr 2000 von TNO geliefert. Eine ausführliche Darstellung der Datenbasis kann in Visschedijk et al. (2005), ein Überblick in Stern (2006b) gefunden werden.

2.1.6 Randbedingungen

Die seitlichen und oberen Randbedingungen wurden für alle Spezies außer Ozon auf aus der Literatur übernommene Hintergrundwerte gesetzt. Für Ozon wurden die Randbedingungen aus der von Logan (1998) entwickelten Ozonklimatologie abgeleitet. Diese Ozonklimatologie entstand unter Verwendung aller verfügbaren Ozonsondenaufstiege aus den 90er Jahren und liefert die Monatsmittel der Ozonkonzentration vom Boden bis zu 500 mb in einer horizontalen Auflösung von 4° Breite und 5° Länge.

Sowohl Anfangs- als auch zeitlich kontinuierliche Randbedingungen langlebiger Spezies sind notwendig, um Modellläufe durchführen zu können. Konzentrationen dieser Spezies wurden von Warneck (1998), Derwent et al. (1998), Ehhalt et al. (1991), Emmons et al. (2000), Isaksen und Hov (1987), Penkett et al. (1993), Solberg et al. (1996, 2000) und Sundet (1997) übernommen.

2.2 EURAD

Kern des EURAD-System (Ebel et al., 1997a, b; Memmesheimer et al., 2003; Builtjes et al., 2003) bildet das mesoskalige meteorologische Modell MM5 und das EURAD-Chemie-Transport-Modell (EURAD-CTM). Ergänzt werden beide Komponenten durch das EURAD-Emissionsmodell EEM, das vorhandene Emissionsdaten für Rechnungen mit dem EURAD-CTM aufbereitet. Als Ergebnis liefert das Modell die zeitliche Variation und die räumliche Verteilung atmosphärischer Spurenstoffe sowohl in der Gas- als auch in der Partikelphase.

2.2.1 Gitterdefinition

Das EURAD-System benutzt ein stereopolares horizontales Gitter, dessen Koordinaten an den Eckpunkten definiert sind. Die berechneten Konzentrationen beziehen sich dagegen auf die Gittermittelpunkte. Die horizontale Auflösung der hemisphärischen EURAD-Anwendung ist 125 km sowohl in Nord-Süd, als auch in West-Ost-Richtung. Dies führt zu einer sehr starken geographischen Verzerrung im Nordpolbereich.

Die vertikale Schichtung orientiert sich an der Höhenkoordinate des amerikanischen meteorologischen Modells MM5. Die Schichtung ist eine so genannte sigma-Koordinate, ist somit druckabhängig, der Orographie im unteren Bereich angepasst und unabhängig davon in höheren Schichten. Wetterbedingte Hoch- und Tiefdruckgebiete fließen in die vertikale Schichtung ein und bestimmen somit die höhenzugeordnete Auflösung. Zu weiteren Details sei auf Feldmann et al. (2006) verwiesen.

2.2.2 Gasphasenchemie

Zur Behandlung der Gasphasenchemie wird der RADM2-Mechanismus (Stockwell et al., 1990) verwendet. Dieser umfasst 158 chemische Reaktionen und 63 gasförmige Substanzen, von denen 42 in der Atmosphäre transportiert werden. Neben den primär emittierten gasförmigen anorganischen Verbindungen (NO₂, NO, NH₃, SO₂, SO₄, CO) und 16 organischen Verbindungen (teilweise gruppiert nach ihrer Reaktivität) werden damit auch photochemisch produzierte Folgeprodukte erfasst (O₃, PAN, H₂O₂, N₂O₅, HONO, HNO₃, HNO₄).

2.2.3 Aerosolbehandlung

Zur dynamischen mikrophysikalischen Behandlung der atmosphärischen Partikel wird das Aerosolmodell MADE (Modales Aerosol-Dynamik Modell für Europa) verwendet (Ackermann et al., 1998; Friese et al., 2000; Memmesheimer, 2001). Es liefert damit für jeden Gitterpunkt des EURAD-Modells die Aerosolanzahl-Konzentration für jeden Mode und die Partikelmasse für verschiedene Aerosolspezies. Primäre Aerosolkomponenten in MADE sind elementarer Kohlenstoff und organische Aerosole im Aitken- und Akkumulationsmode, sowie anthropogene Partikel im Grobpartikelmode. Sekundäre Aerosolkomponenten in MADE sind Sulfat, Ammonium, Nitrat sowohl im Aitken- wie im Akkumulationsmode. Im Rahmen der modalen Struktur von MADE wird angenommen, dass das atmosphärische Aerosol durch mehrere Populationen dargestellt werden kann, deren Größenverteilung durch eine Log-Normalverteilung, einen so genannten Mode, angenähert werden kann. Es werden drei verschiedene Moden zur Beschreibung atmosphärischer Partikel verwendet (Aitken-, Akkumulations- und Grobpartikelmode; siehe Abbildung 2.2). Das Modell liefert damit für jeden Gitterpunkt die Aerosolanzahl-Konzentration für jeden Mode und die Partikelmasse (PM) für verschiedene Aerosolspezies:

- 1) primäre Aerosolkomponenten in MADE: elementarer Kohlenstoff und organische Aerosole im Aitken- und Akkumulationsmode. Anthropogene Partikel im Grobpartikelmode.
- 2) sekundäre Aerosolkomponenten in MADE: Sulfat, Ammonium, Nitrat sowohl im Aitken- wie im Akkumulationsmode.

Die chemische Zusammensetzung der Aerosole wird im Gleichgewichtssystem aus Sulfat, Nitrat, Ammonium und Wasser behandelt. Auch die Bildung sekundärer organischer Aerosole (SOA; Schell et al., 2001) wird im Gleichgewichtssystem behandelt (Kondensation übersättigter Dämpfe organischer Substanzen auf vorhandenen Partikeln). Aerosoldynamische Prozesse erfassen die Nukleation im Schwefelsäure/Wasser System, Kondensationswachstum, Koagulation, größenabhängige trockene und nasse Deposition und Sedimentation für Grobpartikel. Ein wesentliches Problem bei der Anwendung von CTM's stellt auch bei den Aerosolen die Verfügbarkeit geeigneter Emissionsdaten dar.

Die Bildung sekundärer organischer Aerosole wird durch das Modell SORGAM (Sekundäres Organisches Aerosol-Modul) erfasst (Schell et. al., 2001).

2.2.4 Meteorologie

Das mesoskalige MM5 dient als meteorologischer Treiber des Transportmodells (RIU, 2005).

2.2.5 Emissionen

Der für die Erzeugung der Randbedingungen für RCG gerechnete EURAD-Lauf wurde mit dem globalen Emissionskataster EDGAR3.2 (Olivier et al., 2001) gerechnet. Die Datenbasis EDGAR liefert globale Emissionsschätzungen für das Jahr 1990 für die Treibhausgase CO₂, CH₄ und N₂O und für die Vorläuferstoffe CO, NO_x, NMVOC und SO₂ sowohl auf Gebietsebene als auch auf einem 1x1°-Gitter für alle anthropogenen Quellen. In der Version EDGAR3.2 wurden die Emissionen der Treibhausgase auf den Stand von 1995 gebracht. Außerdem wurden die so genannten „Kyoto-Treibhausgase“ HFC, PFC, SF₆ mit berücksichtigt. Eine ausführliche Beschreibung wird in Memmesheimer et al. (2006) gegeben.

3 Koppelung RCG-EURAD

3.1 Einleitung

Um das hemisphärische EURAD-Modell mit dem regionalen RCG-Modell zu koppeln, mussten Anfangs- und seitliche Randbedingungen aus dem EURAD-System auf das RCG-System interpoliert werden. Dadurch wird der regionale Charakter des RCG durch überregionale Phänomene gesteuert, die mit dem Hemisphärenmodell EURAD simuliert worden sind. Da die zwei Modellsysteme sowohl unterschiedliche Geometrien als auch unterschiedliche chemische Mechanismen benutzen, mussten sie über gemeinsame Schnittstellen vereinheitlicht werden. Das Umrechnen der Geometrie birgt Interpolationsungenauigkeiten, das Verwenden von unterschiedlichen chemischen Mechanismen birgt Zuweisungsprobleme bei unterschiedlichen Spezies-Definitionen.

Beide Systeme sind eigenständige Modelle, die mit eigenen meteorologischen Treibern und eigenen Emissionsdatenbasen als Eingangsfelder betrieben worden sind. Diese Charakteristika lassen sich durch eine Schnittstelle nicht eliminieren und bilden während der Koppelung grundlegende Unterschiede. So wurden beispielsweise meteorologische Felder nicht weiter analysiert, und es wird davon ausgegangen, dass die Ausbreitungsrechnungen bei gleichen meteorologischen Bedingungen stattgefunden haben. Ein Emissionsdatenvergleich ist in Memmesheimer et al., 2005 angestellt worden.

3.2 Gitterproblematik

Das von EURAD verwendete stereopolare, äquidistante Koordinatensystem musste in das in RCG verwendete geographische System umgewandelt werden. Umrechenroutinen wurden aus dem MM5-Modellsystem übernommen. Dabei war zu berücksichtigen, dass die repräsentativen Konzentrationswerte im EURAD-System am Gittermittelpunkt berechnet worden waren, das Gitter selbst aber über die Eckpunkte definiert war. Das Interpolieren vom Gittereckpunkt auf den Gittermittelpunkt ergab vor allem im geographischen Nordpolbereich Probleme, und wurde approximativ behandelt.

EURAD verwendet in der Vertikalen ein so genanntes σ -System, das wiederum in das von RCG verwendete Höhen-Koordinatensystem umgewandelt werden musste. Auch dabei ergaben sich Näherungen, die aufgrund der nicht verwendeten EURAD-Meteorologie nicht vermieden werden konnten. Will man korrekt das σ -System in ein Höhensystem umführen, müssen Hoch- und Tiefdruckgebiete berücksichtigt werden. Da die von EURAD verwendete MM5-Meteorologie jedoch nicht mit der von RCG benutzten TRAMPER-Meteorologie übereinstimmte, wurde auf eine exakte Umrechnung verzichtet, und Mittelwerte wurden benutzt.

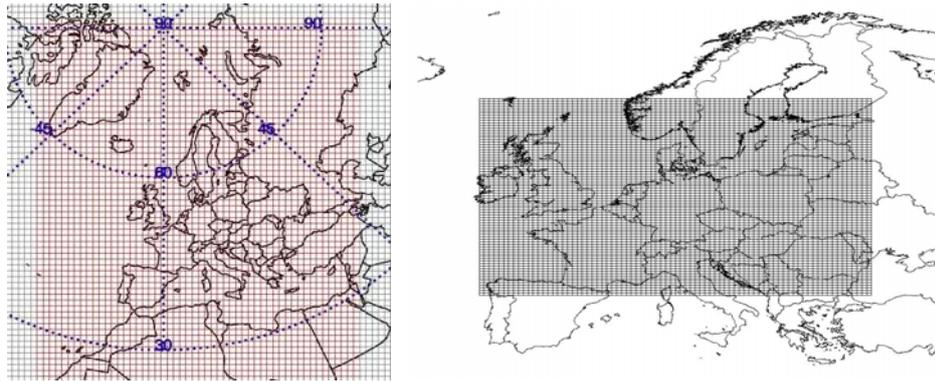


Abbildung 1: links: rot unterlegt das EURAD-Modell-Gebiet im stereopolaren, äquidistanten Gitter mit einer horizontalen Auflösung von 125 km; rechts: das geographische RCG-Gitter mit einer Auflösung von 0.5° in Ost-West-Richtung und 0.25° in Nord-Süd-Richtung.

3.3 Gasphasenmechanismus

Die zwei betrachteten Modellsysteme verwenden unterschiedliche Gasphasenmechanismen. Während EURAD RADM2 benutzt, wird in RCG der CBM4 – Mechanismus zur Integration der chemischen Reaktionen verwendet. Der CBM-IV-Mechanismus in RCG entspricht der im CMAQ-Modellsystem der US EPA verwendeten Form (Gipson and Young, 1999). Das CMAQ-Modellsystem stellt ein Umrechnenmodul von RADM2 zu CBM4 zur Verfügung, das im Rahmen dieses Projektes benutzt worden ist. Dabei wurden folgende Relationen zwischen den zwei Mechanismen benutzt:

[NO2]	=	[NO2]
[NO]	=	[NO]
[O]	=	[O3P]
[O3]	=	[O3]
[NO3]	=	[NO3]
[O1D]	=	[O1D]
[OH]	=	[HO]
[HO2]	=	[HO2]
[N2O5]	=	[N2O5]
[HNO3]	=	[HNO3]
[HONO]	=	[HONO]
[PNA]	=	[HNO4]
[H2O2]	=	[H2O2]
[CO]	=	[CO]
[SO2]	=	[SO2]
[SULF]	=	[SULF]
[PAN]	=	[PAN]
[FACD]	=	[ORA1]
[AACD]	=	[ORA2]
[PACD]	=	[PAA]
[UMHP]	=	[OP1]
[MGLY]	=	[MGLY]
[OPEN]	=	[DCB]
[CRES]	=	[CSL]
[FORM]	=	[HCHO]+*[GLY]

[ALD2]	=	1.0*[ALD]+2.0*[OLI]
[PAR]	=	0.4*[ETH]+2.9*[HC3]+4.8*[HC5]+ 7.9*[HC8]+0.8*[OLT]+0.8*[OLI]+ 3.9*[KET]
[OLE]	=	1.9*[OLT]
[TOL]	=	[TOL]
[ISOP]	=	[ISO]
[ETH]	=	[OL2]
[XYL]	=	[XYL]
[TERP]	=	[TERP]

3.4 Aerosolbehandlung

Aus dem EURAD-Lauf wurden für die feste Phase folgende Spezies an die FU übergeben:

- Sulfate
- Ammonium
- Nitrat
- Primäre anthropogene organische Kohlenstoffe
- Elementare Kohlenstoffe
- Primäre Aerosole kleiner als 2.5µm
- Primäre Aerosole in der Größenordnung zwischen 2.5µm und 10µm
-

Sekundäre organische Kohlenstoffverbindungen wurden nicht geliefert. Ein direkter Gesamt-PM10-Vergleich zwischen gemessenen PM10-Werten und von EURAD simulierten Werten war deshalb nicht möglich. Dies ist für die hiesige Fragestellung, die schwerpunktmäßig auf den Einfluss der hemisphärischen Ozonänderungen auf RCG-Szenarioergebnisse abzielt, von untergeordneter Bedeutung.

3.5 Nicht behandelte Spezies

Die 34 Spezies in der Gasphase und die 7 Spezies in der festen Phase wurden über die oben genannten Beziehungen über die Randbedingungen sowie über die Anfangsbedingungen in das RCG-System einbezogen. Damit werden Anfangs- und obere und seitliche Randbedingung für alle relevanten Stoffe aus den hemisphärischen EURAD-Modellläufen übernommen. Für alle anderen im RCG-Modell behandelten Spezies wurden weiterhin die Werte verwendet, die auch in der Standard-Version von RCG benutzt werden.

4 Modellauswertungen für das Basisjahr

Hauptbestandteil des Projektes war es, den Einfluss hemisphärischer Schadstofftransporte auf die regionale Skala zu untersuchen. Dies wurde mit der Koppelung des Hemisphärenmodells EURAD an das Regionalmodell RCG untersucht. Um relevante Aussagen über den Einfluss globaler Transportmechanismen auf Europa treffen zu können, wurden die Ergebnisse beider Modelle anhand von Messdaten überprüft. Eine detaillierte Modellevaluierung lag jedoch nicht im Sinne des Projektes.

Um die Auswirkungen der Randbedingungen auf die regionalen Schadstoffverteilungen zu analysieren, wurden Ozon, Stickoxide und Aerosole näher betrachtet. Eine der wesentlichen Anwendungsmöglichkeiten von chemischen Transportmodellen ist die Durchführung von Szenarienrechnungen. Dabei wird bei unveränderten meteorologischen Bedingungen der Einfluss veränderter Emissionen auf die Immissionsstruktur untersucht, und die Änderungen können flächenhaft beurteilt werden. Deshalb wurde vor allem der Einfluss der Randbedingungen auf die Berechnung der Änderungen der Immissionsfelder unter unterschiedlichen Emissionsregimes untersucht.

4.1 Modellvergleich EURAD und RCG mit Beobachtungen

Standardstatistiken zwischen Modellsimulationen und Beobachtungen sind erstellt worden. Dabei werden Beobachtungen mit den berechneten Konzentrationen aus dem

- RCG-Lauf mit auf klimatologischen Werten beruhenden Randbedingungen (Standardanwendung des RCG-Modells),
- RCG-Lauf mit stündlichen oberen und seitlichen Randbedingungen aus dem EURAD-Lauf (RCG-EURAD-Version), und
- EURAD-Lauf

verglichen.

Europaweite Messwerte liegen sowohl in der EMEP (<http://www.nilu.no/projects/ccc/emepdata.html>) - als auch in der AIRBASE-Datenbasis (http://air-climate.eionet.eu.int/databases/airbase/airview/index_html) vor und wurden zur Modellvalidierung verwendet.

Zur Evaluierung der Modellergebnisse wurden folgende Maße verwendet:

- Scatterdiagramme
- Zeitreihenvergleiche
- Jahres- und Monatsmittelvergleiche
- Beobachteter ($O = \text{„obs.mean“}$) und berechneter ($C = \text{„mod.mean“}$) Mittelwert:

$$O_{Mean} = \frac{1}{N} \sum_i O_i, i = 1, N; N = \text{Anzahl der Simulationsstunden, bzw. Simulationstage}$$

$$C_{Mean} = \frac{1}{N} \sum_i C_i, i = 1, N; N = \text{Anzahl der Simulationsstunden, bzw. Simulationstage}$$

- Mittlerer absoluter Fehler, MAF = „residue“:

$$MAF = \frac{1}{N} \sum_i |(C_i - O_i)|, i = 1, N$$

- Mittlerer quadratischer Fehler, MQF = „RMSE“:

$$MQF = \left[\frac{1}{N} \sum (C_i - O_i)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, i = 1, N$$

- Pearson Korrelationskoeffizient, PCR = corr.:

$$PCR = \frac{PCR_1}{\sqrt{PCR_2 PCR_3}}$$

$$PCR_1 = \sum_i (O_i - O_{Mean})(C_i - C_{Mean}), i = 1, N, PCR_2 = \sum_i (O_i - O_{Mean})^2, i = 1, N$$

$$PCR_3 = \sum_i (C_i - C_{Mean})^2, i = 1, N$$

Es ist nahe liegend, dass in einer Langzeitanwendung nicht mehr das Modellverhalten an mehreren hundert Stationen diskutiert werden kann, sondern dass man sich auf mittlere Aussagen beschränken muss. Deshalb wurden für unterschiedliche Schadstoffe nur Zeitreihenbewertungen an ausgewählten Messstationen erstellt. Da das Hauptaugenmerk auf das richtige Verhalten der Modelle gelegt wurde, wurden saisonale Unterschiede hervorgehoben und Monatsmittelwerte berechnet.

4.1.1 Ozon

Abbildung 2 zeigt die beobachteten und berechneten Ozonmittelwerte über das gesamte Jahr 2001 bzw. über die einzelnen Monate für die Messstation Mace Head in Irland. Diese Station liegt sehr nahe am westlichen Rand des Modellgebietes von RCG. Außerdem ist die Station zum größten Teil von lokalen Emissionsquellen unabhängig und spiegelt die überregionale Hintergrundkonzentration über dem nördlichen Atlantik wieder.

EURAD (dunkelrote Balken) überschätzt den Jahresmittelwert 2001 an Ozon an der Hintergrundstation um ca. 15%. Bei den Monatsmittel (Abbildung 2) wird eine allgemeine Überschätzung vor allem in der zweiten Jahreshälfte deutlich. Die erhöhten Werte im April und Mai werden von EURAD zwar gut getroffen, das allgemein simulierte Ozonniveau ist jedoch grundsätzlich zu hoch und relativiert deshalb die gute Simulation im Spätfrühling. Während die Messungen einen klaren Jahresgang deutlich werden lassen, mit hohen Werten im April und im Mai und mit niedrigeren Werten im Juli und August, ist dieser Jahresgang in den EURAD-Simulationen sehr viel geringer ausgeprägt. Die RCG-Version mit den klimatologischen Ozon-Randbedingungen (RCG Standard), simuliert den Standort Mace Head sehr viel besser als EURAD. Der Einfluss der Breitengradabhängigen und monatlich variierenden Randbedingungen lässt sich in den RCG-Simulationen für Mace Head gut wiedererkennen. Das Jahresniveau (Abbildung 1) wird sehr gut wiedergegeben (3% unterschätzt), die Monatsmittelwerte (Abbildung 2) sind während der Sommermonate etwas überschätzt, die jahreszeitliche Variabilität kommt jedoch sehr gut zum Tragen. Welchen Einfluss die unterschiedlichen Emissionsdatenbasen (Edgar-Daten, Stand 1995, bei EURAD, TNO-Daten, Stand 2000, bei RCG) bei den Modellunterschieden spielen, kann hier nicht beurteilt werden.

Es soll wiederum darauf hingewiesen werden, dass es sich hier nicht um einen Modellvergleich bzw. um eine detaillierte Modellevaluierung handelt. Da die EURAD-Ergebnisse aber

als Randbedingungen für das RCG-Modell verwendet werden, ist es unabdingbar, mindestens eine generelle Einschätzung der EURAD-Prognosequalität zu erstellen. Dies ist besonders wichtig an den Rändern des RCG-Untersuchungsgebiets, da der Ozontransport ins RCG-Gebiet bei Verwendung der EURAD-Randbedingungen von der Güte der an den Rändern simulierten Ozonwerte abhängig ist.

Abbildung 3, Abbildung 4 und Abbildung 5 zeigen Zeitreihenvergleiche zwischen beobachteten und berechneten Tagesmittelwerten an Ozon an drei verschiedenen deutschen Messstationen. Während RCG die täglichen Ozonmittelwerte in Neuglobsow und in Langenbrügge sehr gut simuliert, ist der von EURAD berechnete Ozonverlauf an der Bergstation Schauinsland vor allem im Sommer eindeutig den Beobachtungen näher als der von RCG berechnete. Es muss aber angemerkt werden, dass zum Vergleich mit den Beobachtungen beim RCG-Modell die Konzentrationen in der flachen Bodenschicht (20 m vertikale Ausdehnung) genommen wurden. Für Bergstationen sind diese Werte nicht repräsentativ. Abbildung 6 zeigt daher den Zeitreihenvergleich zwischen beobachteten und simulierten Ozontagesmittelwerten mit den RCG-Werten der 1. Modellschicht und der 5. Modellschicht. Die in der 5. Modellschicht simulierten Ozonwerte spiegeln das Ozonniveau in der Bergstation Schauinsland sehr gut wieder. Die Winterwerte werden etwas überschätzt, die Sommermaxima etwas unterschätzt. Es ist jedoch deutlich zu erkennen, dass großräumige Situationen auch mit RCG gut getroffen werden, wenn nicht die Bodenschicht, sondern eine der oberen Modellschichten über der Mischungsschicht zum Vergleich herangezogen wird, da sich Bergstationen nachts sehr häufig oberhalb der Mischungsschicht befinden.

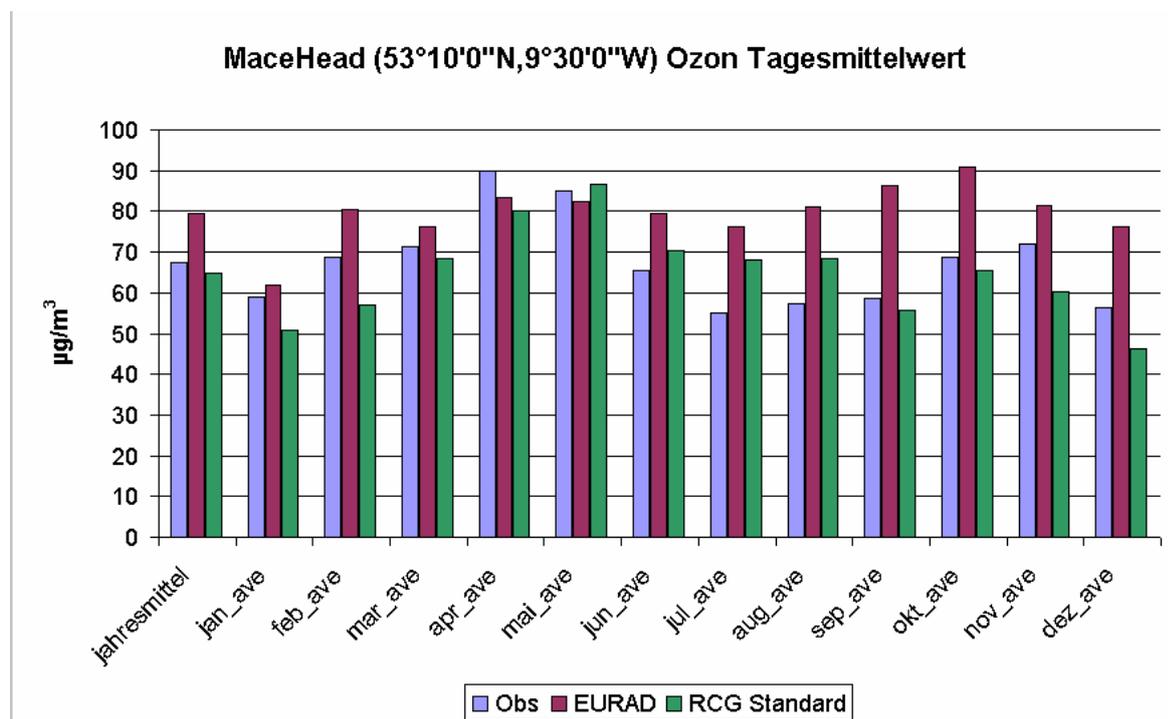


Abbildung 2 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Mace Head (Irland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG

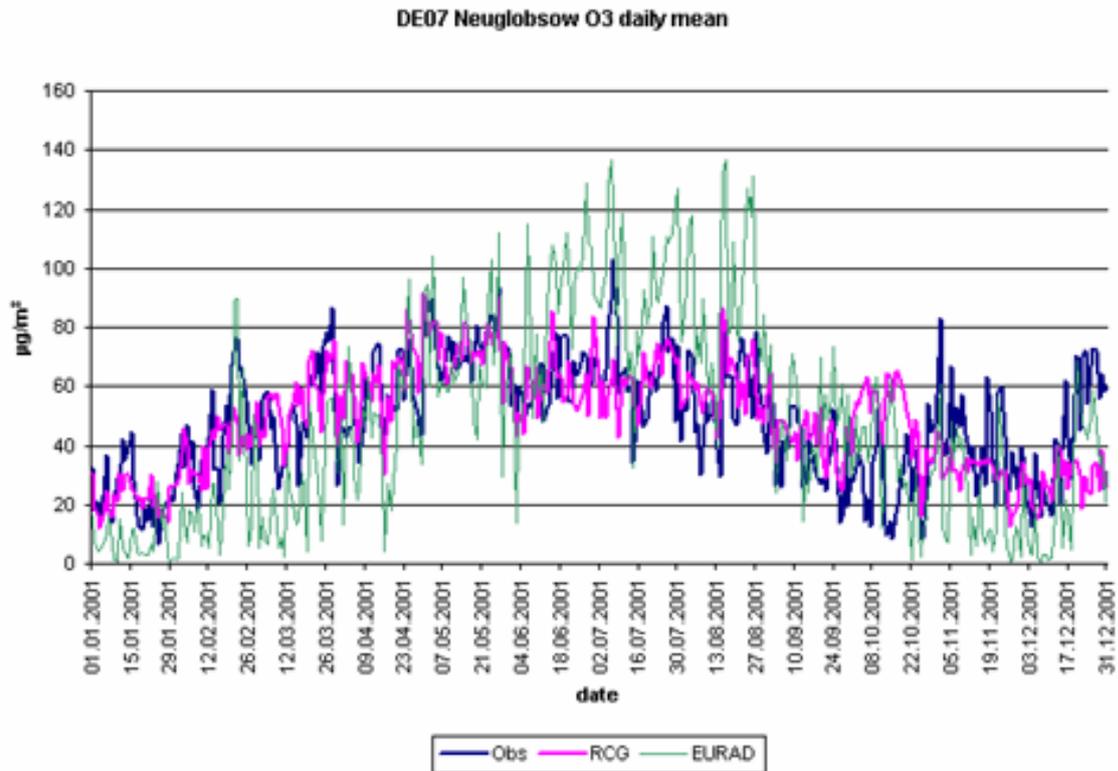


Abbildung 3 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Neuglobsow, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.

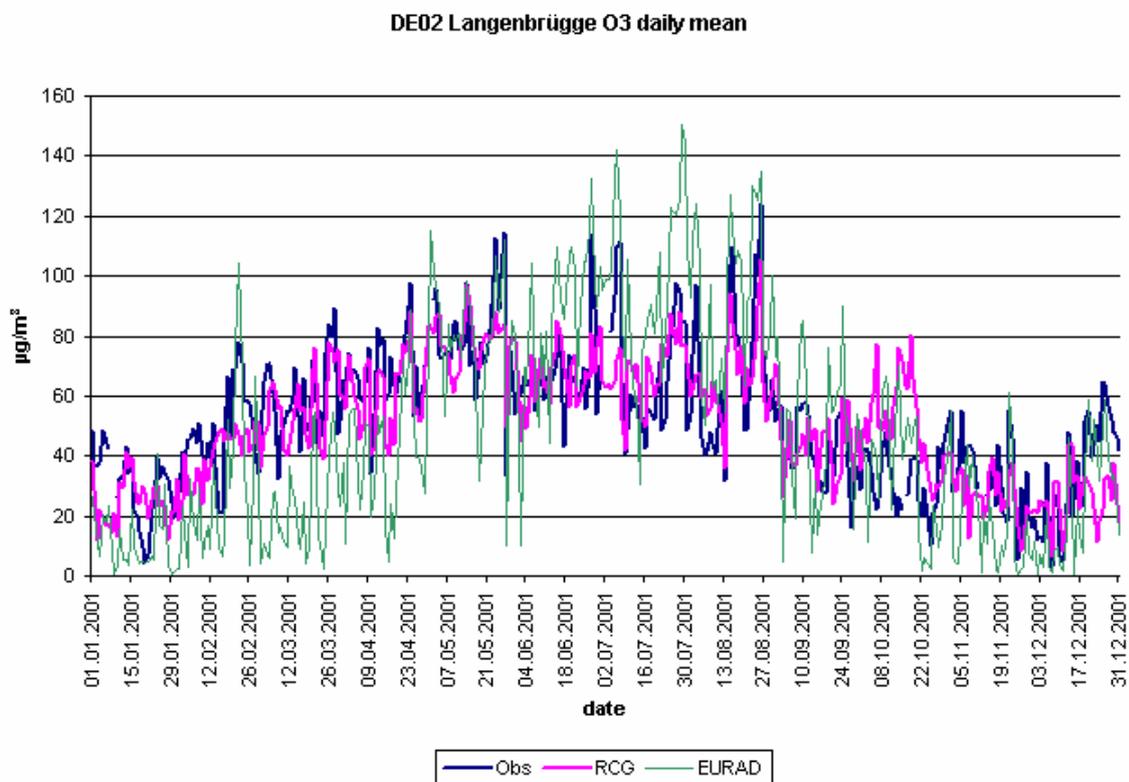


Abbildung 4 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Langenbrügge, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.

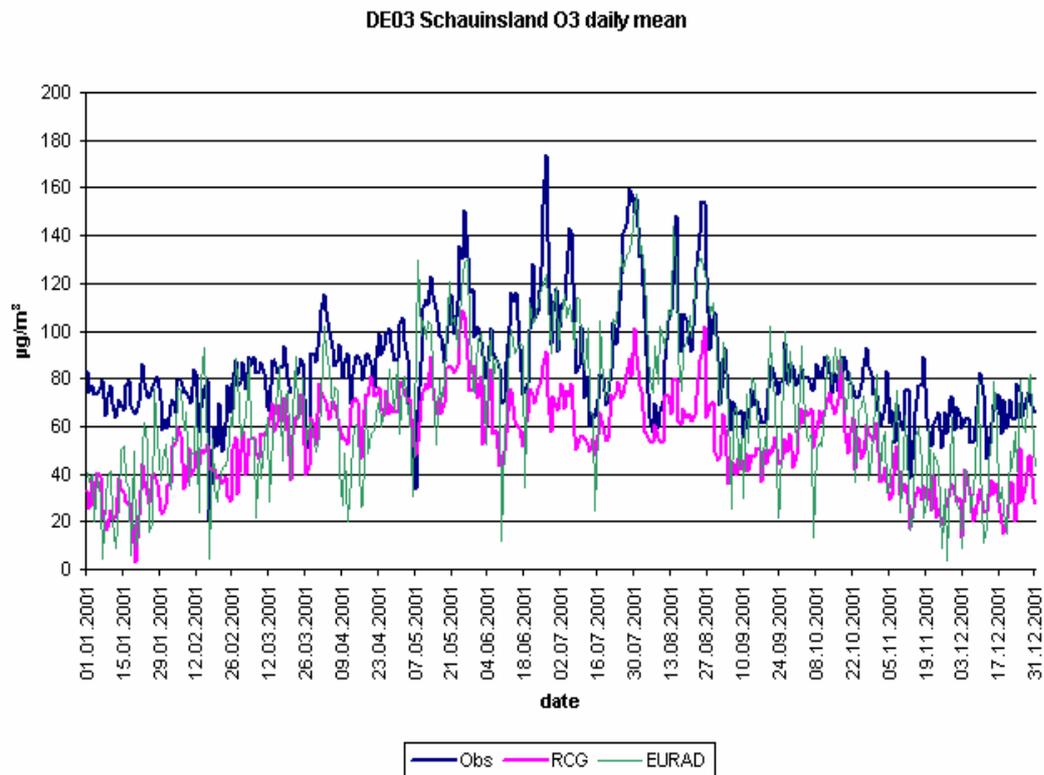


Abbildung 5 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Schauinsland, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.

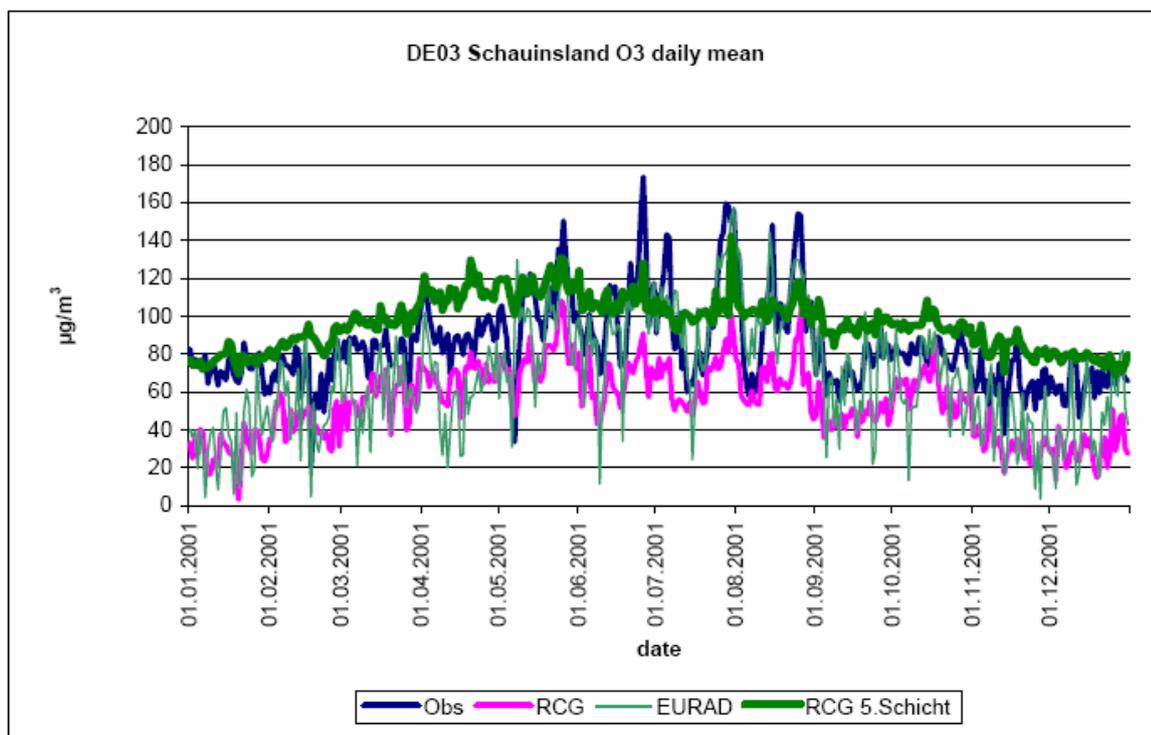


Abbildung 6 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Schauinsland, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG (1. Modellschicht); EURAD = EURAD-Modell; RCG 5.Schicht = Standardversion RCG (5. Modellschicht).

4.1.2 NO – NO₂

Für Stickoxide standen weniger Messwerte zur Verfügung als für Ozon. Deshalb werden exemplarisch eine deutsche Hintergrundstation (Melpitz) und eine niederländische Messstation (Vredepeel) vorgestellt. Es wurde auf eine Zeitreihenanalyse verzichtet und es werden nur Jahres- und Monatsmittelwerte an NO und NO₂ mit simulierten Werten verglichen.

Abbildung 7 und Abbildung 9 zeigen die beobachteten (schwarz) und simulierten (rot: EURAD, grün: RCG-Standard) NO-Werte an den beiden Messstationen. EURAD überschätzt NO sowohl in Melpitz als auch im nordseenahe Gebiet während der Wintermonate. Der beobachtete Jahresgang mit höheren Werten im Winter und niedrigeren Werten im Sommer wird von EURAD sehr stark übertrieben wiedergegeben. Warum EURAD trotz der sehr groben horizontalen Auflösung (125 km) so hohe NO-Konzentrationen liefert, kann hier nicht näher untersucht werden. Gründe müssen aber sicherlich in der Emissionsdatenbasis und möglicherweise auch in der Simulation des vertikalen Austauschs gesucht werden. RCG hingegen tendiert zu einer generellen Unterschätzung der NO-Werte in Melpitz als auch in Vredepeel. Eine solche Unterschätzung wird bei den meisten großräumigen Modellanwendungen festgestellt (van Loon et al., 2004). Die simulierten Werte liegen aber für Melpitz innerhalb $\pm 50\%$, der Jahresmittelwert in Vredepeel wird von RCG um 20% unterschätzt.

Auch NO₂ wird von EURAD sehr deutlich überschätzt (Abbildung 8, Abbildung 10). Dies ist nicht ortsabhängig noch jahreszeitabhängig. Wiederum liefert der Standard-RCG-Lauf bessere NO₂-Simulationen als EURAD. Es sei angemerkt, dass NO und NO₂ eine sehr viel kürzere Lebenszeit als Ozon aufweisen und deshalb einen sehr viel lokaleren Charakter als O₃ haben. Der Einfluss auf regionale Phänomene von NO_x über die Randbedingungen sollte deshalb sehr gering sein. Trotzdem kann ein grundlegend anderes Mischungsverhältnis zu Ozonbildungen führen, die nicht linear erklärbar sind.

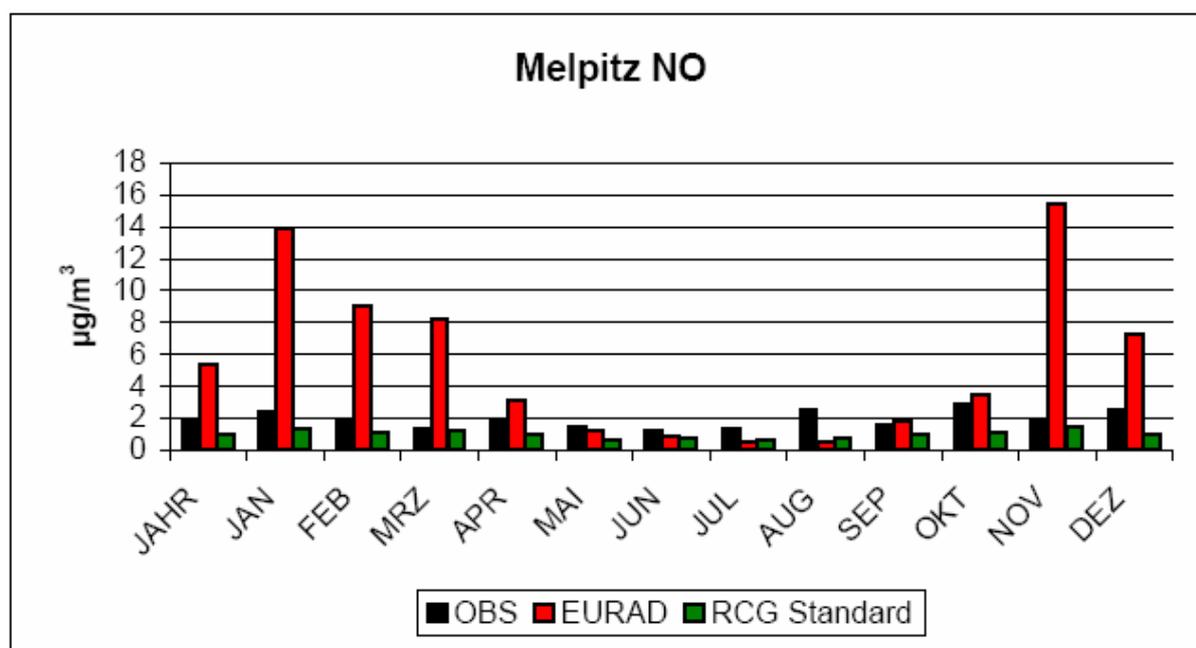


Abbildung 7 Berechnete und beobachtete NO-Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG

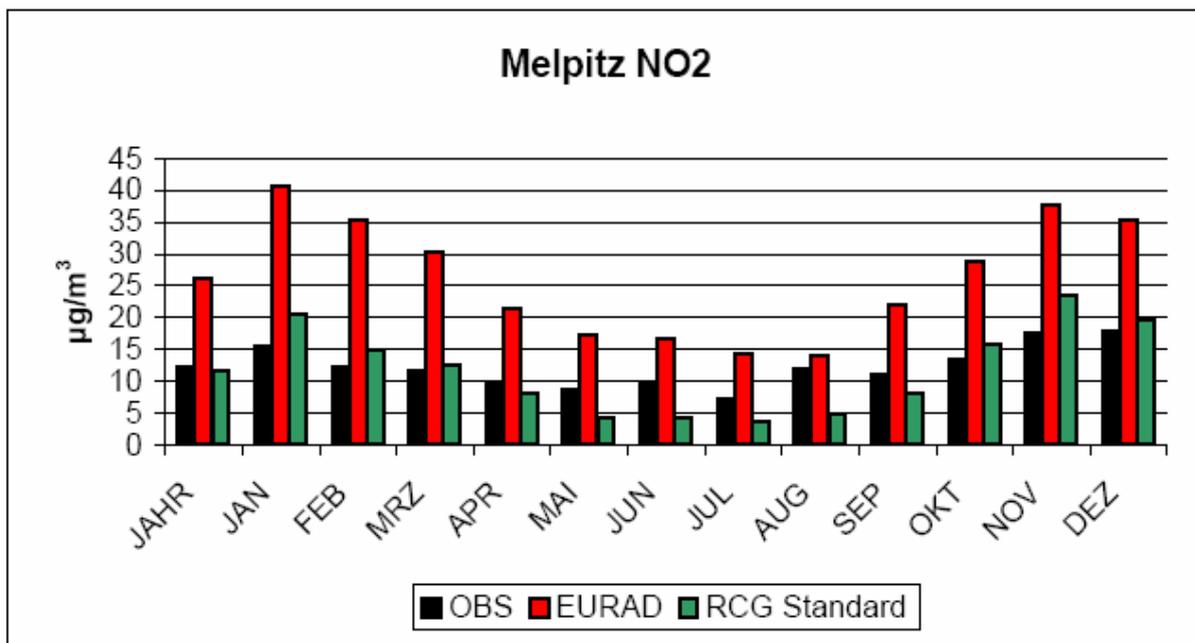


Abbildung 8 Berechnete und beobachtete NO₂-Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG

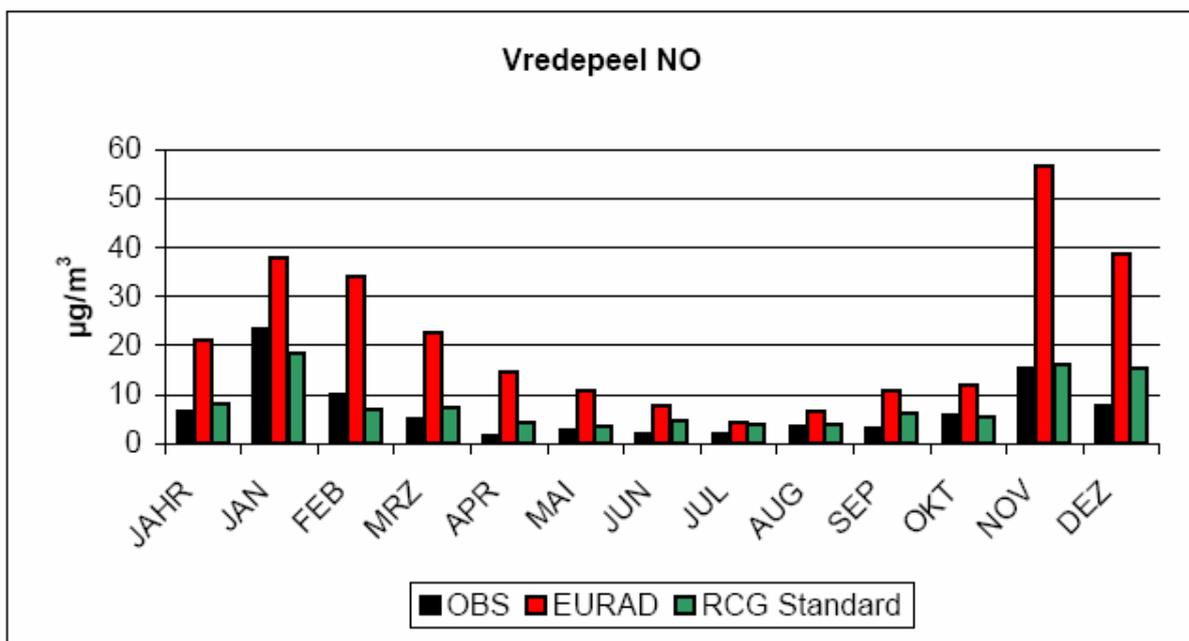


Abbildung 9 Berechnete und beobachtete NO-Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG

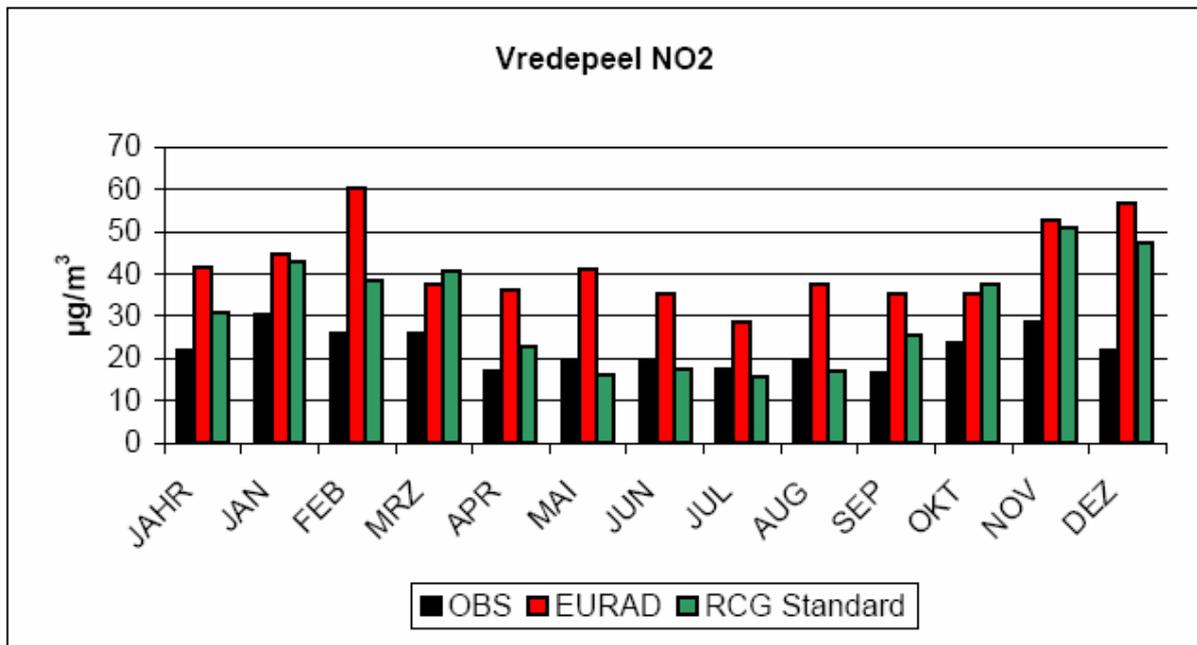


Abbildung 10 Berechnete und beobachtete NO₂-Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG

4.1.3 PM10-Inhaltsstoffe

Für einen Modellvergleich zwischen EURAD und RCG der Gesamtaerosole standen nicht ausreichend Informationen zur Verfügung. Deshalb sollen hier nur die anorganischen PM10-Anteile dargestellt werden. Die betrachtete Messstation ist Melpitz, da für diese Station alle Beobachtungen vorhanden waren. Abbildung 11, Abbildung 12 und Abbildung 13 zeigen die beobachteten und mit den Modellen berechneten NH_4 , SO_4 und NO_3 -Werte. Wie schon bei den Stickoxiden lässt sich grundsätzlich eine starke Überschätzung der anorganischen Bestandteile im Gesamt-PM10 von EURAD feststellen. Diese Überschätzung macht sich in der zweiten Jahreshälfte 2001 bei Nitrat und Ammonium stärker bemerkbar als in den Frühjahrsmonaten. SO_4 wird hauptsächlich im Winter stark überschätzt. RCG hingegen simuliert die anorganischen PM10-Bestandteile in Melpitz sehr gut. Eine Ursachenanalyse für das EURAD Verhalten kann auch in diesem Falle nicht im Rahmen dieses Berichts vorgenommen werden.

Abbildung 14, Abbildung 15 und Abbildung 16 zeigen das mit EURAD (blau) und RCG – Standard (violett) simulierte anorganische Aerosol im Jahresmittel über alle Messstationen. Wiederum wird die deutliche Überschätzung aller anorganischen Inhaltsstoffe von EURAD deutlich. Ein Vergleich zwischen simulierten und beobachteten SO_2 -Konzentrationen erhärtet den Verdacht einer veralteten Emissionsdatenbasis, in der Schwefelausstöße über Europa noch weit höher liegen als sie derzeit aufgrund der gemessenen Konzentrationen sein dürften. (Abbildung 17).

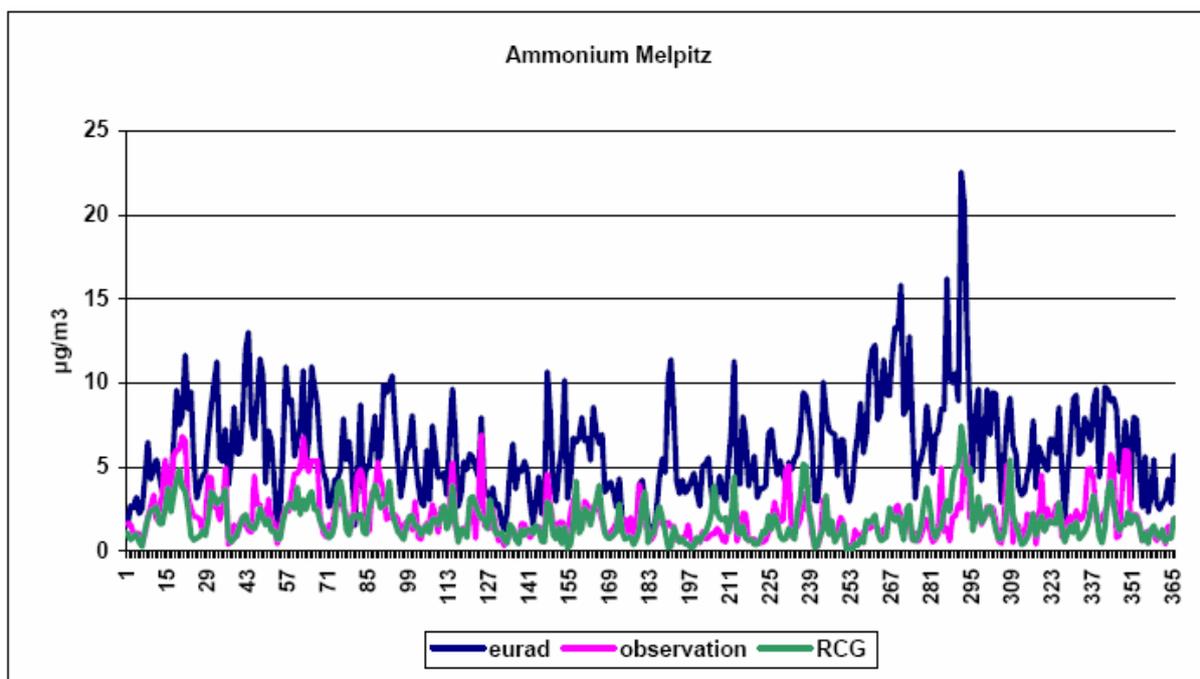


Abbildung 11 Berechnete und beobachtete Ammonium-Zeitreihe in Melpitz, 2001. Täglicher Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.

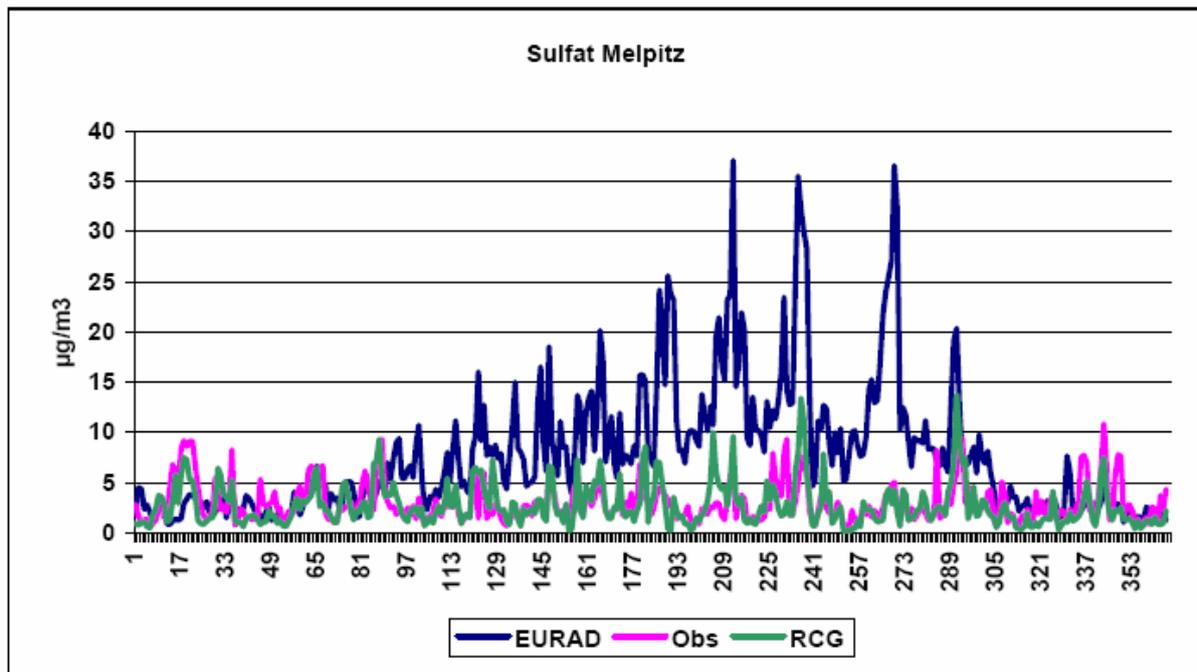


Abbildung 12 Berechnete und beobachtete Sulfat-Zeitreihe in Melpitz, 2001. Täglicher Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.

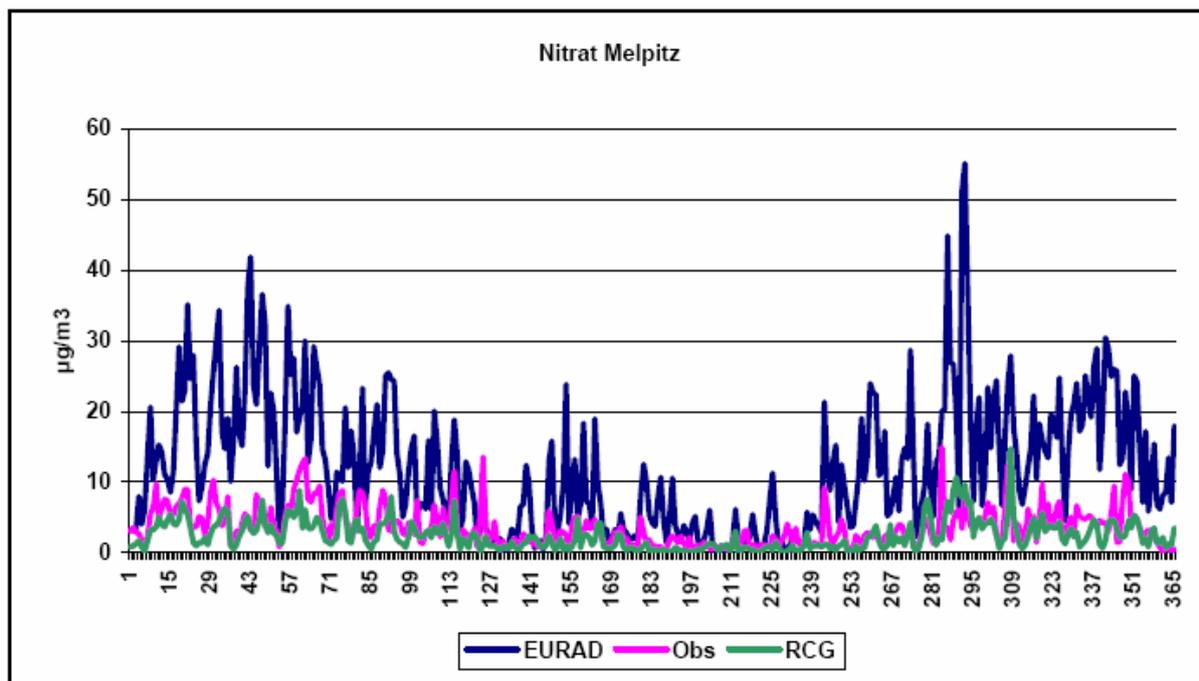


Abbildung 13 Berechnete und beobachtete Nitrat-Zeitreihe in Melpitz, 2001. Täglicher Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.

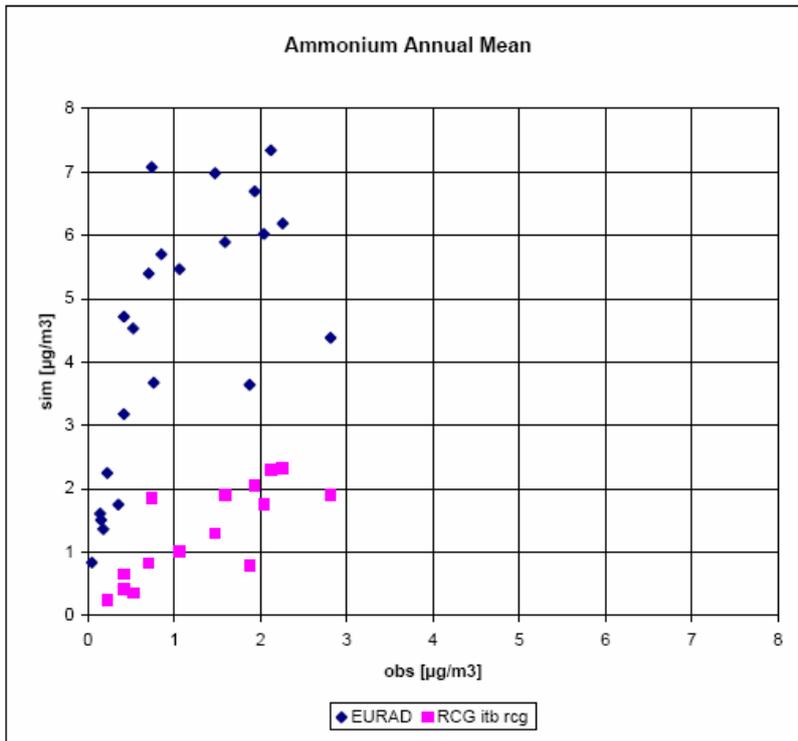


Abbildung 14 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: Ammonium

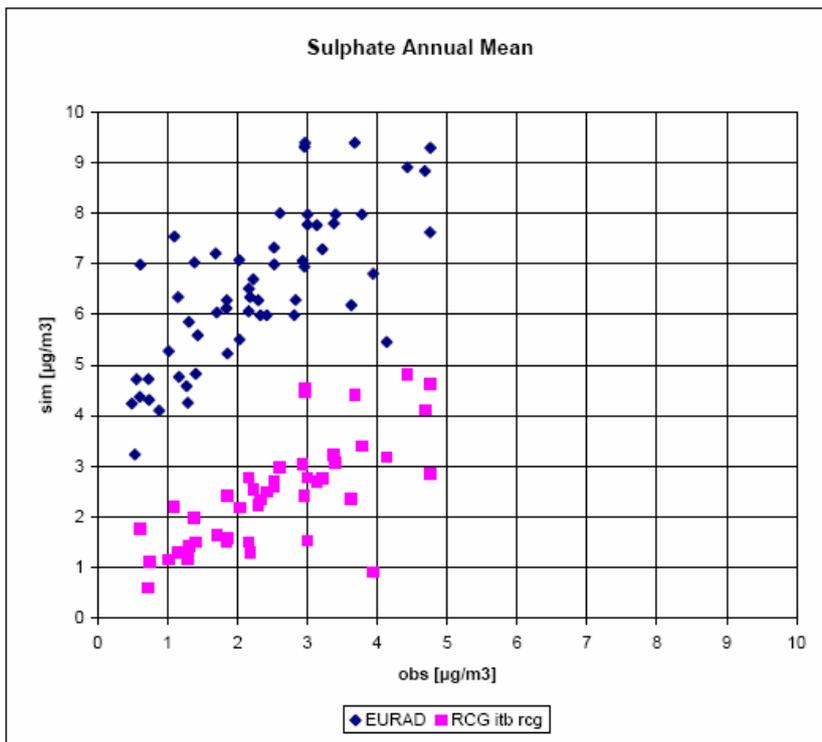


Abbildung 15 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: Sulfat

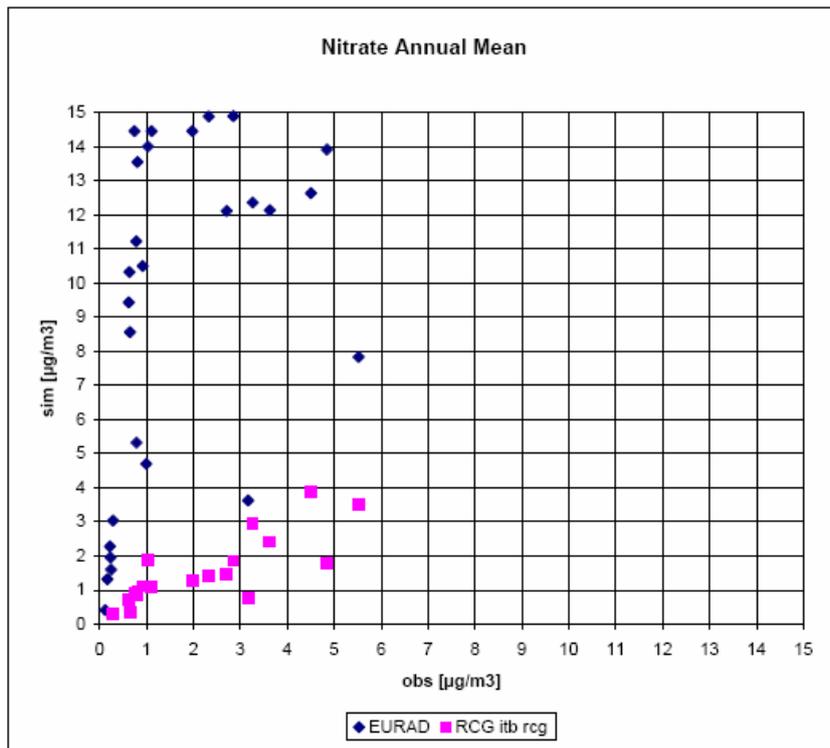


Abbildung 16 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: Nitrat

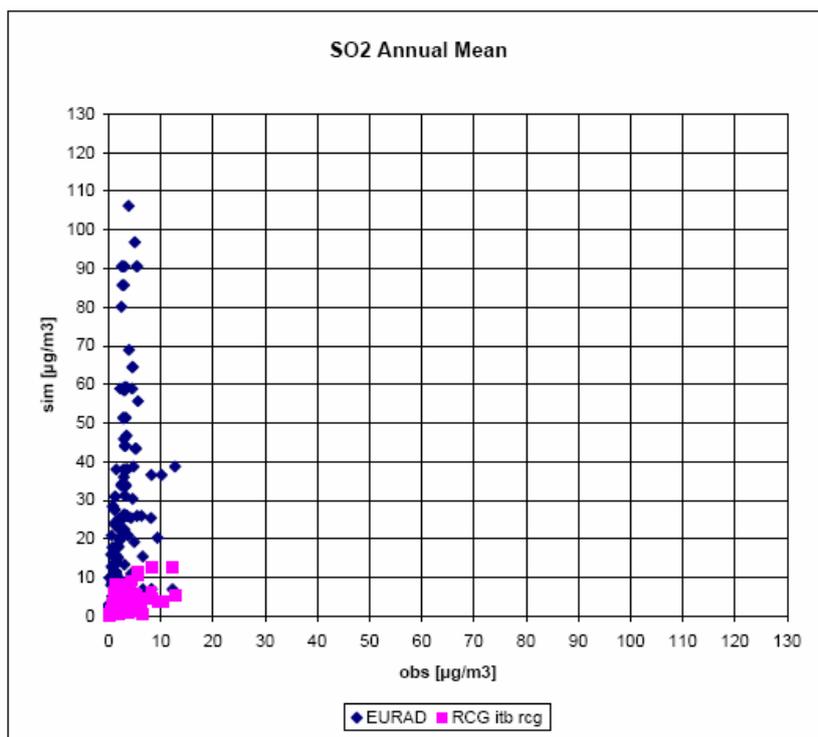


Abbildung 17 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: SO2

4.2 Einfluss der unterschiedlichen Randbedingungen auf die RCG-Ergebnisse – Flächenplots

Es sollen die flächenhaften Eigenschaften der Schadstoffe und die durch unterschiedliche Randbedingungen veränderten Charakteristika hervorgehoben werden. Dafür werden Jahresmittelwerte der mit dem RCG –Systemen berechneten Ozon-, NO₂- und PM10-Schadstoffe aus der ersten Modellschicht dargestellt. Der Einfluss der Randbedingungen ergibt sich dann aus den unterschiedlichen Verteilungen. Die untersuchten RCG-Modellversionen sind:

- Standard-RCG-Modell mit den Randbedingungen aus klimatologisch abgeleiteten, monatlichen, höhen- und Breitengradabhängigen Ozonwerten und den zeitlich invariante Werten für alle anderen simulierten Spezies,
- RCG-Modell mit den seitlichen und oberen Randbedingungen abgeleitet aus den stündlichen Ergebnissen der EURAD-Hemisphärenrechnungen (RCG-EURAD-Simulation).

4.2.1 Ozon

Abbildung 18 (links) zeigt den berechneten Jahresmittelwert 2001 an Ozon. Die Randbedingungen sind die klimatologischen Ozonwerte von Logan et al. (1998). Es lassen sich Ozonminima über den Ballungsgebieten London, Mittelengland, Paris, Niederlande und Ruhrgebiet, und Südschweden deutlich erkennen. Erhöhte Ozonwerte werden über den Meeren simuliert, über denen sehr wenig Ozon deponiert wird. Die höchsten Ozonwerte über Land werden im Süden, vor allem in Italien, simuliert. Abbildung 18 (rechts) zeigt die gleiche RCG-Ozon-Jahressimulation 2001, diesmal jedoch mit Randwerten, die aus der hemisphärischen EURAD-Simulation stammen. Es sei daran erinnert, dass EURAD eine grundsätzliche Tendenz der Ozon-Überschätzung beispielsweise in Mace Head (Irland) gezeigt hat. Das Grundmuster der Ozonverteilung über Europa ist in den zwei RCG-Modellversionen gleich: es werden aufgrund der schlechten Depositionseigenschaften von Ozon über Wasser erhöhte Ozonwerte über den Meeren und niedrigere Werte über dem Kontinent simuliert. Wiederum lassen sich O₃-Minima in Zusammenhang mit Bevölkerungsdichte und dementsprechend mit der Emissionsdichte finden, das allgemeine Ozon-Niveau ist jedoch in dieser Modell-Version sehr viel höher als in der Standard-RCG-Version. Wurden bei der Standard-Version Ozonwerte von maximal 85 µg/m³ über der Nordsee simuliert, so steigen die Werte in der mit EURAD-Randbedingungen betriebenen RCG-Version auf über 100 µg/m³. Auch über Deutschland lässt sich eine Erhöhung von durchschnittlich 10 – 15% feststellen.

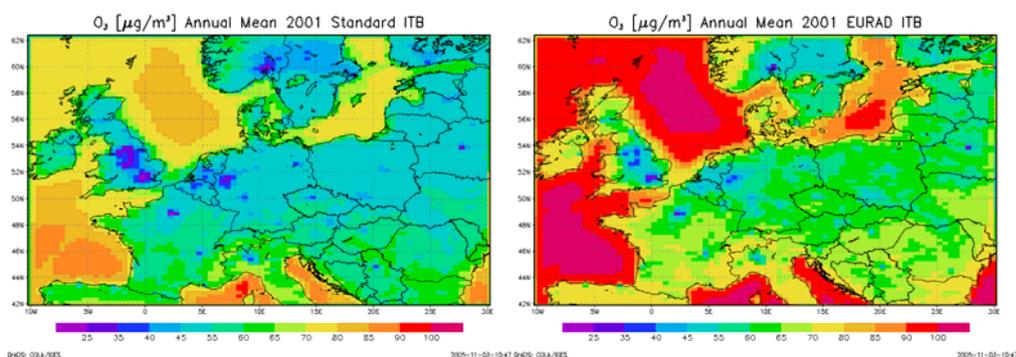


Abbildung 18 Berechnete Ozon-Jahresmittelwerte 2001 in µg/m³ mit der Standardversion RCG (links) und mit Randbedingungen aus EURAD (rechts)

Abbildung 19 und Abbildung 20 zeigen die absoluten und relativen Unterschiede zwischen den beiden RCG-Simulationen mit unterschiedlichen Randbedingungen. Über der Nordsee werden in der RCG-EURAD-Anwendung bis zu $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höhere Ozonkonzentrationen simuliert als in der RCG-Standardanwendung. Dies entspricht einer fast 20%igen Erhöhung im Jahresmittel aufgrund der Randbedingungen aus dem EURAD-Lauf. Über dem mitteleuropäischen Kontinent und über Süd-Ost-England wird mit der RCG-EURAD-gekoppelten Version zwischen 6 (in Ballungsgebieten) und $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (in ländlichen Gebieten) mehr Ozon berechnet als in der Standard-RCG-Version. Prozentual lässt sich ein verminderter Einfluss der Randbedingungen auf das Ozonjahresmittel erkennen, je weiter von der Nordsee entfernt man die Werte betrachtet. Im Sommer (Abbildung 21 absolut, Abbildung 22 relativ) werden mit der RCG-EURAD-Version in den großen europäischen Ballungsgebieten $2-6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (4-5%) mehr Ozon simuliert als mit der Standardversion. Über ländlichen Gebieten werden $4-6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (6-8%) und im Durchschnitt über Deutschland $4-6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höhere Ozonkonzentrationen aufgrund der EURAD-Randbedingungen simuliert als mit der Standardversion. Im Winter sind die Unterschiede noch größer. So werden in den Ballungsgebieten mit der RCG-EURAD-Version $4-6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (fast 50% über den Großraum London bis ins Ruhrgebiet und Paris, 30-40% in den anderen Metropolen) und über ländlichen Gebieten $11-13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (zwischen 26 und 30%) höhere Ozonkonzentrationen simuliert als mit der Standard-Version. Ein Großteil dieser Unterschiede ist dabei auf den Einfluss der oberen Randbedingung zurückzuführen. Darauf wird in Kap. 7.1 noch näher eingegangen, in dem der Beitrag der seitlichen Randbedingung getrennt diskutiert wird. Da eine Berücksichtigung des hemisphärischen und damit auch des troposphärischen Hintergrunds in einer kontinentaleuropäischen Modellanwendung aber nur über eine Modellkoppelung machbar ist, die die seitlichen und die oberen Randbedingungen umfasst, wird im Folgenden nur der Lauf betrachtet, bei dem alle RCG-Ränder mit EURAD-Ergebnissen angetrieben werden.

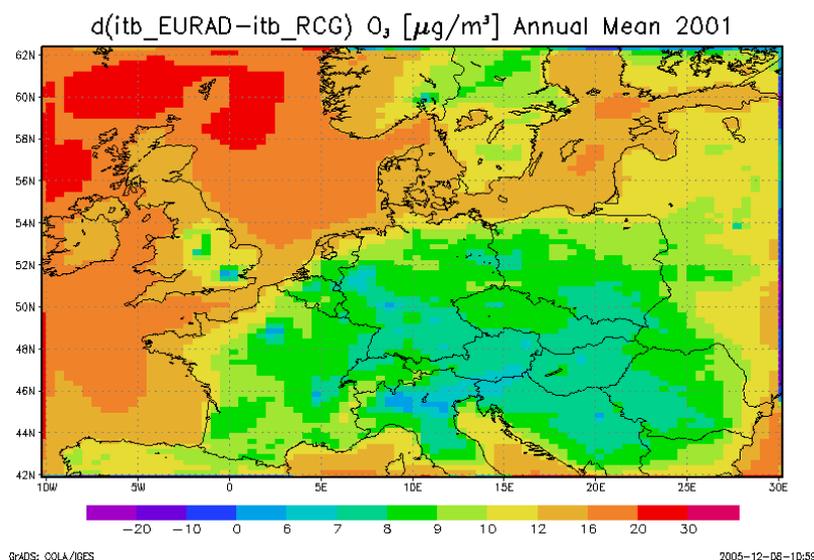


Abbildung 19 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozon-Jahresmittelwerte des Basislaufs.

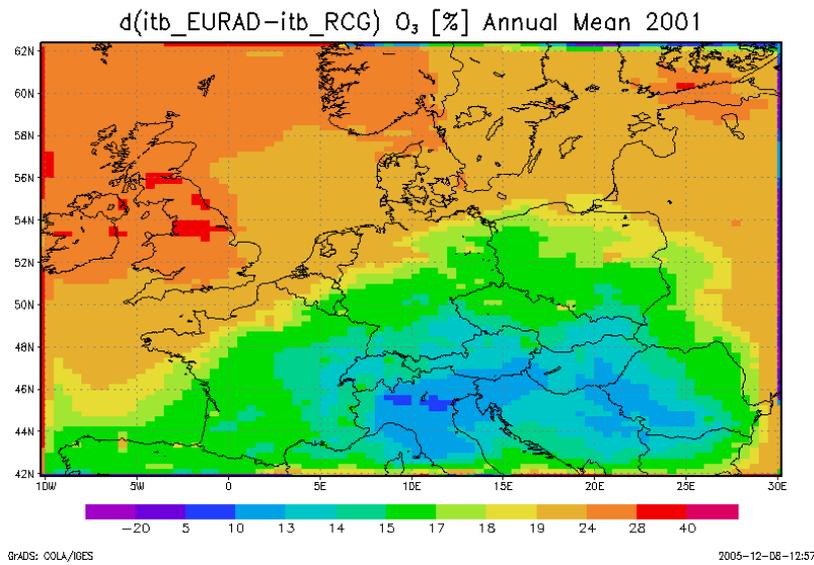


Abbildung 20 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. Jahresmittelwerte an Ozon des Basislaufs

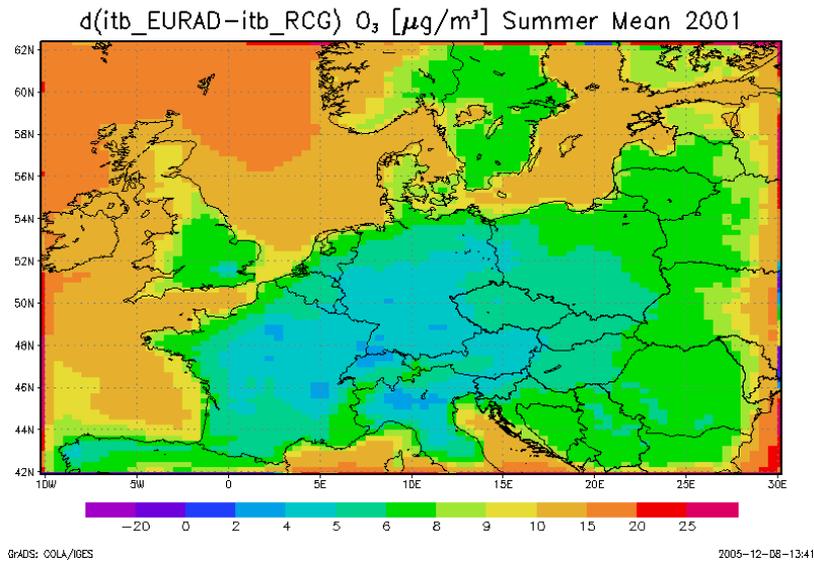


Abbildung 21 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu g/m^3$. Sommermittelwerte an Ozon des Basislaufs

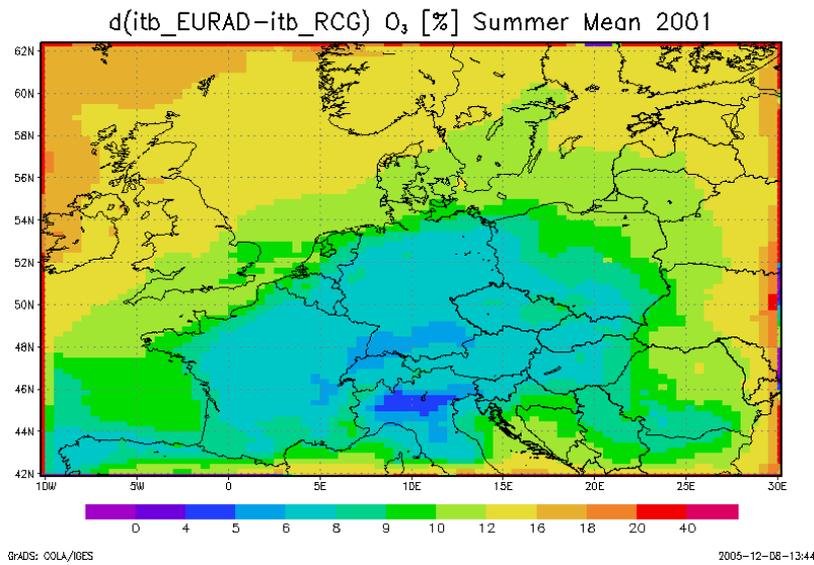


Abbildung 22 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. Sommermittelwerte an Ozon des Basislaufs

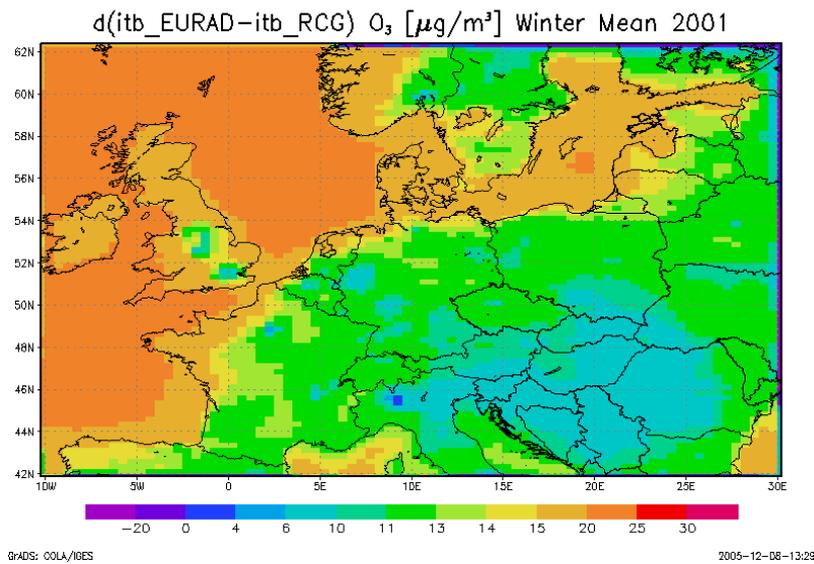


Abbildung 23 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Wintermittelwerte an Ozon des Basislaufs

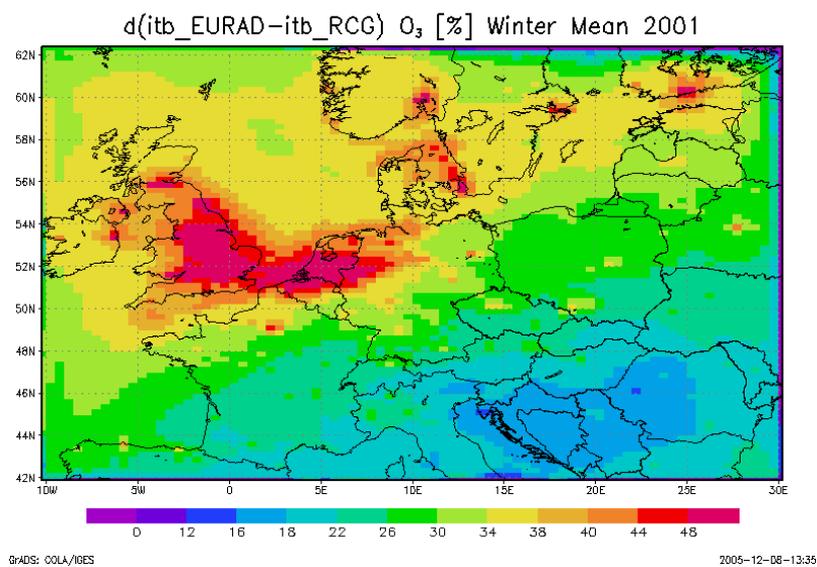


Abbildung 24 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Wintermittelwerte an Ozon des Basislaufs

4.2.2 NO₂

Abbildung 25 zeigt die simulierten NO₂-Jahresmittelwerte, zum einen mit der Standard-Version, zum anderen mit der über EURAD-Randbedingungen gesteuerten RCG-EURAD-Version. Die Unterschiede zwischen den zwei Versionen sind sehr viel geringer als bei der Ozon-Simulation. Dies lässt sich auf die kürzere Lebenszeit von NO₂ im Vergleich zu O₃ zurückführen, d.h. die Konzentrationsverteilung wird im Wesentlichen durch die Emissionsverteilung im Modellgebiet bestimmt und weniger durch die Randbedingungen beeinflusst, die für die Stickoxide zudem sehr viel niedriger sind als für Ozon. Die Maxima werden über den europäischen Ballungsgebieten simuliert, wobei Mailand und Paris die am stärksten belasteten Gebiete sind.

Die unterschiedlichen Einflüsse der Randbedingungen machen sich bei NO₂ nur in den Ballungsgebieten Europas bemerkbar, in denen Unterschiede zwischen 2 und 6 µg/m³ (zwischen 6 und 16%) simuliert werden, wobei wiederum die höheren Werten mit der RCG-EURAD-Version berechnet werden (siehe Abbildung 26 und Abbildung 27). Die Unterschiede zwischen den seitlichen und oberen NO_x-Randbedingungen von EURAD und RCG-Standard sind gering und liegen im Winter im Mittel unter 0,5 µg/m³, im Sommer nahe bei Null (nicht abgebildet). Die im Vergleich zum RCG deutlich höheren NO₂-Konzentrationen der EURAD-Simulation am Boden (siehe Kap. 4.1.2) haben also nichts mit dem NO_x-Konzentrationsniveau in der Höhe zu tun. Der starke Einfluss der EURAD-Randbedingungen auf die NO₂-Konzentrationen in den Ballungsgebieten ist ein indirekter Effekt, der durch die großen Unterschiede in der seitlichen und oberen Ozon-Randbedingung bewirkt wird. Die hohen Ozonkonzentrationen der RCG-EURAD-Simulation am oberen Rand werden durch Vertikaltransport zum Boden verfrachtet und bewirken dort eine Verstärkung des Titrationseffekts, der zu höheren NO₂-Konzentrationen führt. Die Unterschiede in den NO₂-Jahresmittelwerten werden daher auch vor allem in den Wintermonaten erzeugt, wenn die photochemische Aktivität gering ist und die NO₂-Bildung verstärkt über die Reaktion von NO mit Ozon erfolgt. Da der Titrationseffekt nur in Gebieten mit hohen NO_x-Emissionen wirkt, sind die NO₂-Unterschiede zwischen der RCG-EURAD- und der RCG-Standard-Version in ländlichen Regionen gering.

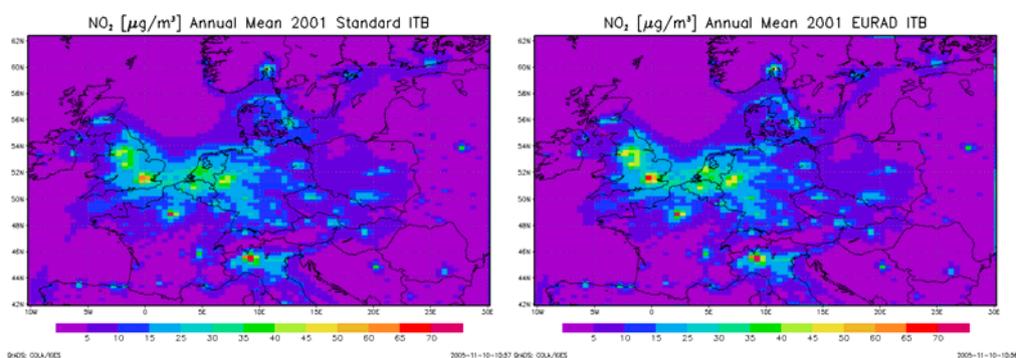


Abbildung 25 Berechnete NO₂-Jahresmittelwerte 2001 in µg/m³ mit der Standardversion RCG (links) und mit der RCG-EURAD-Version (rechts)

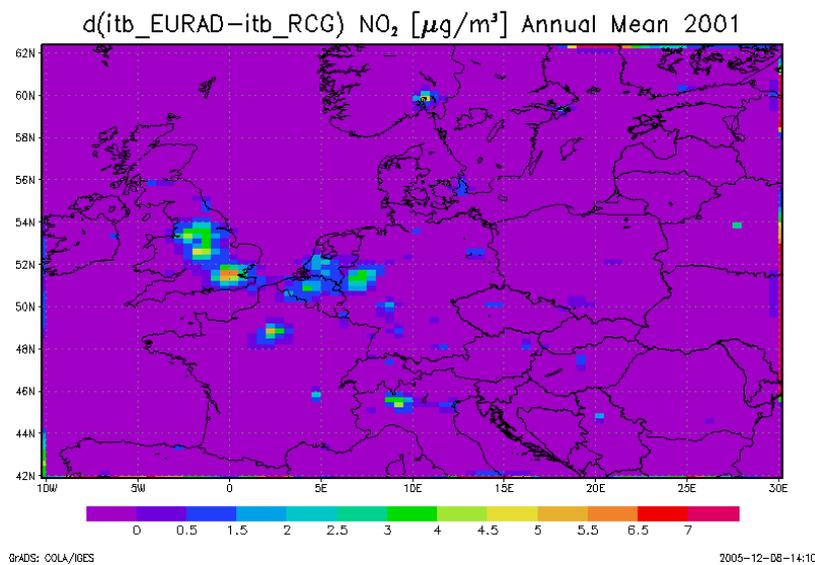


Abbildung 26 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. NO₂-Jahresmittelwerte des Basislaufs.

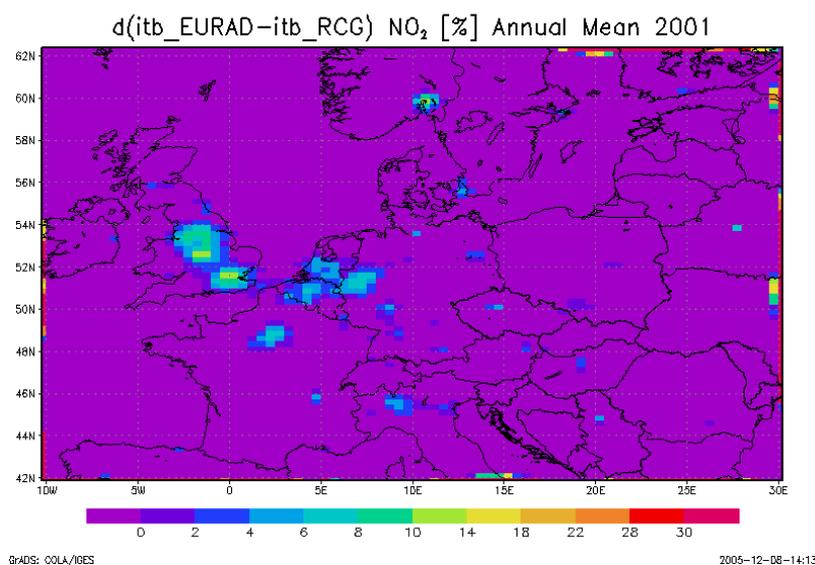


Abbildung 27 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. NO₂-Jahresmittelwerte des Basislaufs

4.2.3 PM10

Abbildung 28 zeigt die PM10-Jahresmittel, simuliert mit der RCG-Standard-Version und mit der gekoppelten RCG-EURAD-Version. Auch für PM10 ist der Einfluss der Randbedingungen geringer als für Ozon, aber außerhalb der Ballungsräume höher als für NO₂. Höhere simulierte Werte werden nahezu überall über dem Kontinent berechnet, wenn das RCG-Modell mit EURAD-Randbedingungen betrieben wird. Auch bei den PM10-Komponenten sind die EURAD-Konzentrationen sehr hoch (siehe Kap. 4.1.3), was den hohen Einfluss der EURAD-Randbedingungen erklärt. Der flächenhafte, im Gegensatz zum NO₂ nicht auf die Ballungsgebiete beschränkte Einfluss der EURAD-PM-Randbedingungen ist auf den hohen Beitrag der sekundären Aerosole am Gesamt-Aerosol zurückzuführen.

Der Vergleich der zwei RCG-Versionen zeigt, dass die Hintergrund-PM10-Werte durchschnittlich um über 15% höher simuliert werden, werden Randbedingungen aus dem EURAD-Lauf im RCG-System benutzt (Abbildung 30). In den Ballungsgebieten macht sich der Einfluss der Randbedingungen auf die PM10-Konzentrationen kaum bemerkbar, was auf den hohen Eigenbeitrag dieser Gebiete zum Gesamt-PM10 hinweist. Die Hintergrundwerte werden über dem Kontinent um 2 bis 2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ höher simuliert, werden die Randbedingungen aus EURAD-Rechnungen abgeleitet (Abbildung 29). Es muss aber nochmals betont werden, dass EURAD die beobachteten Aerosole zum Teil kräftig überschätzt.

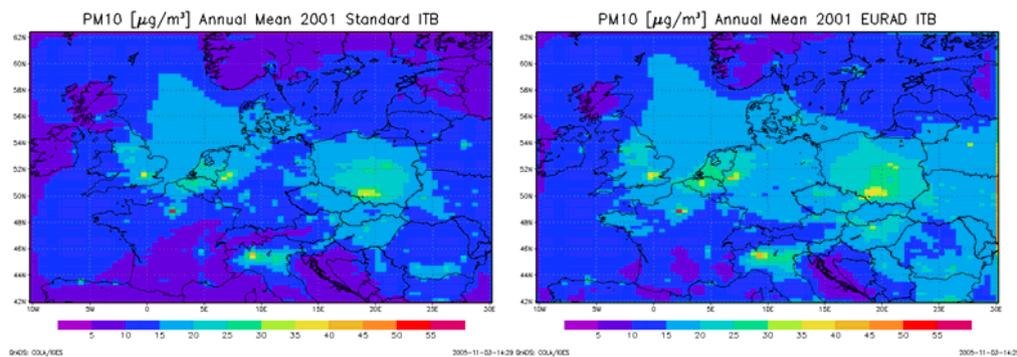


Abbildung 28 Berechnete PM10-Jahresmittelwerte 2001 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit der Standardversion RCG (links) und mit der RCG-EURAD-Version (rechts)

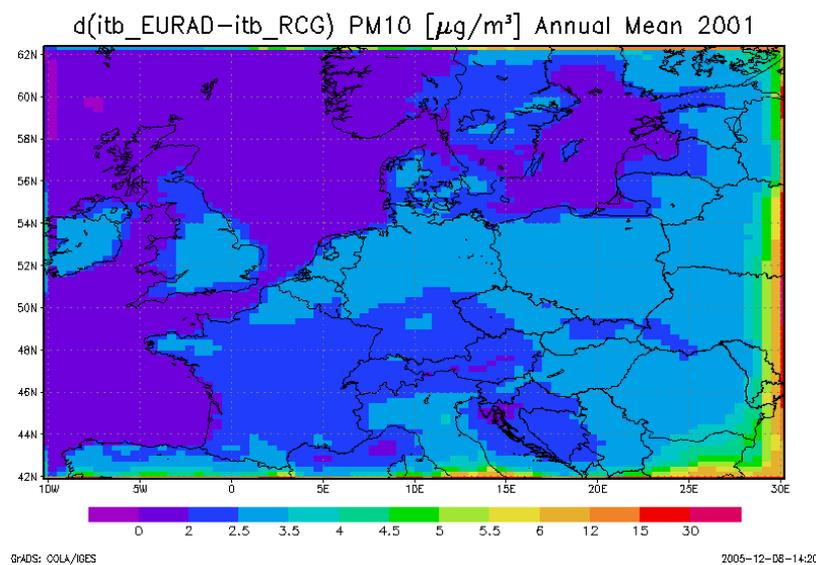


Abbildung 29 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Jahresmittelwerte an PM10 des Basislaufs

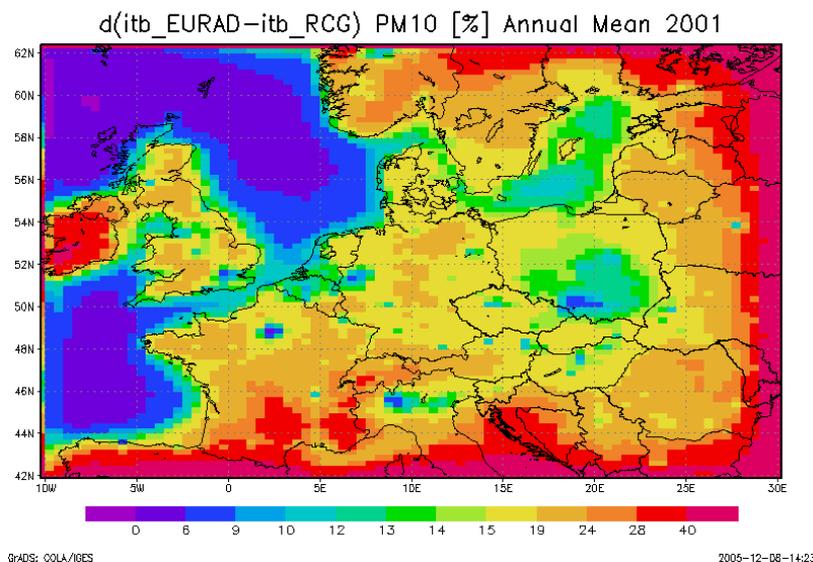


Abbildung 30 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. Jahresmittelwerte an PM10 des Basislaufs

4.3 Vergleich zwischen den unterschiedlichen Modellversionen - Monatsmittel

4.3.1 Ozon

Um den Einfluss der Randbedingungen auf die Ozonsimulation zu verdeutlichen, wurden vier Messorte in Gebieten in der Nähe der Ränder des Simulationsgebietes von RCG genauer untersucht (Abbildung 31 bis Abbildung 34). Mace Head in Irland repräsentiert den westlichen Einfluss, Cabo de Creus (Spanien) den südlichen, Shepeljovo in Russland den östlichen und Osen (Norwegen) den nördlichen. Es sei daran erinnert, dass die Standard-Version RCG mit Randbedingungen läuft, die aus langjährigen Ozonmessungen stammen. Die Ozonklimatologie wurde breitengrad-, höhen- und monatsabhängig erstellt und fließt so in die Randbedingungen von RCG ein. Eine gute Simulation der Randzellen durch die Standardversion RCG bedeutet dementsprechend, dass die aktuellen Ozon-Werte in den Randgebieten den klimatologischen Werten ähnlich sind. Es soll deshalb das Augenmerk auf die EURAD-Simulation und auf die RCG-EURAD-gekoppelte Version gelegt werden.

Mace Head in Irland zeigt maximale Ozonwerte im April und Mai 2001. Diese Werte werden von EURAD gut simuliert. War Standard-RCG in Mace Head während dieser beiden Monate etwas unterhalb der Messungen, so werden die Simulationen durch die EURAD-Steuerung besser. Die mit EURAD angetriebenen RCG-Ozon-Simulationen sind generell höher als die der Standard-Versionen. Wie schon ausgeführt, überschätzt EURAD die monatlichen Ozon-Werte in Mace Head für alle übrigen Monate. Die Standard-RCG-Simulationen sind außer im Sommer alle etwas zu niedrig, unter Verwendung der EURAD-Randbedingungen sind sie deutlich höher und oft sogar höher als die EURAD-Simulationen. Dieses Phänomen ist auch in den übrigen Randgebieten feststellbar.

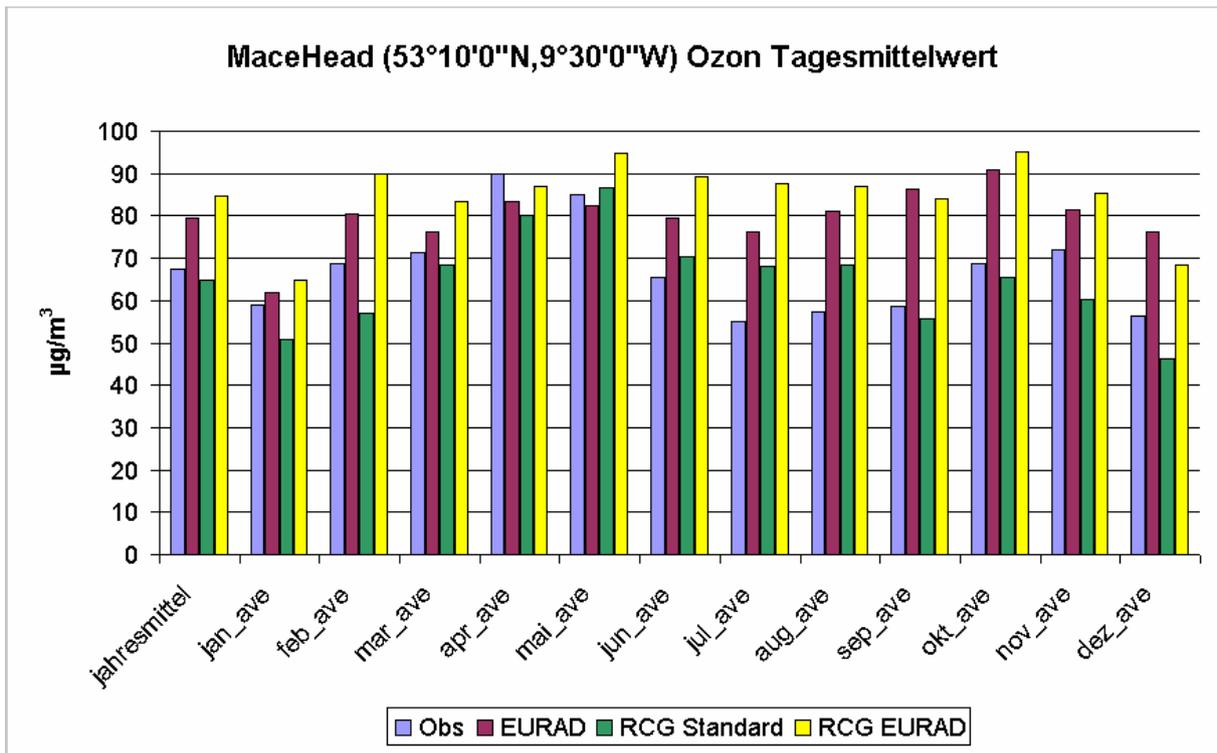


Abbildung 31 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Mace Head (Irland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

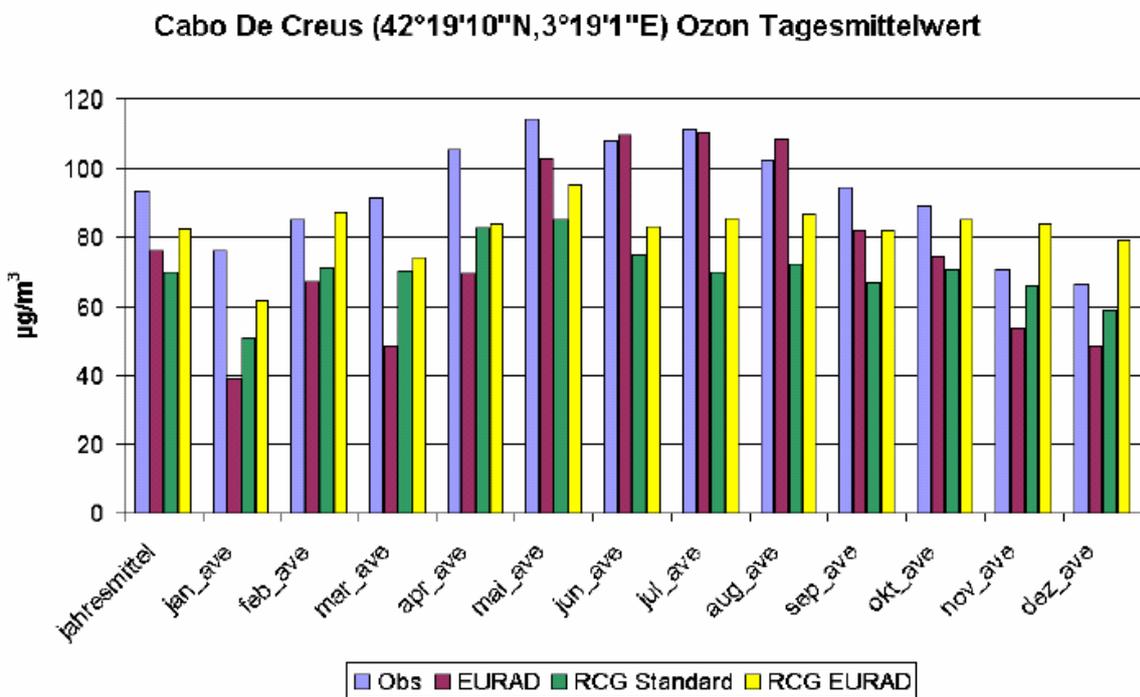


Abbildung 32 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Cabo de Creus (Spanien) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

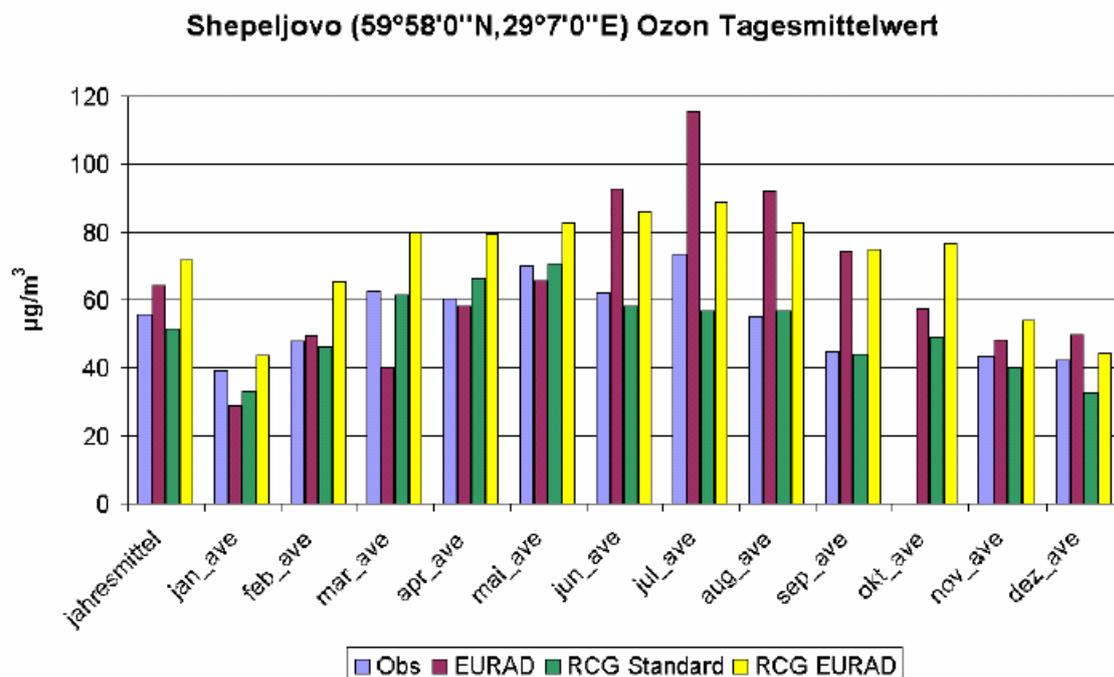


Abbildung 33 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Shepeljovo (Russland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

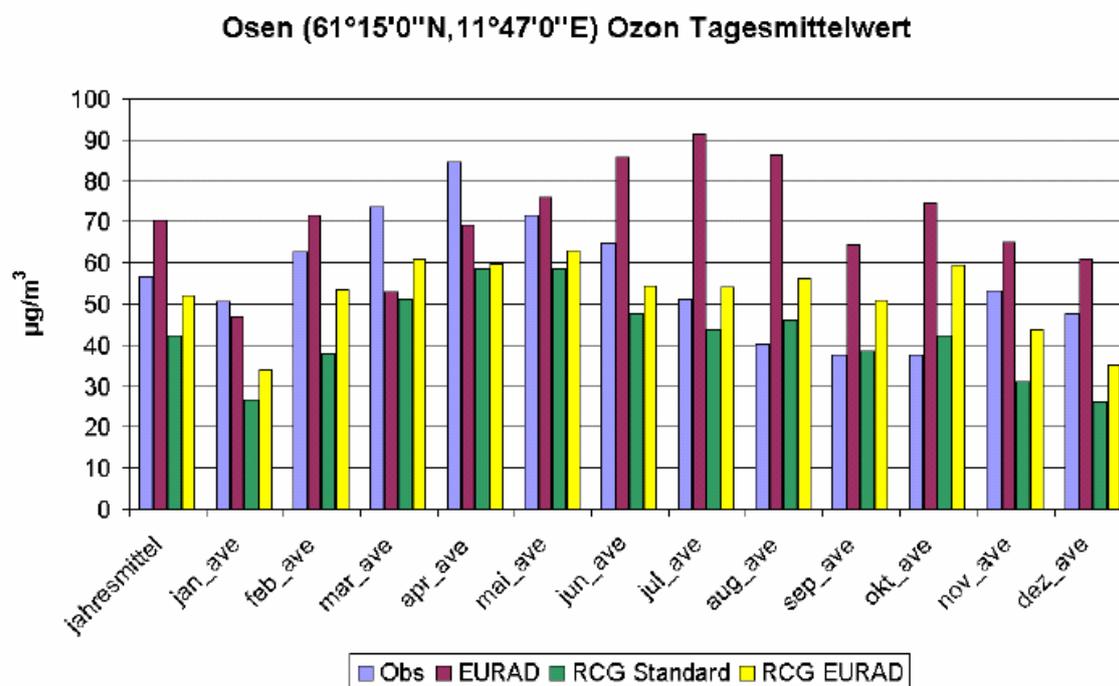


Abbildung 34 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Osen (Norwegen) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

Abbildung 35 zeigt die beobachteten und simulierten Jahres- und Monatsmittelwerte im Mittel über alle zum Vergleich benutzten Messstationen in Europa. Der schon in den Flächenplots sichtbare Unterschied zwischen Standard-Version RCG und an EURAD gekoppelter RCG-Version macht sich auch im räumlichen Mittel über Gesamteuropa bemerkbar. Sowohl der Jahresmittelwert als auch die einzelnen Monatsmittelwerte an Ozon werden mit der RCG-EURAD gekoppelten Version höher als mit der Standardversion simuliert.

Der Einfluss der Randbedingungen zeigt sich beim Ozon im gesamten RCG-Simulationsgebiet. Im räumlichen Mittel unterschätzt EURAD die Ozonwerte während der Wintermonate, überschätzt sie jedoch stark im Sommer. Die gekoppelte RCG-EURAD-Version zeigt aber eine allgemein höhere Ozonsimulation als die Standardversion. Dieser Trend ist an einzelnen mitteleuropäischen Stationen (Melpitz, Deutschland: Abbildung 36, Illmitz, Österreich: Abbildung 37) wieder zu finden. Bei beiden Stationen unterschätzt EURAD die Wintermonate und überschätzt die Sommermonate. RCG-Standard unterschätzt etwas die Sommermonate, die gekoppelte Version hebt für alle Monate etwas das simulierte Ozon-Niveau; dies auch in den von EURAD unterschätzten Wintermonaten. Dieses Phänomen ist sogar im kontinentalen Polen (Messstation Jeleniow, Abbildung 38) noch sehr viel deutlicher bemerkbar. Hier werden die Wintermonate vom Hemisphärenmodell EURAD sehr stark unterschätzt, die an EURAD gekoppelte RCG-Version hingegen simuliert gerade in diesen Monaten sehr viel höhere Ozonwerte als die Standardversion und überschätzt die Wintermonate stark.

Die sich nördlich der Poebene am Alpenrand befindende Messstation Ispra (Abbildung 39) wird von der Standardversion RCG im Frühjahr und im Sommer sehr gut, im Herbst jedoch zu hoch simuliert; EURAD überschätzt wieder Herbst und Winter sehr deutlich. Die Unterschiede zwischen den zwei RCG-Versionen sind jedoch weniger deutlich als in anderen, weniger belasteten Gebieten Europas, was unter Umständen auf den Einfluss der hohen Emissionen im Großraum Mailand hinweist. Vredepeel in den Niederlanden (Abbildung 40) bestätigt diese Annahme nur zum Teil: auch die Niederlande sind von hohen NO_2 -Konzentrationen gekennzeichnet. Die Randwerte beeinflussen jedoch die RCG Versionen deutlich im Herbst und im Winter, jedoch kaum im Sommer.

Die Ursache für den starken Einfluss der Randbedingungen in den zentralen Regionen des Modellgebiets liegt weniger in den seitlichen Randbedingungen als in den oberen Randbedingungen. Dazu zeigt die Abbildung 41 die räumlich und monatlich gemittelten oberen Randbedingungen nach Logan (verwendet im RCG-Standard) und nach EURAD (verwendet im RCG-EURAD-Lauf). Die EURAD-Werte in 600 mb liegen in allen Monaten deutlich höher als die aus Radiosonden abgeleiteten Logan-Werte. Das Maximum der Logan-Werte liegt im Mai, das der EURAD-Werte im Juli. Die höheren Bodenwerte der RCG-EURAD-Simulation haben also ihre Ursache in der sehr viel höheren oberen Randbedingung für Ozon. Die EURAD-Simulation zeigt aber im Winter trotz deutlich höherer Ozonkonzentrationen in der mittleren Troposphäre am Boden niedrigere Ozonkonzentrationen als das RCG-Modell in seiner Standardversion. Dies kann nur bedeuten, dass der vertikale Austausch im EURAD-Modell in den Wintermonaten geringer ist als im RCG-Modell was einen geringeren Ozontransport aus der Höhe in Richtung Boden bewirkt. Möglicherweise ist auch die trotz einer Maschenweite von 125 km starke EURAD-Überschätzung der NO_x -Konzentrationen auf diese Austauschproblematik im EURAD-Modell zurückzuführen.

Abbildung 42, Abbildung 43 und Abbildung 44 fassen nochmals die unterschiedlichen Ozonsimulationen aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen zusammen. Es ist deutlich erkennbar, dass EURAD-Randbedingungen sowohl bei den Tagesmittelwerten, als auch bei

den Tagesmaxima und den 8 höchsten Tagesmaxima zu höheren Werten als die klimatologischen Randbedingungen führen. Dabei sind alle Bereiche ungefähr gleich betroffen: die hohen Werte werden etwas stärker durch die Randbedingungen beeinflusst als die niedrigen Werte, diese werden jedoch auch aufgrund der EURAD-Randbedingungen höher simuliert als mit der Standardversion.

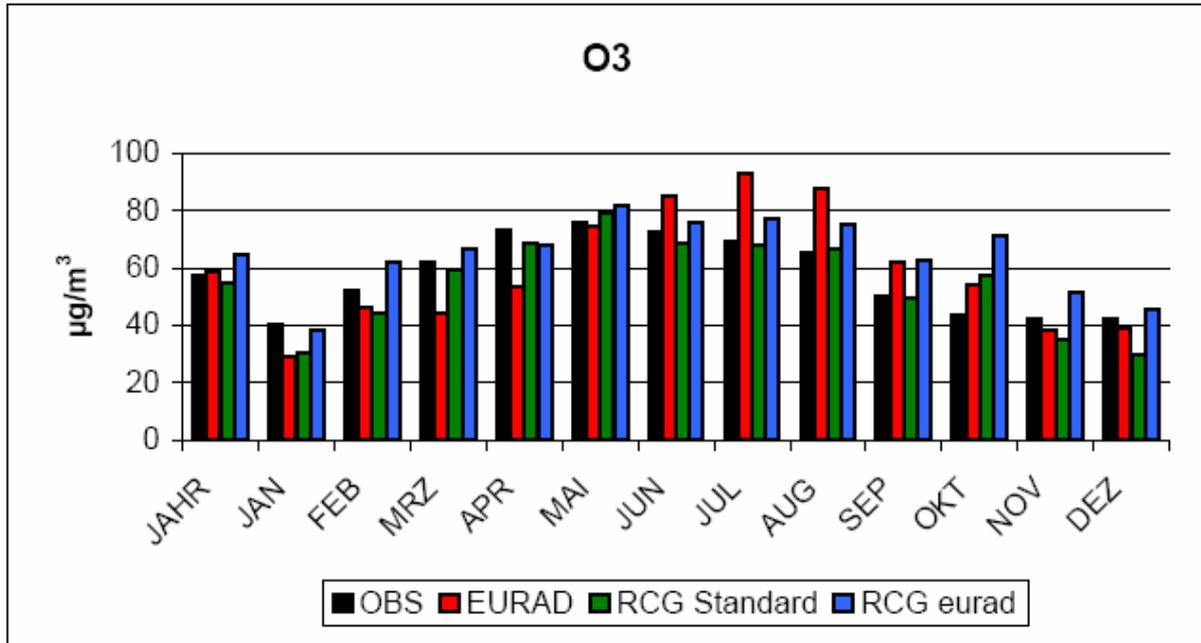


Abbildung 35 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte über alle Messstationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

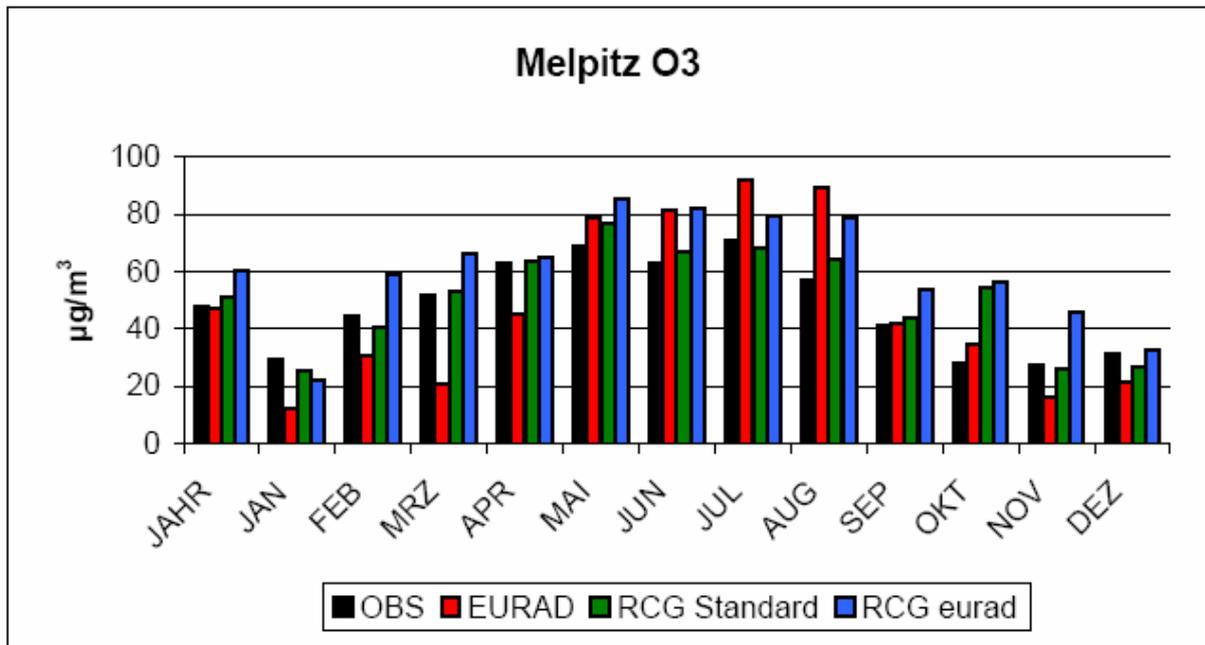


Abbildung 36 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

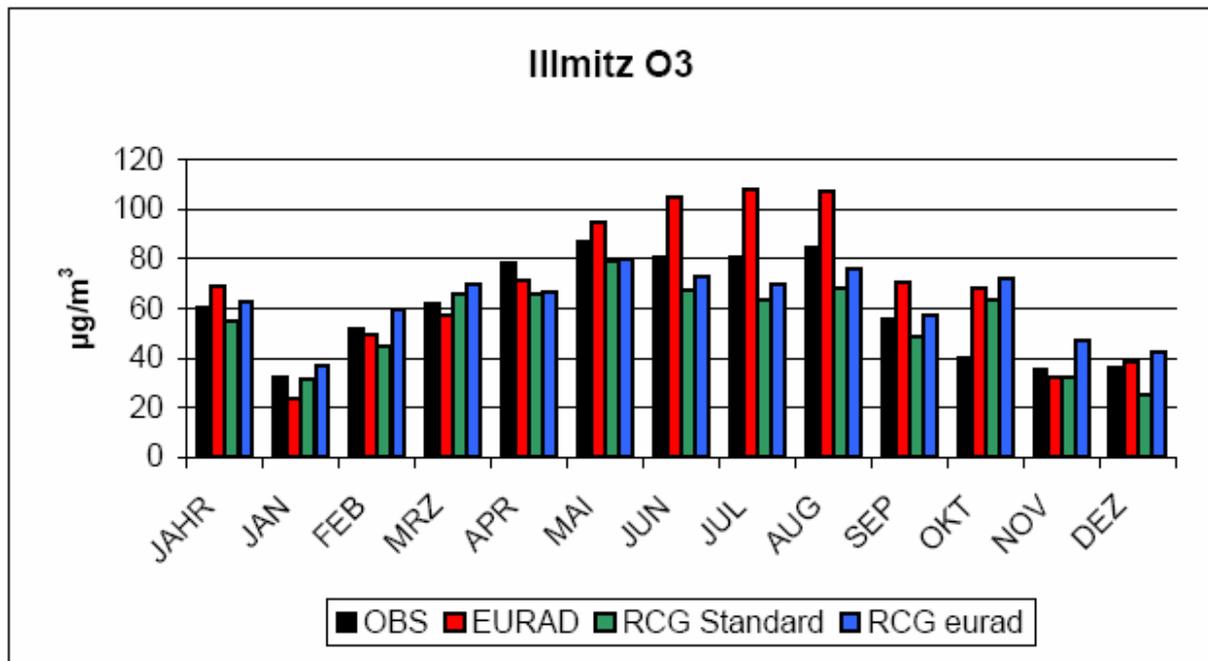


Abbildung 37 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Illmitz (Österreich) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

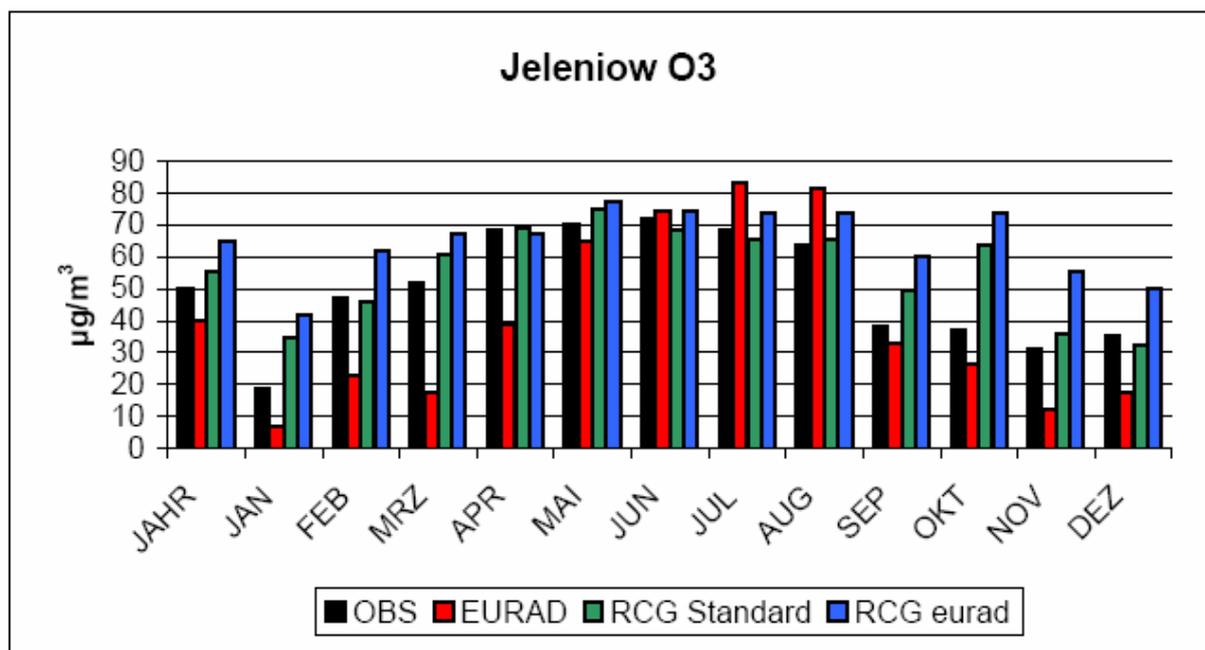


Abbildung 38 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Jeleniow (Polen) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

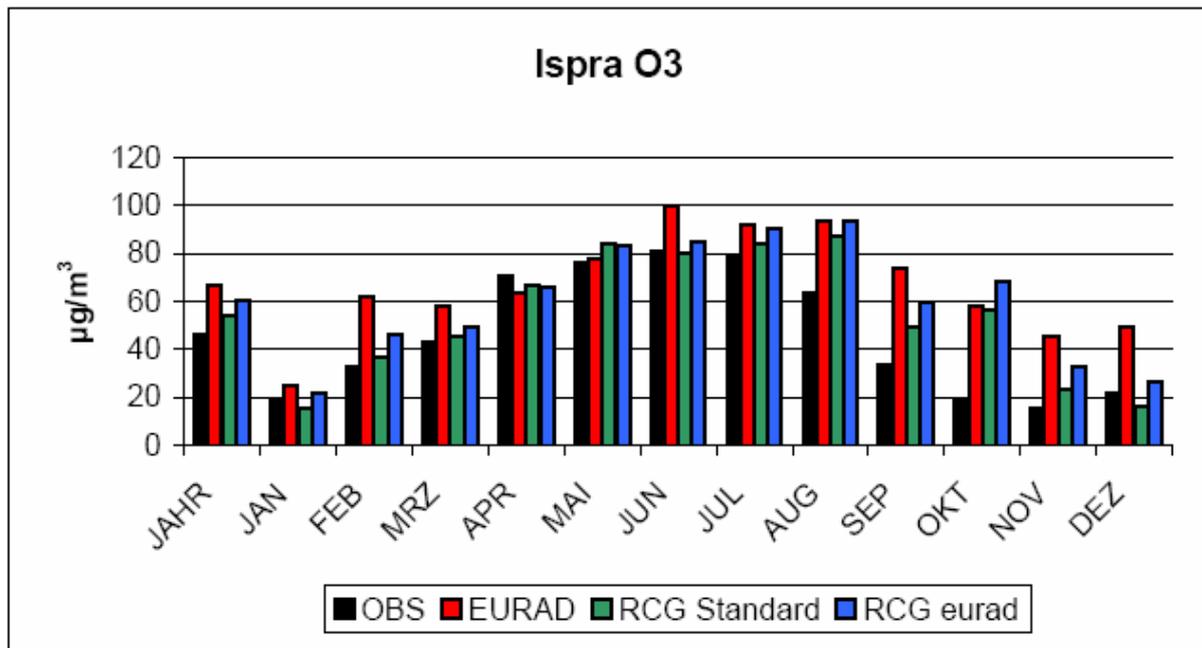


Abbildung 39 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Ispra (Italien) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

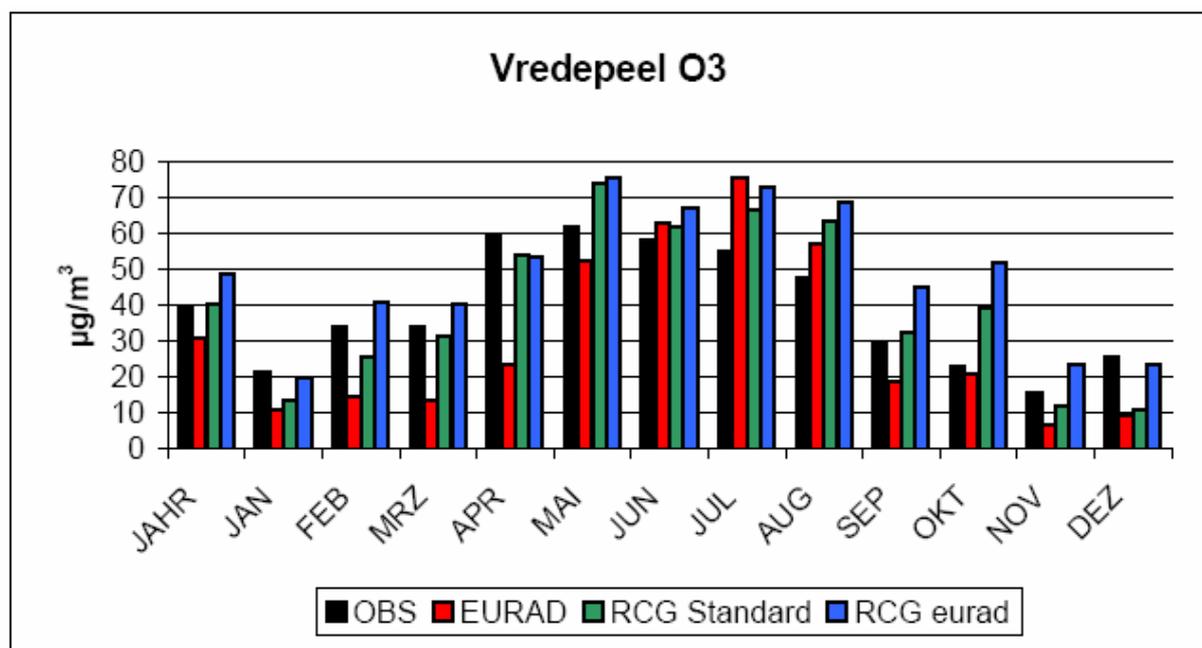


Abbildung 40 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

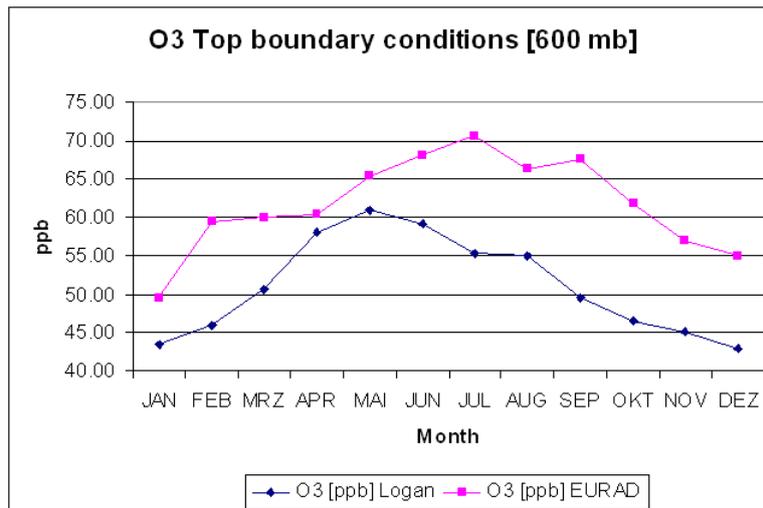


Abbildung 41 Obere Ozon-Randbedingung im RCG-Modell nach Logan (RCG-Standard) und nach EURAD (RCG-EURAD-Version). Monatsmittelwerte gemittelt über alle horizontalen Zellen des Modellgebiets.

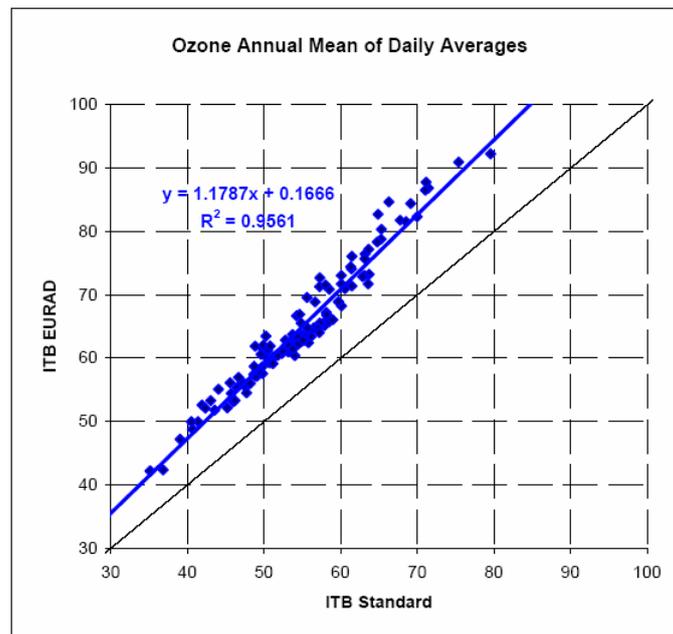


Abbildung 42 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus Tagesmittelwerten an Ozon mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).

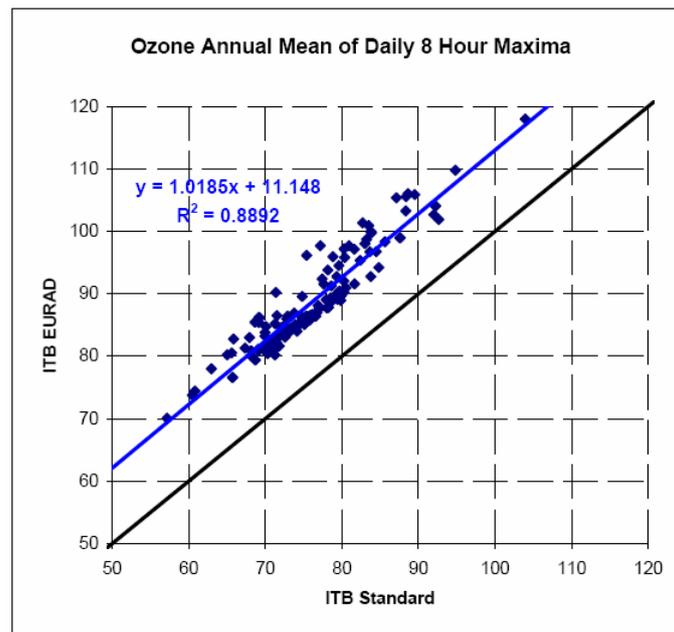


Abbildung 43 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus den 8 höchsten Stundenwerten pro Tag an Ozon mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).

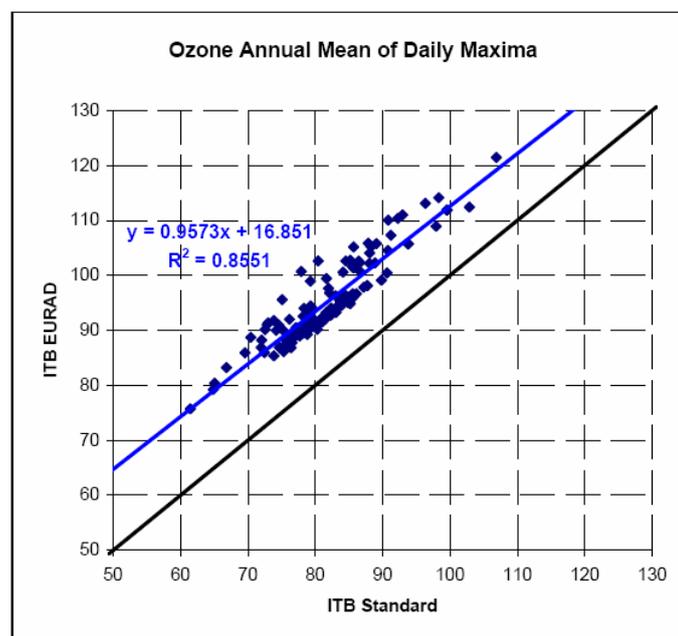


Abbildung 44 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus Tagesmaxima an Ozon mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).

4.3.2 NO₂

Abbildung 45 zeigt die beobachteten und simulierten NO₂ Jahres- und Monatsmittelwerte, gemittelt über alle verwendeten europäischen Stationen. Der Jahresgang wird im europäischen Mittel sowohl von EURAD, als auch von RCG gut beschrieben. Wie schon erwähnt, überschätzt EURAD die kalten Monate deutlich. Die über alle Stationen gemittelten NO₂-Werte werden jedoch auch von RCG-Standard vor allem im November und Dezember deutlich überschätzt. Der Einfluss der Randbedingungen auf die räumlich gemittelten NO₂-Simulationen ist in den kalten Monaten deutlicher bemerkbar als während der warmen Monate.

Werden einzelne, von den Randzellen weit entfernt liegende Stationen untersucht, lässt sich der Einfluss der Randbedingungen auf das NO₂-Niveau besser beschreiben. Abbildung 46 zeigt die beobachteten und simulierten NO₂-Jahres- und Monatsmittelwerte in Melpitz, Deutschland. EURAD überschätzt die dortigen NO₂-Werte sehr stark, die zwei unterschiedlichen RCG-Versionen reagieren jedoch nicht wesentlich auf die unterschiedlichen Randbedingungen. Das gleiche lässt sich in Illmitz, Österreich, (Abbildung 47) und Jeleniow, Polen, (Abbildung 48) ersehen. Wiederum überschätzt EURAD das gesamte Jahr, die unterschiedlichen Randbedingungen ändern jedoch die RCG-Simulationen unwesentlich. Die NO₂-Simulationen in Vredepeel, Niederlande, (Abbildung 49) hingegen werden im November und im Dezember von den Randbedingungen beeinflusst: Das RCG-EURAD-gekoppelte System berechnet bis zu 10% höhere NO₂-Werte als die Standardversion RCG. Insgesamt ist der Einfluss der Randbedingungen auf die simulierten NO₂-Jahresmittelwerte in den niedrigen Konzentrationsbereichen sehr gering; nur erhöhte NO₂-Konzentrationen in den Ballungsräumen werden aufgrund der EURAD-Randbedingungen akzentuiert (Abbildung 50), was aber nicht auf die NO₂-Randbedingungen sondern auf die Ozonrandbedingungen zurückzuführen ist.

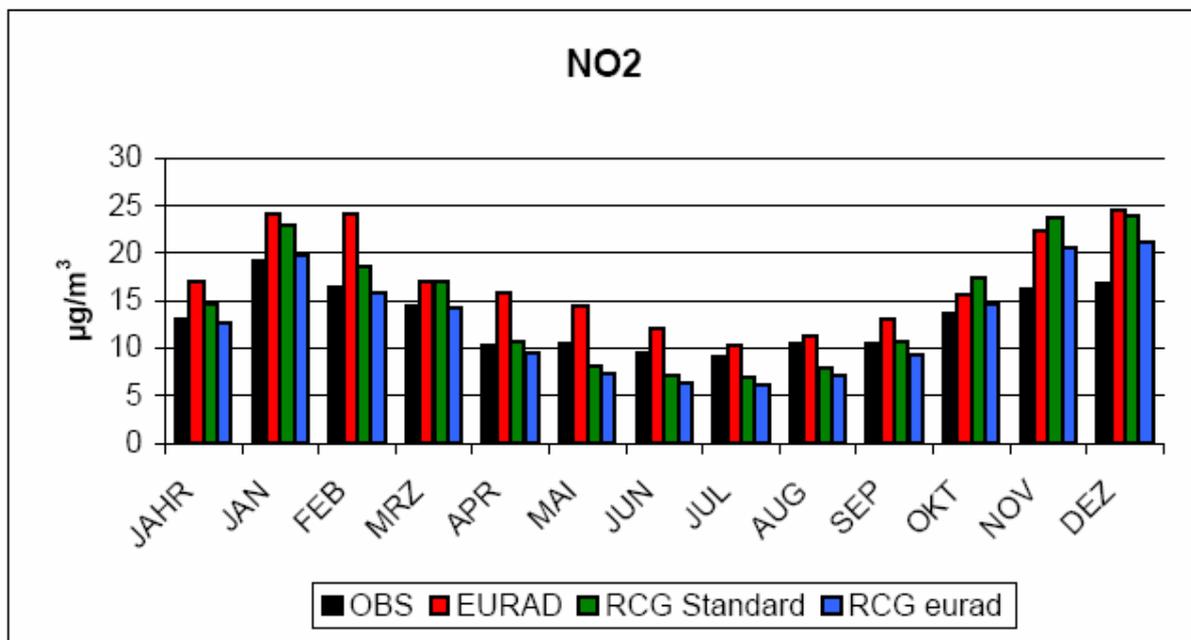


Abbildung 45 Berechnete und beobachtete NO₂-Monatsmittelwerte über alle Messstationen in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

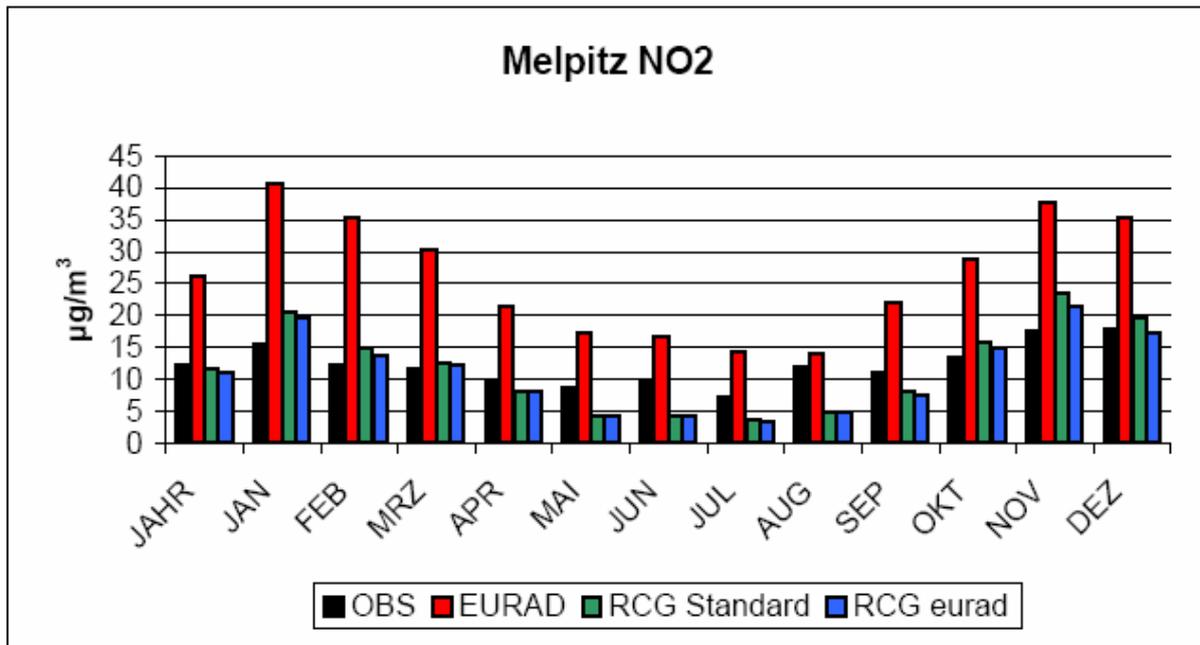


Abbildung 46 Berechnete und beobachtete NO₂-Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

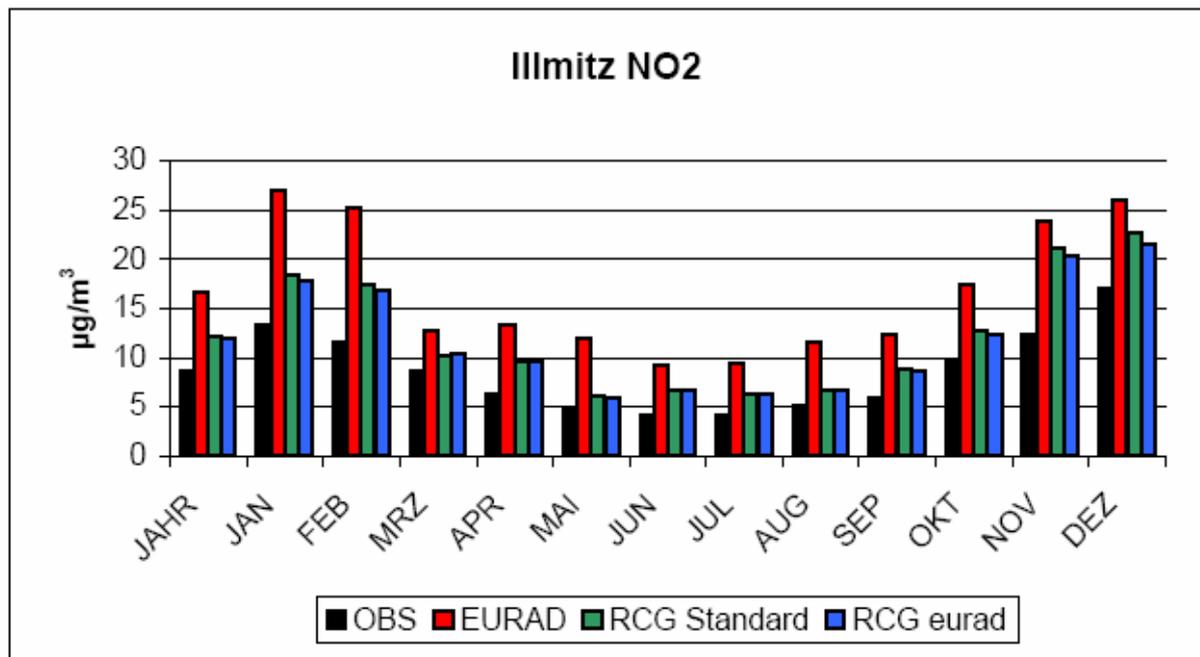


Abbildung 47 Berechnete und beobachtete NO₂-Monatsmittelwerte in Illmitz (Österreich) in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

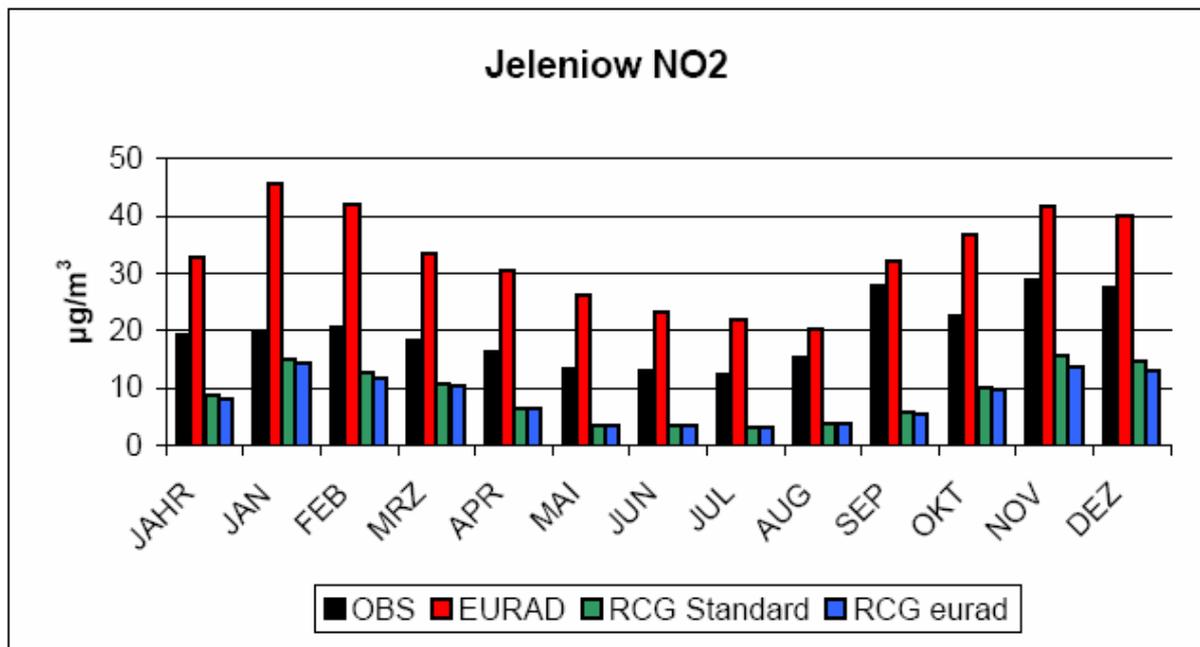


Abbildung 48 Berechnete und beobachtete NO₂-Monatsmittelwerte in Jeleniow (Polen) in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

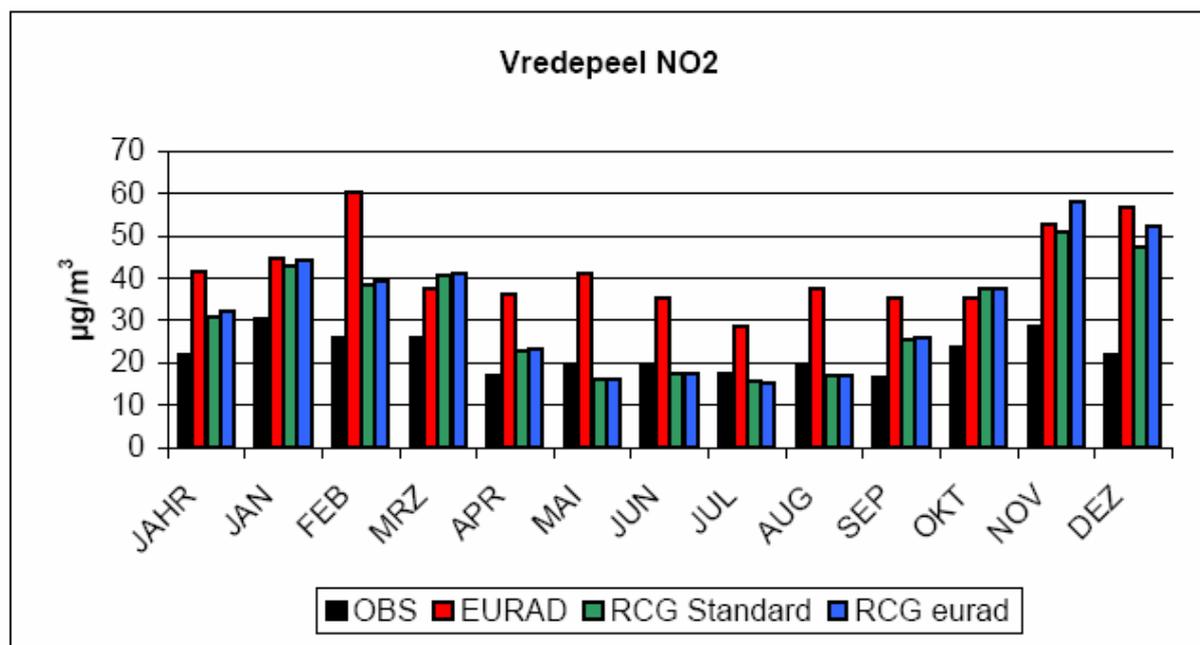


Abbildung 49 Berechnete und beobachtete NO₂-Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in µg/m³, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD

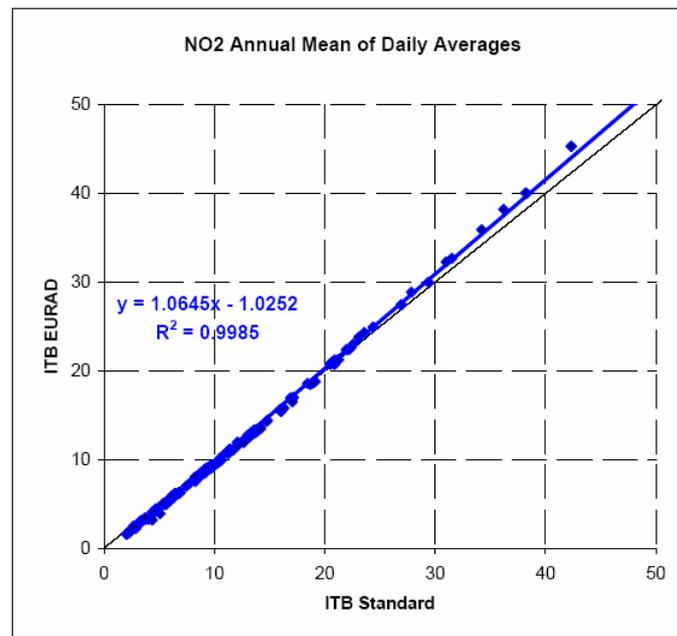


Abbildung 50 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus NO₂-Tagesmittelwerten mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R²).

4.3.3 Statistische Zusammenfassung

Es werden statistische Kenngrößen wie Mittelwert, Abweichung und Korrelationskoeffizient berechnet und dargestellt. Wiederum soll dies keine modellvergleichende Evaluierung sein. Diese Koeffizienten wurden über alle verfügbaren Messungen an regionalen Hintergrundstationen berechnet. Es wird darauf hingewiesen, dass der Einfluss der Randbedingungen auf die regionalen Schadstoffsimulationen bei langlebigen und in der Konzentration höheren Stoffen wie Ozon natürlich höher ist als bei kurzlebigen oder sehr geringen Konzentrationen wie NO_x oder PM₁₀ über Wasser. Auf diesen Umstand konnte in der statistischen Auswertung nicht Rücksicht genommen werden, und alle Stationen wurden für die Berechnung der statistischen Größen benutzt.

Abbildung 51 fasst die beobachteten und simulierten Mittelwerte, die Abweichungen, mittleren quadratischen Fehler und die Korrelationskoeffizienten für die Variablen Ozon-Stundenwerte „O₃“, Ozon-Tagesmaxima „daymax O₃“, Stundenwerte Oxidantien „Ox“ (= O₃ + NO₂), Tagesmaxima Oxidantien „daymax Ox“, Stundenwerte „NO₂“, Stundenwerte „NO_x“ und Stundenwerte „NO“. Dabei wurden alle Stundenwerte des Tages, unabhängig von der Tages- oder Nachtzeit berücksichtigt. Grundsätzlich kann ersehen werden, dass für den photochemischen Stoff Ozon die tägliche Variabilität sowohl von EURAD als auch von RCG erfasst wird. Es werden Korrelationskoeffizienten zwischen simulierten und beobachteten O₃-Stundenwerten von über 0.6 erzielt, die Tagesmaxima werden sogar noch besser wiedergegeben. Auch die modellierten und beobachteten Mittelwerte liegen bei allen Modellversionen innerhalb einer Fehlermarge von +/- 10%, die Tagesmaxima werden von allen Modellversionen leicht überschätzt, die Oxidantien werden hingegen von der Standard-RCG-Version sehr gut, von den anderen beiden Modellversionen leicht überschätzt. Nach der statistischen Auswertung liefert die RCG-Standardversion die besten Ergebnisse.

Werden nur die Tagesstundenwerte berücksichtigt (Abbildung 52) ergibt sich für die Ozonhaltigen Variablen ein sehr ähnliches Bild: Korrelationskoeffizienten von über 0.6, sehr hohe Genauigkeit in der Wiedergabe der Mittelwerte und eine geringe Streuung. Eine Verschlechterung der RCG-EURAD-gekoppelten Version gegenüber der Standard-Version muss jedoch auch festgestellt werden.

NO wird von allen Modellversionen schlechter simuliert als Ozon. Korrelationskoeffizienten über 0.3 werden nur von RCG erreicht, wenn nur die Tageswerte berücksichtigt werden. Auffallend ist wie schon in den Monatsmittelwertanalysen die sehr starke Überschätzung durch EURAD. So wird NO im Mittel um über 60% überschätzt. Zwischen den zwei RCG-Versionen lassen sich in der Tagesvariabilität kaum Unterschiede erkennen (Korrelationskoeffizienten 0.28, berücksichtigt man alle Stundenwerte, 0.32 und 0.31, wenn nur die Tageswerte benutzt werden), die mit EURAD-Randbedingungen gesteuerte RCG-Version berechnet jedoch um ca. 15% niedrigere Mittelwerte. Die Streuung bleibt dabei im Wesentlichen unverändert.

Was für NO gilt, ist grundsätzlich auch für NO₂ und NO_x richtig. Der Tagesgang wird zwar etwas besser simuliert (Korrelationskoeffizienten EURAD: 0.37 bzw. 0.42, die beiden RCG-Versionen: 0.44 bzw. 0.5, nimmt man alle Stundenwerte, bzw. nur die Tageswerte), EURAD überschätzt jedoch die Mittelwerte um ca. 60%. Ausnahme bildet die Tagessimulation an NO₂, die nur zu ca. 30% überschätzt wird. Der Einfluss der Randbedingungen auf die NO₂- und NO_x-Simulationen ist bei den hier ausgewählten Hintergrundstationen schwach.

Abbildung 53 fasst die beobachteten und simulierten Mittelwerte, die Abweichungen, mittleren quadratischen Fehler und die Korrelationskoeffizienten für PM10-Inhaltsstoffe und SO₂-Tagesmittelwerte zusammen. Wie schon erläutert, konnte aus den gelieferten EURAD-Daten nicht die Gesamt-PM10-Konzentration gebildet werden, da sekundäre organische Kohlenstoffverbindungen fehlten. Es werden deshalb die anorganischen sekundären PM10-Inhaltsstoffe mit RCG-Werten verglichen. SO₄ wird von EURAD um ca. 180% im zeitlichen und räumlichen Mittel überschätzt. Der mittlere quadratische Fehler liegt bei ca. 100% des simulierten Mittelwertes und der Korrelationskoeffizient liegt bei 0.27. NH₄ wird von EURAD um 300% überschätzt, der mittlere quadratische Fehler liegt bei ca. 100% des simulierten Mittelwertes, der Korrelationskoeffizient liegt jedoch über 0.4, NO₃ wird um ca. 400% überschätzt, der mittlere quadratische Fehler liegt bei 120% des Mittelwertes, der Korrelationskoeffizient sinkt auf 0.24. RCG simuliert die sekundären anorganischen PM10-Inhaltsstoffe zufriedenstellend, die Größenordnungen der beobachteten Mittelwerte werden getroffen, der mittlere quadratische Fehler liegt bei ca. 100%. Die Standard-Version RCG reiht sich dementsprechend in die Serie der anderen europäischen Chemie-Transport-Modelle ein (van Loon et al., 2004). RCG reagiert statistisch stärker bei der SO₄-Simulation auf veränderte Randbedingungen als bei den anderen beiden anorganischen sekundären Aerosol-Inhaltsstoffen. Hier wird in der RCG-EURAD-gekoppelten Version der räumliche und zeitliche Mittelwert um 80% höher simuliert als in der Standardversion RCG. Bei NH₄ ist der Unterschied im simulierten Mittelwert 56%, bei NO₃ knapp 7%. Die Korrelationskoeffizienten und somit die korrekte Simulation der zeitlichen Variabilität sind weitestgehend unabhängig von den Randbedingungen.

Die über alle verfügbaren Stationen Europas und über alle Tagesmittelwerte durchgeführte PM10-Mittelung zeigt einen relativ geringen Einfluss der Randbedingungen auf die simulierten Mittelwerte: Unter Verwendung der EURAD-Randbedingungen werden mit RCG im Mittel circa 1.5 µg/m³ höhere PM10-Werte simuliert als unter der Verwendung der Standard-Randbedingungen, was natürlich mit den höheren EURAD-Werten für die anorganischen Aerosole zusammenhängt. Dadurch wird der Mittelwert in der gekoppelten Version zwar besser simuliert als in der Standardversion, aber dies kann in Anbetracht der Überschätzung der Aerosolkomponenten durch EURAD nicht als Verbesserung betrachtet werden. Zu-

sammenfassend kann aus der Abbildung 54 ersehen werden, dass die EURAD-Randbedingungen das PM10-Niveau in allen Bereichen erhöhen.

WHOLE DAY

O3	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	57.11	59.24	27.15	33.68	0.57
RCG_itb_RCG	55.55	54.93	20.18	25.49	0.64
RCG_itb_EURAD	55.55	64.80	23.43	29.25	0.60
daymax O3	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	79.60	86.41	25.05	30.91	0.68
RCG_itb_RCG	78.92	81.35	16.87	21.79	0.74
RCG_itb_EURAD	78.92	94.50	23.50	28.77	0.65
Ox	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	67.22	77.64	22.26	28.18	0.59
RCG_itb_RCG	67.27	68.49	16.40	21.23	0.65
RCG_itb_EURAD	67.27	77.76	20.95	26.10	0.57
daymax Ox	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	87.76	98.93	20.90	26.63	0.72
RCG_itb_RCG	87.71	88.07	14.72	19.78	0.75
RCG_itb_EURAD	87.71	100.72	21.69	26.69	0.63
NO2	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	12.95	21.37	15.19	20.46	0.36
RCG_itb_RCG	13.75	14.60	9.58	13.04	0.44
RCG_itb_EURAD	13.75	14.42	9.65	13.31	0.44
NOx	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	17.27	33.64	24.39	37.36	0.37
RCG_itb_RCG	18.46	19.42	12.54	19.12	0.44
RCG_itb_EURAD	18.46	18.52	12.16	18.63	0.45
NO	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	3.53	6.16	6.62	14.30	0.24
RCG_itb_RCG	3.77	2.71	3.51	7.58	0.28
RCG_itb_EURAD	3.77	2.24	3.38	7.49	0.28

Abbildung 51 Statistische Kenngrößen aus Stundenwerten für Ozon, NO₂, NO_x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD)

DAY TIME

O3	obs.	mean mod.	mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	63.63	69.16		26.72	33.16	0.64
RCG_itb_RCG	62.34	68.78		19.36	24.65	0.70
RCG_itb_EURAD	62.34	80.20		25.61	31.35	0.64
daymax O3	obs.	mean mod.	mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	77.52	83.13		25.55	31.49	0.69
RCG_itb_RCG	76.76	81.35		17.16	22.10	0.75
RCG_itb_EURAD	76.76	94.41		24.62	29.87	0.66
Ox	obs.	mean mod.	mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	73.54	84.14		22.37	28.42	0.66
RCG_itb_RCG	73.62	78.68		16.07	20.90	0.70
RCG_itb_EURAD	73.62	89.66		23.01	28.10	0.60
daymax Ox	obs.	mean mod.	mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	86.32	96.12		21.22	27.02	0.72
RCG_itb_RCG	86.27	88.02		14.82	19.79	0.76
RCG_itb_EURAD	86.27	100.64		22.34	27.26	0.64
NO2	obs.	mean mod.	mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	12.64	16.81		12.41	17.28	0.42
RCG_itb_RCG	13.46	10.24		8.41	11.43	0.51
RCG_itb_EURAD	13.46	10.19		8.53	11.68	0.51
NOx	obs.	mean mod.	mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	17.36	28.74		21.32	34.93	0.41
RCG_itb_RCG	18.65	15.38		11.58	18.54	0.50
RCG_itb_EURAD	18.65	14.70		11.44	18.35	0.50
NO	obs.	mean mod.	mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	3.86	6.37		6.62	14.17	0.27
RCG_itb_RCG	4.14	2.93		3.54	7.81	0.32
RCG_itb_EURAD	4.14	2.51		3.45	7.80	0.31

Abbildung 52 Statistische Kenngrößen aus Tagesstundenwerten für Ozon, NO₂, NO_x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD)

SO4	observed mean	modelled mean	residue	RMSE	correlation
EURAD	2.30	6.49	4.72	6.68	0.27
RCG_itb_RCG	2.55	2.44	1.45	2.17	0.52
RCG_itb_EURAD	2.55	4.39	2.40	3.25	0.50
NH4	observed mean	modelled mean	residue	RMSE	correlation
EURAD	1.06	4.34	3.38	4.12	0.41
RCG_itb_RCG	1.40	1.26	0.76	1.11	0.47
RCG_itb_EURAD	1.40	1.97	1.00	1.35	0.49
NO3	observed mean	modelled mean	residue	RMSE	correlation
EURAD	1.76	8.75	7.38	10.48	0.24
RCG_itb_RCG	2.28	1.51	1.48	2.08	0.35
RCG_itb_EURAD	2.28	1.61	1.41	2.03	0.38
PM10	observed mean	modelled mean	residue	RMSE	correlation
EURAD	-999.00	-999.00	-999.00	-999.00	-999.00
RCG_itb_RCG	20.48	15.10	8.95	12.30	0.51
RCG_itb_EURAD	20.48	17.71	8.41	11.67	0.52

Abbildung 53 Statistische Kenngrößen für Sulfate (SO₄), Ammonium (NH₄), Nitrate (NO₃), Gesamt-PM10 (PM10) über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD)

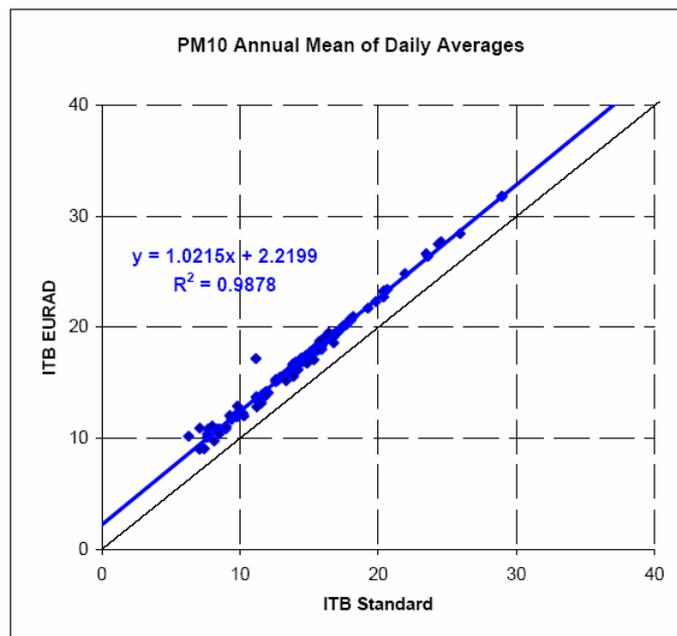


Abbildung 54 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus Tagesmittelwerten an PM10 mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).

5 Szenariorechnungen 2010

Ein wichtiger Einsatzpunkt von Aerosol-Chemie-Transport-Modellen ist die Fähigkeit, Szenarien unterschiedlicher Eingangsparameter zu rechnen. Dabei können entweder meteorologische, geophysikalische oder aber emissive Eingangsparameter geändert und die Auswirkungen auf die Schadstoffstruktur analysiert werden. Bei den Emissionsszenariorechnungen spielen überregionale bis globale Hintergrundfelder einen wesentlichen Faktor in der Berechnung der Änderungen aufgrund von Änderungen von Emissionen. Dies zeigt sich sehr deutlich in der lokalen bis urbanen Skala, die weitgehend von der regionalen Skala geprägt ist. Um den Einfluss der überregionalen Randbedingungen auf die regionale Skala auch in diesem Anwendungsgebiet strukturiert untersuchen zu können, wurde ein Emissionsszenario 2010 mit den einzelnen Modellversionen durchgerechnet.

Die veränderten Emissionen 2010 wurden hemisphärisch von EURAD von der EDGARV32-Datenbasis ausgehend abgeleitet (Memmesheimer, 2005); auf der regionalen Basis wurden die von RCG benutzten TNO-Emissionsdaten für 2010 (CLE-Szenario) benutzt. Ein Abgleich der verschiedenen Minderungsraten konnte im Rahmen dieses Vorhabens nicht vorgenommen werden.

Da sich gezeigt hat, dass die Randbedingungen den größten Einfluss auf die Ozonverteilung in der unteren Troposphäre haben, soll diese Spezies detaillierter betrachtet werden. Flächenplots geben die gebietsstrukturellen Unterschiede aufgrund unterschiedlicher Randbedingungen wieder. Die Berechnung der Schadstoffänderungen aufgrund unterschiedlicher Emissionen und unterschiedlicher Randbedingungen soll des Weiteren an einzelnen Punkten Europas und vor allem Deutschlands genauer untersucht werden.

5.1 Flächenplots

5.1.1 Ozon: „RCG-Standard“-„RCG-EURAD“ 2010 – 2001

Abbildung 55 und Abbildung 56 zeigen die mit den zwei RCG-Versionen berechneten Jahresmittel-Ozonänderungen, absolut und relativ, aufgrund veränderter Emissionen. Ozonzunahmen werden absolut mit bis zu $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (15 – 25%) über England und dem Ruhrgebiet simuliert. Die Unterschiede in den Modellversionen, d.h. in den unterschiedlichen Randbedingungen machen sich in den Ozon-Deltas flächenhaft teilweise deutlich bemerkbar. Während sich bei der Standardversion absolute Ozonerhöhungen von $3\text{--}7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf das Festland Englands und auf das Ruhrgebiet und die Niederlande beschränkten, treten diese Erhöhungen in den Ergebnissen der RCG-EURAD-gekoppelten Version über größeren Gebieten auf. Auch die maximalen Ozon-Zunahmen über Mittelengland steigen über $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an. Deutschland und Nordfrankreich werden in der RCG-EURAD-Version flächenhafter von einer Ozonzunahme betroffen als in der Standardversion. In den mehr ländlicheren Regionen werden kaum Veränderungen oder leichte Abnahmen berechnet, wobei die Gebiete mit Abnahmen in der RCG-Standardversion größer sind als in der RCG-EURAD-Version.

Während der Sommermonate (Abbildung 57 und Abbildung 58) werden von beiden Modellversionen bis zu $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon-Zunahme über England und über dem Ruhrgebiet und bis zu $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon-Abnahme über der Poebene simuliert. Dies entspricht ungefähr einer Zunahme von über 10% in der Achse England-Niederlande-Nordrhein-Westfalen und einer Abnahme von ca. 15% in Norditalien. Wiederum sind die flächenhaften Ozonänderungen stärker in der RCG-EURAD-gekoppelten Version als in der Standardversion. Maximale Ozonanstiege wer-

den von der gekoppelten Version von über $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ simuliert. Im Winter werden fast über das gesamte Simulationsgebiet bei beiden Modellversionen Ozonzunahmen berechnet (Abbildung 59 und Abbildung 60). Das Flächenmuster wiederholt sich wie schon in den Jahresanalysen und in der Sommerbetrachtung. Insgesamt fallen die berechneten Ozonzunahmen in der RCG-EURAD-Version stärker aus als in der RCG-Standard-Version.

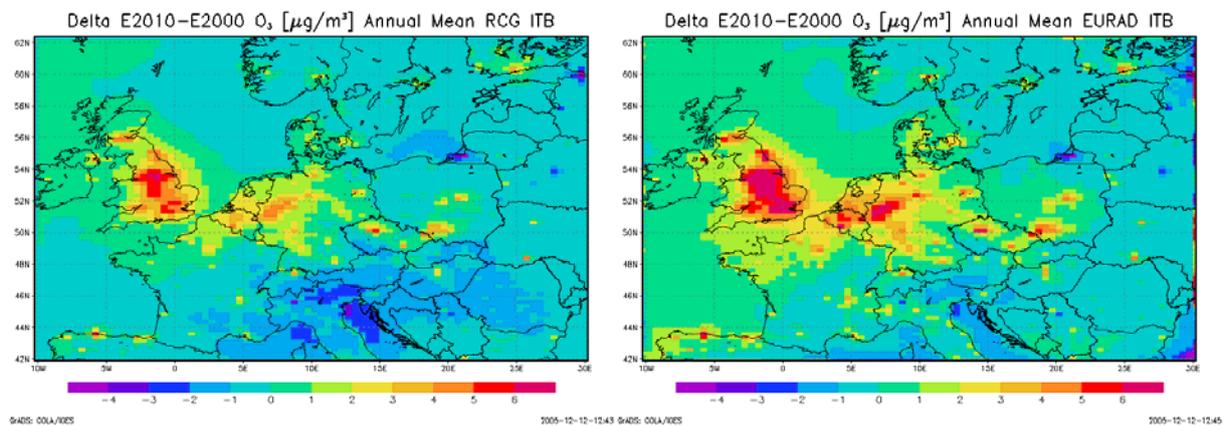


Abbildung 55 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Jahresmittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

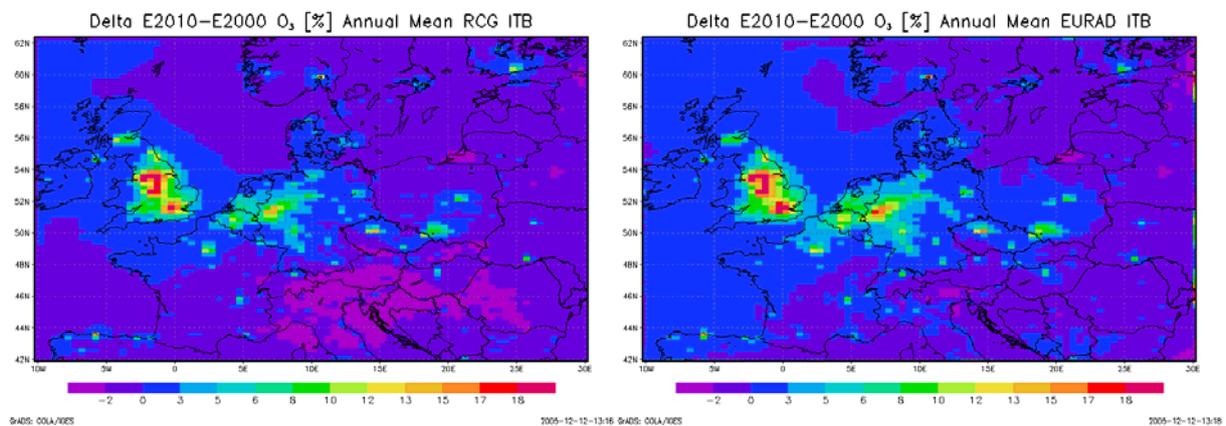


Abbildung 56 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Jahresmittelwertänderung in %.

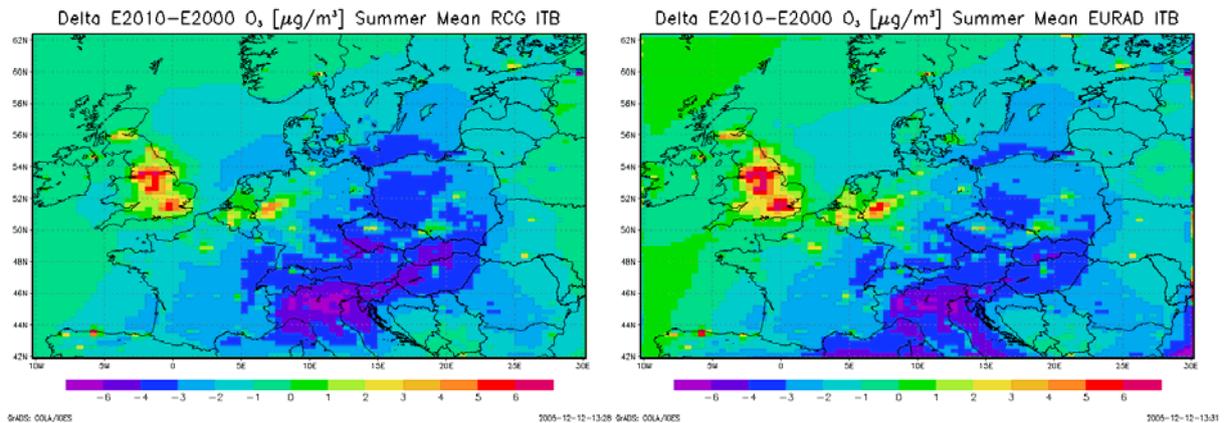


Abbildung 57 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Sommermittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

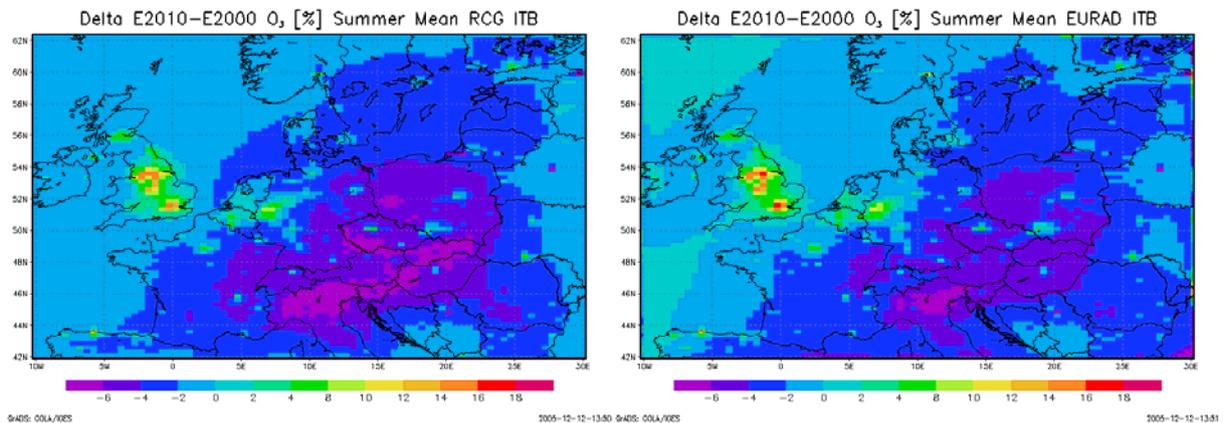


Abbildung 58 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Sommermittelwertänderung in %.

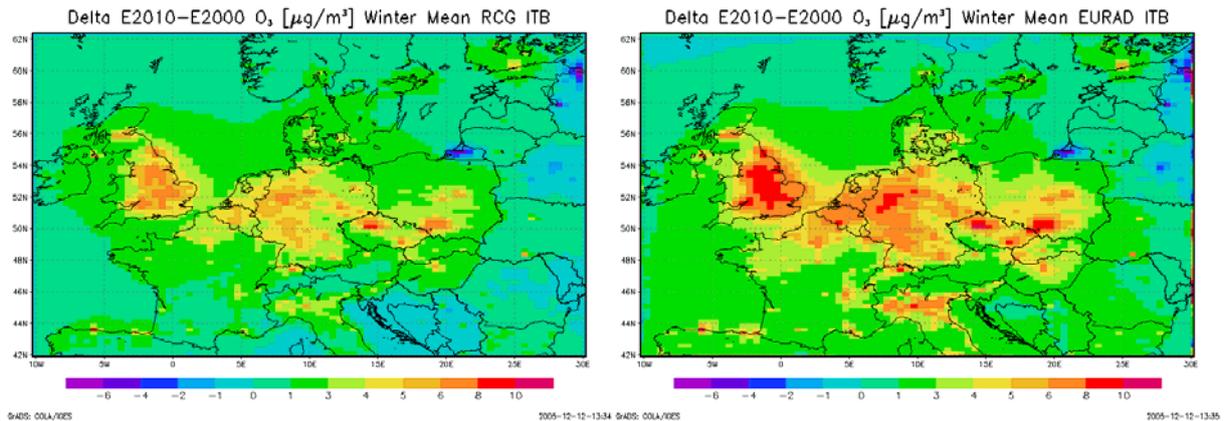


Abbildung 59 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Wintermitteleränderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

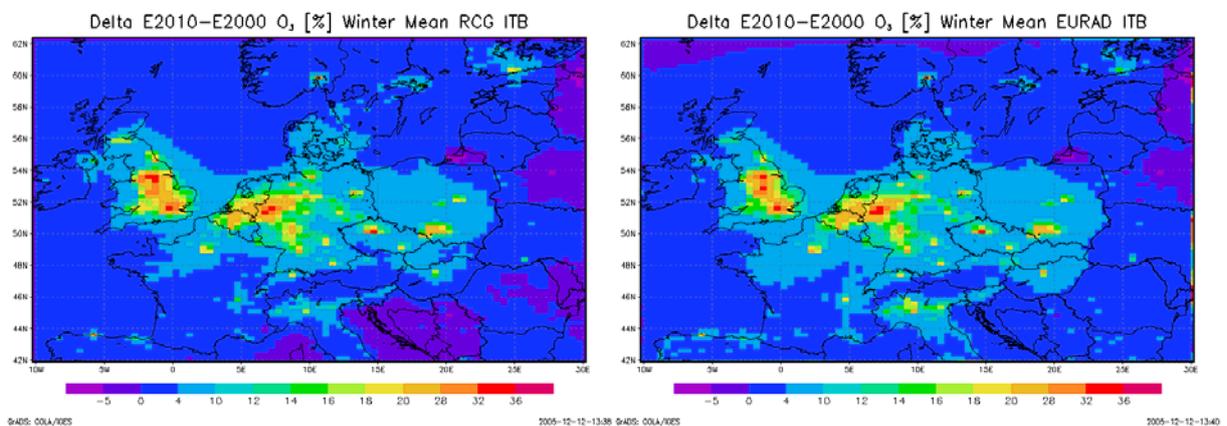


Abbildung 60 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Wintermitteleränderung in %.

5.1.2 NO₂: „RCG-Standard“–„RCG-EURAD“ 2010 – 2001

Abbildung 61 und Abbildung 62 stellen die Änderungen aufgrund unterschiedlicher Emissionen und unterschiedlicher Randbedingungen in den flächenhaften NO₂-Verteilungen dar. Wiederum lässt sich eine Verstärkung des Änderungspotenzials bei der RCG-EURAD-Koppelung feststellen und wiederum tritt diese Verstärkung hauptsächlich in Mittelengland und im Ruhrgebiet auf. In der Standardversion werden für 2010 maximal 14 µg/m³ im Jahresmittel weniger NO₂ in Mailand, Paris und London berechnet, in der gekoppelten RCG-EURAD-Version sind diese Gebiete maximaler Minderung größer. Auch das Ruhrgebiet wird großflächiger von einer NO₂-Reduktion in der RCG-EURAD-Version erfasst. Die hohen relativen Abnahmen beschränken sich nicht auf die Ballungsgebiete, d.h. auch niedrige NO₂-Konzentrationen werden von den Maßnahmen erfasst.

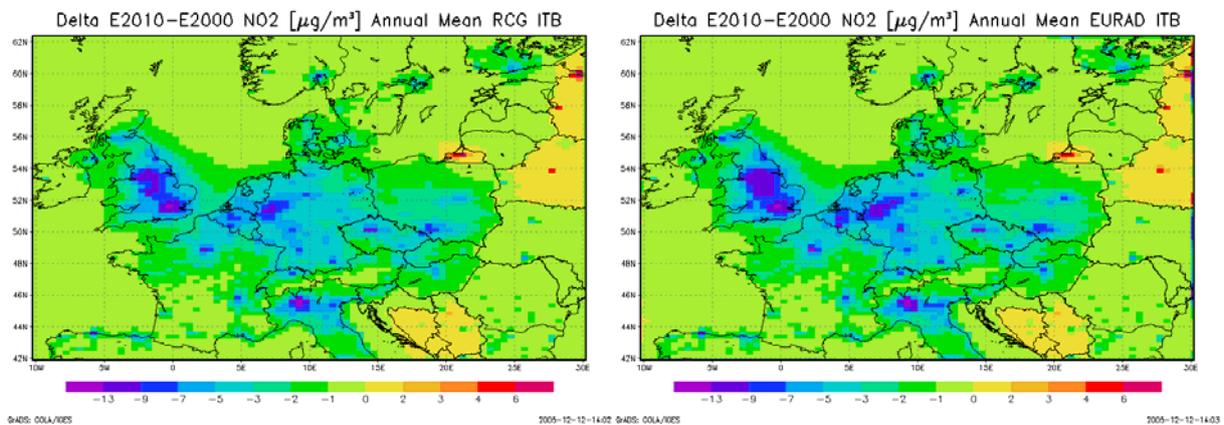


Abbildung 61 Berechnete NO₂-Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Jahresmittelwertänderung in µg/m³.

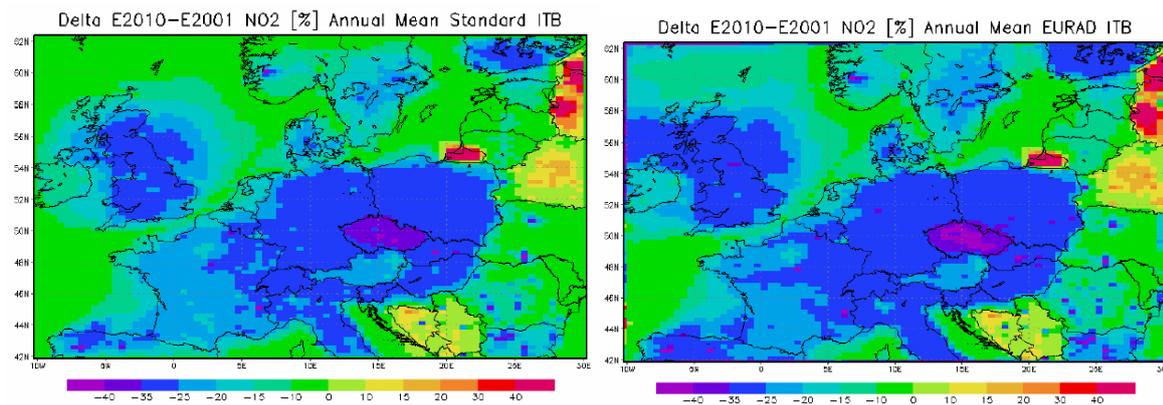


Abbildung 62 Berechnete NO₂-Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Jahresmittelwertänderung in %.

5.1.3 PM10: „RCG-Standard“– „RCG-EURAD“ 2010 – 2001

Abbildung 63 und Abbildung 64 zeigen die berechnete, absoluten und relativen PM10-Änderungen aufgrund veränderter Emissionen über Europa, links mit Standard-RCG-Randbedingungen und rechts mit Randbedingungen, die aus den jeweiligen Basis- und Szenariolauf des EURAD-Modells stammen. Die Ballungsgebiete Paris, London, Ruhrgebiet, Mailand und Südpolen erfahren PM10-Minderungen von bis zu $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$, das entspricht ungefähr einer prozentualen Minderung über 20%. Stärkere Zunahmen an PM10-Belastungen über das gesamte Jahr sind vor allem in den russischen Gebieten des Rechengebietes zu erwarten. Beide Modellversionen liefern im Jahresmittel sehr ähnliche absolute PM10-Änderungen, relative Änderungsstrukturen sind in der Standard-RCG-Version jedoch großflächiger als im RCG-EURAD-gekoppelten System. Die zu erwartenden PM10-Minderungen in der Poebene beispielsweise werden flächenhaft vom Standard-RCG-System mit ca. 25-30% berechnet, während das gekoppelte System solche Minderungsraten nur für einzelne, abgegrenzte Gebiete simuliert.

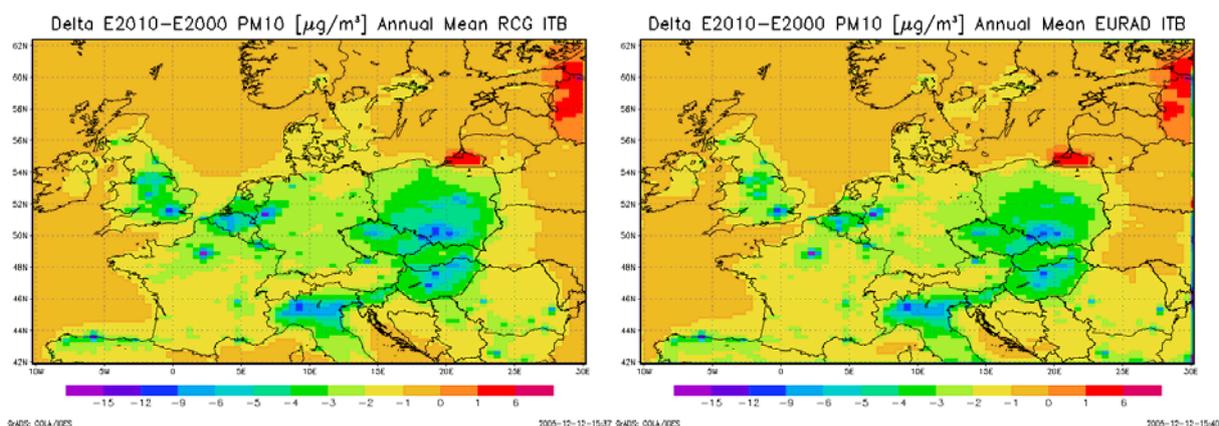


Abbildung 63 Berechnete PM10-Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Jahresmittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

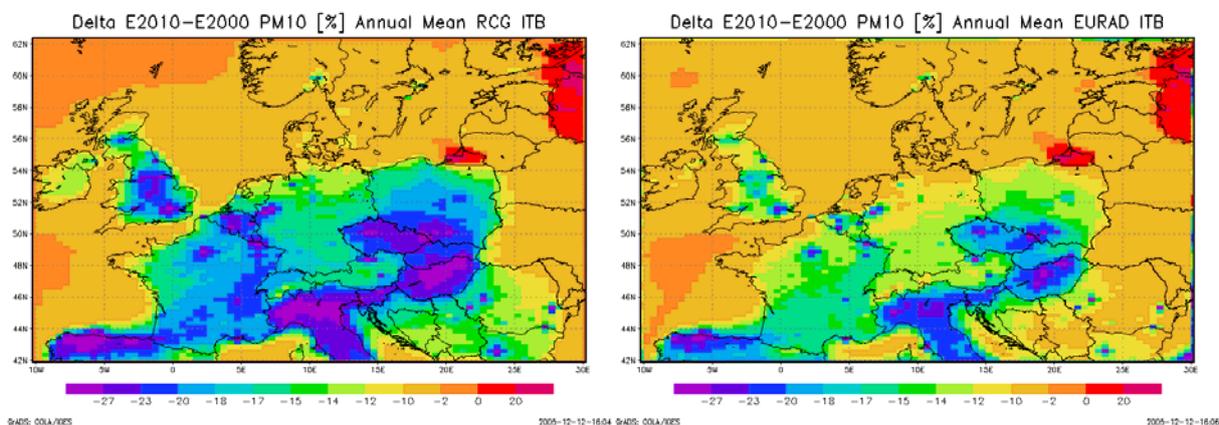


Abbildung 64 Berechnete PM10-Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Jahresmittelwertänderung in %.

5.2 Monatsmittel an ausgewählten Stationen

5.2.1 Ozon

Um die berechneten Ozonänderungen zu verdeutlichen, wurden EURAD und die beiden RCG-Versionen an verschiedenen Hintergrundstationen ausgewertet. Hauptaugenmerk liegt wiederum auf Ozon. Die Hintergrundstation im Westen Irlands Mace Head wurde vor allem für eine Beurteilung der veränderten Hintergrundrandbedingungen aus dem Westen gewählt. Die Standardversion RCG benutzt dieselben Randbedingungen für die Basissimulation und für das Emissionsszenario 2010. Die EURAD-RCG-Version wurde für das Szenario 2010 mit aus der EURAD-Rechnung für 2010 abgeleiteten Randbedingungen angetrieben. Wie weit sich der Einfluss der veränderten Randbedingung auf die Ozondeltas bemerkbar macht, hängt in erster Linie davon ab, welche Unterschiede sich in den reinen EURAD-Rechnungen zwischen der Basissimulation und der Simulation 2010 ergeben. Sind diese gering, ist zu erwarten, dass auch der Unterschied zwischen den RCG-Versionen mit bis 2010 konstanten Randbedingungen und denen mit den sich zeitlich (bis 2010) ändernden Randbedingungen gering sein wird.

5.2.1.1 EURAD

Abbildung 65 zeigt die mit der hemisphärischen EURAD-Modellversion berechneten Ozon-Monatsmittel an der Hintergrundstation Mace Head im Westen Irlands. Diese Messstation ist nahe am westlichen Rand des RCG-Modellgebiets. Die ausgewerteten EURAD-Läufe beziehen sich zum einen auf das Emissionsbasisjahr 2001, zum anderen auf das Emissionsszenario 2010. Für die monatlichen Tagesmittelwerte werden außer für August, September und Oktober für 2010 höhere Ozonwerte als für 2001 prognostiziert. Dabei sind die höheren Werte vor allem in den Winter- und Frühjahrsmonaten zu erwarten, bei einem maximalen Ozonzuwachs von 10% im März. Für den Monat Juli werden auch um beinahe 9% höhere Ozonwerte vorhergesagt. Die von EURAD prognostizierte Ozonänderung aufgrund der zu erwartenden Emissionssituation 2010 liegt in Mace Head bei ca. 3.4% im Jahresmittel.

EURAD simuliert für die Hintergrundstation Waldhof in Deutschland (Abbildung 66) bis 2010 sehr starke Ozonzunahmen im Winter und Frühjahr (Januar +90%) und sehr schwache Abnahmen in den heißesten Monaten (-0.76% im Juli). Der ausgeprägte Jahregang wird sich laut EURAD durch die veränderte Emissionslage abschwächen. Es werden für 2010 hauptsächlich im Winter höhere Ozonwerte simuliert, bei gleich bleibenden Werten im Sommer.

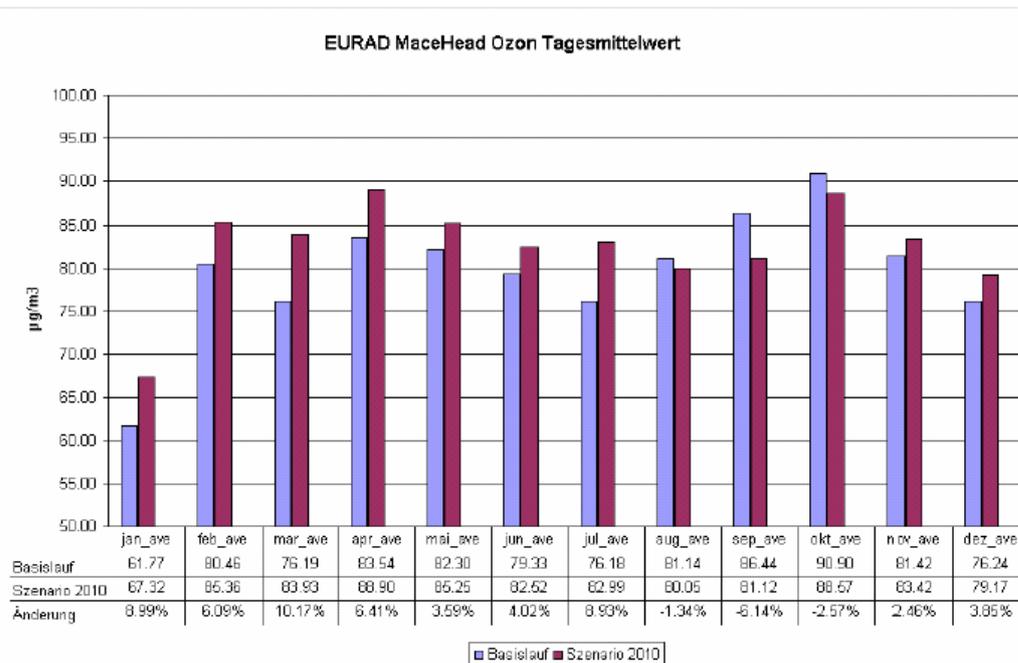


Abbildung 65 Von EURAD berechnete Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 (blaue Balken) und mit geschätzten Emissionen für das Jahr 2010 (rote Balken) und den daraus resultierenden prozentualen Änderungen: Mace Head (Irland)

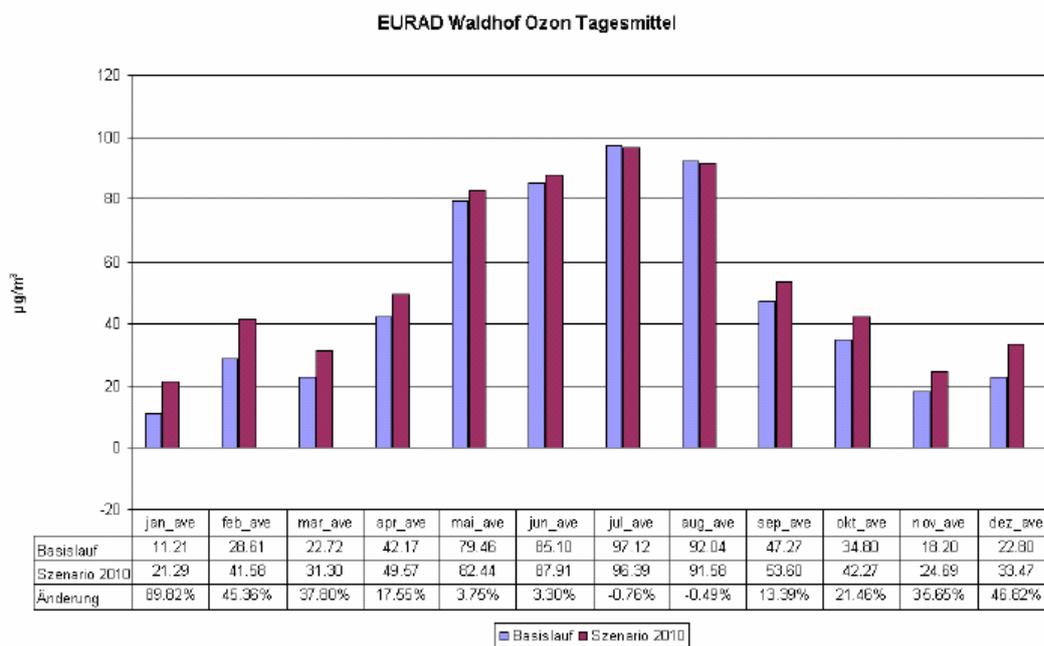


Abbildung 66 Von EURAD berechnete Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 (blaue Balken) und mit geschätzten Emissionen für das Jahr 2010 (rote Balken) und den daraus resultierenden prozentualen Änderungen: Waldhof (Deutschland)

5.2.1.2 RCG-Versionen

Abbildung 67 bis Abbildung 69 zeigen die für die Messstationen Waldhof, Zingst und Deuselbach berechneten Ozon-Jahres- und Monatsmittelwerte. Die beiden RCG-Modellversionen werden monatsweise gegenübergestellt, um den Einfluss der Randbedingungen auf die Berechnung der Ozonmittelwerte ersichtlich werden zu lassen. Im Jahresmittel wird von beiden Modellversionen eine leichte Zunahme an Ozon in Waldhof berechnet. Vor allem wird jedoch die deutlich höhere Ozonsimulation bei der RCG-EURAD-gekoppelten Version für Basislauf und Szenariolauf deutlich. Bis auf den Monat April werden alle Ozonmonatsmittel höher simuliert als mit der Standardversion. Vor allem die Wintermonate zeigen eine deutlich höhere Ozonsimulation durch die gekoppelte Version als die Sommermonatsmittel. Dies ist auf die höheren Ozonrandbedingungen am oberen Modellrand (Abbildung 41) in der EURAD-RCG-Simulation zurückzuführen. Die relativen Zu- oder Abnahmen durch die unterschiedlichen Modellversionen sind jedoch zum Großteil konform. April wird auch an den anderen untersuchten deutschen Messstationen von der Standardversion gleich hoch geschätzt wie die RCG-EURAD-Version (siehe Abbildung 68 und Abbildung 69). Die Unterschiede in den Immissionsdeltas 2001 bis 201 werden im nächsten Kapitel noch ausführlicher behandelt.

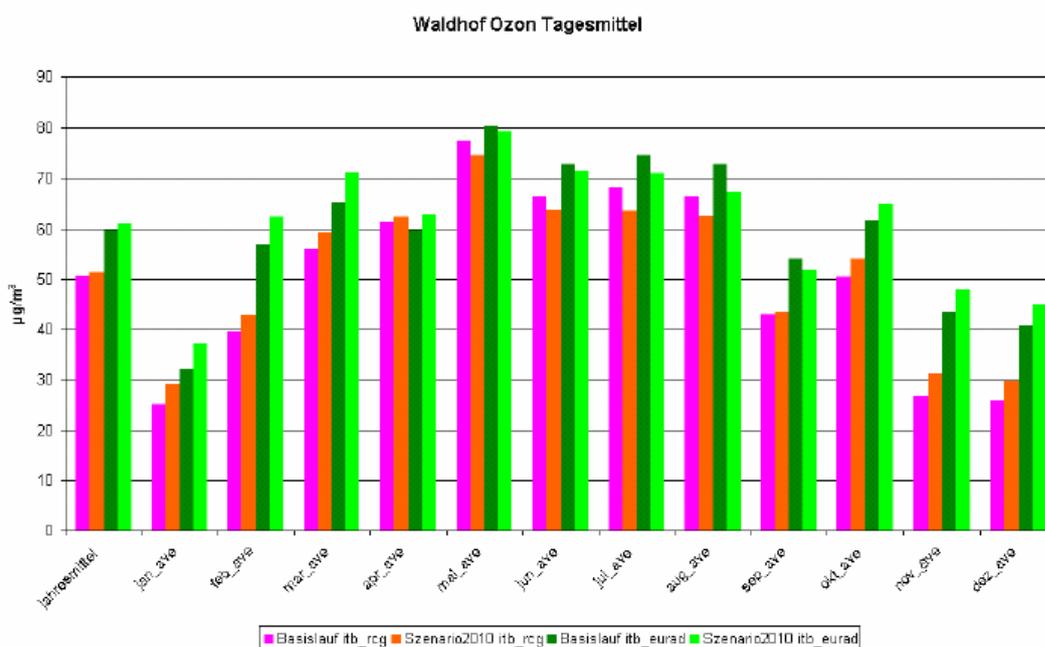


Abbildung 67 Von den zwei RCG-Versionen berechneten Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 und mit geschätzten Emissionen für das Jahr für die Messstation Waldhof: violette Balken: Standard-RCG-Berechnung des Basislaufs, orange Balken: Standard-RCG-Berechnung des Szenariolaufs 2010, dunkelgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Basislaufs, hellgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Szenariolaufs 2010.

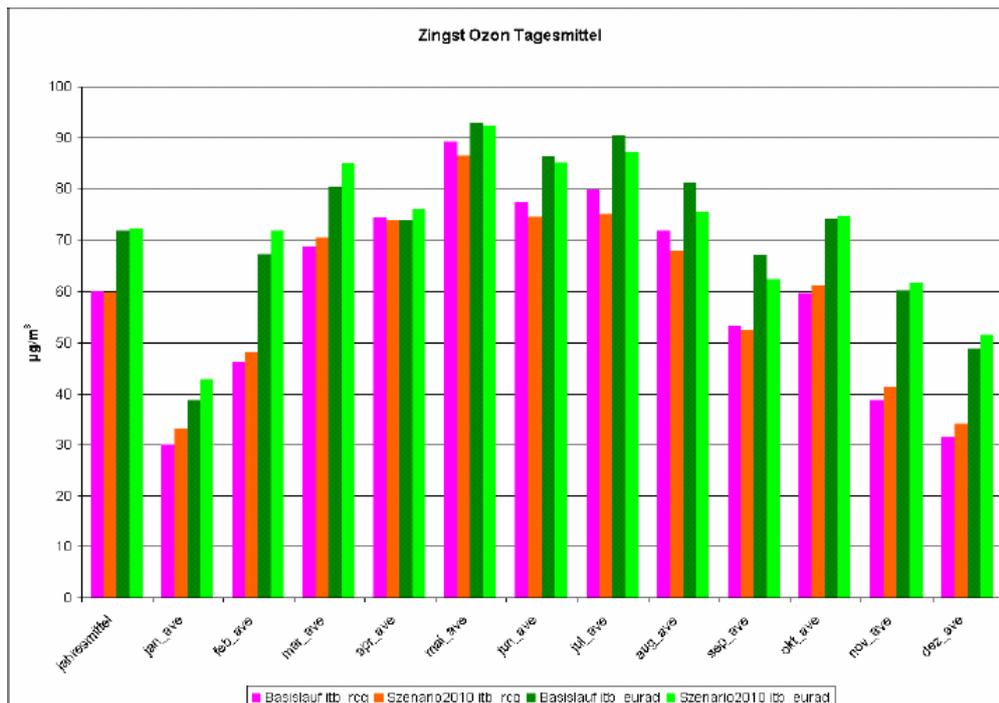


Abbildung 68 Von den zwei RCG-Versionen berechneten Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 und mit geschätzten Emissionen für das Jahr für die Messstation Zingst: violette Balken: Standard-RCG-Berechnung des Basislaufs, orange Balken: Standard-RCG-Berechnung des Szenariolaufs 2010, dunkelgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Basislaufs, hellgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Szenariolaufs 2010.

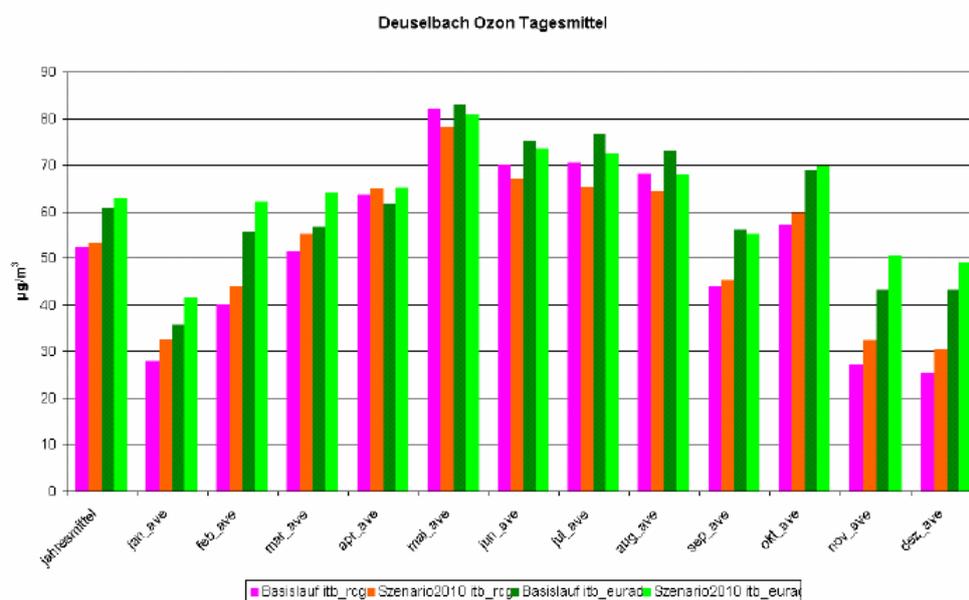


Abbildung 69 Von den zwei RCG-Versionen berechneten Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 und mit geschätzten Emissionen für das Jahr für die Messstation Deuselbach: violette Balken: Standard-RCG-Berechnung des Basislaufs, orange Balken: Standard-RCG-Berechnung des Szenariolaufs 2010, dunkelgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Basislaufs, hellgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Szenariolaufs 2010.

5.3 Unterschiede in den Immissionsdeltas 2001 bis 2010

Das Hauptaugenmerk dieser Studie liegt auf der Analyse der Auswirkungen der Randbedingungen auf die berechneten Änderungen der Schadstoffkonzentrationen aufgrund veränderter Emissionen. Es wurde bereits gezeigt, dass der Einfluss der Randbedingungen am deutlichsten bei den berechneten Ozonkonzentrationen zu erkennen ist. Unter Verwendung der EURAD-Randbedingungen wurden im Allgemeinen höhere Ozonwerte simuliert als bei Verwendung der RCG-Standard-Randbedingungen, wobei letztere allerdings zu besseren statistischen Maßen führte. In diesem Kapitel wird der Unterschied in den Immissionsdeltas genauer analysiert, da auch geringe Unterschiede in der Berechnung der Schadstoffkonzentrationsentwicklung aufgrund veränderter Emissionsfelder wichtig in der Beurteilung von Maßnahmen sein können, wenn zum Beispiel mit einer Modellversion geringe Zunahmen, mit einer anderen Modellversion aber geringe Abnahmen prognostiziert werden.

5.3.1 Flächendarstellungen

5.3.1.1 Ozon

Abbildung 70 zeigt die Differenz der Immissionsdeltas (Unterschiede in der Simulation mit den Emissionen 2010, bzw. 2000) für das Ozon-Jahresmittel aus den Simulationen mit der RCG-Standard-Version (konstante klimatologische Randbedingungen) und der RCG-EURAD-Version (verschiedenen Randbedingungen für Basisimulation und Szenariolauf 2010). Die Emissionsänderung im RCG-Modellgebiet ist bei allen Läufen dieselbe und entspricht dem CLE-Szenario 2010. Die Immissionsdeltas selbst sind in Abbildung 55 zu finden. Die Unterschiede in den Immissionsdeltas bewegen sich zwischen -2.7 und $+1.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Mit der RCG-Standard-Version werden im räumlichen Mittel über Mitteleuropa geringere Ozonänderungen aufgrund der Emissionsprognose 2010 berechnet als mit der RCG-EURAD-Version. Im Ruhrgebiet ergibt die Standard-RCG-Version bis 2010 Ozonzunahmen von ca. 4 bis $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die RCG-EURAD-Version hingegen von 5 bis $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Differenz dieser zwei Prognosen für das Ruhrgebiet ist damit ca. 1 bis $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (siehe Abbildung 70). Die größten Unterschiede in den Prognosen aufgrund der unterschiedlichen Modellversionen lassen sich in den Ballungsgebieten Europas erkennen. So werden beispielsweise in Mittelengland und London mit RCG-EURAD um bis zu über $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höhere Ozonzunahmen vorhergesagt als mit der RCG-Standard-Version, über den ländlichen Gebieten Westeuropas und über der Nordsee betragen die Unterschiede zwischen den Immissionsdeltas beider Läufe circa $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Im Osten und im Norden des Simulationsgebietes sind die Unterschiede in den Prognosen sehr gering und bewegen sich zwischen $\pm 0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Tendenz der Unterschiede in den beiden Immissionsdeltas, d.h. stärkere Zunahme oder stärkere Abnahme, kann aus den hier vorgestellten Differenzabbildungen eindeutig nur in den Gebieten bestimmt werden, in dem das Vorzeichen der Änderung in beiden Läufen übereinstimmt. Dies ist in den großen Ballungsgebieten immer gegeben. In Gebieten, in denen die eine Modellversion Zunahmen, die andere dagegen Abnahmen prognostiziert, liefert die Differenzbildung der Immissionsdeltas dagegen keine eindeutige Aussage. Hier sollte nur der Absolutbetrag der Änderung betrachtet werden und es sei auf die Abbildungen verwiesen, in denen die Immissionsdeltas der beiden Versionen getrennt dargestellt werden (Kap. 5).

Die Unterschiede in den Sommerprognosen (Abbildung 71) sind sehr viel geringer als die Unterschiede in den Winterprognosen (Abbildung 72). Im Winter simuliert RCG-EURAD größere Ozonzunahmen in den

Ballungsgebieten Europas als RCG-Standard, da die Stickoxide in diesen Gebieten stärker abnehmen als bei der RCG-Standard-Version (siehe Abbildung 73), was zu einer größeren Verminderung des Titrationseffekts führt. Während sich die Immissionsdeltas im Sommer im Ruhrgebiet und in der Poebene nur um max. $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ unterscheiden, ergeben sich im Winter in den Ballungsgebieten aufgrund der unterschiedlichen Behandlung der einströmenden Schadstoffe Unterschiede in den Ozon-Deltas bis über $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

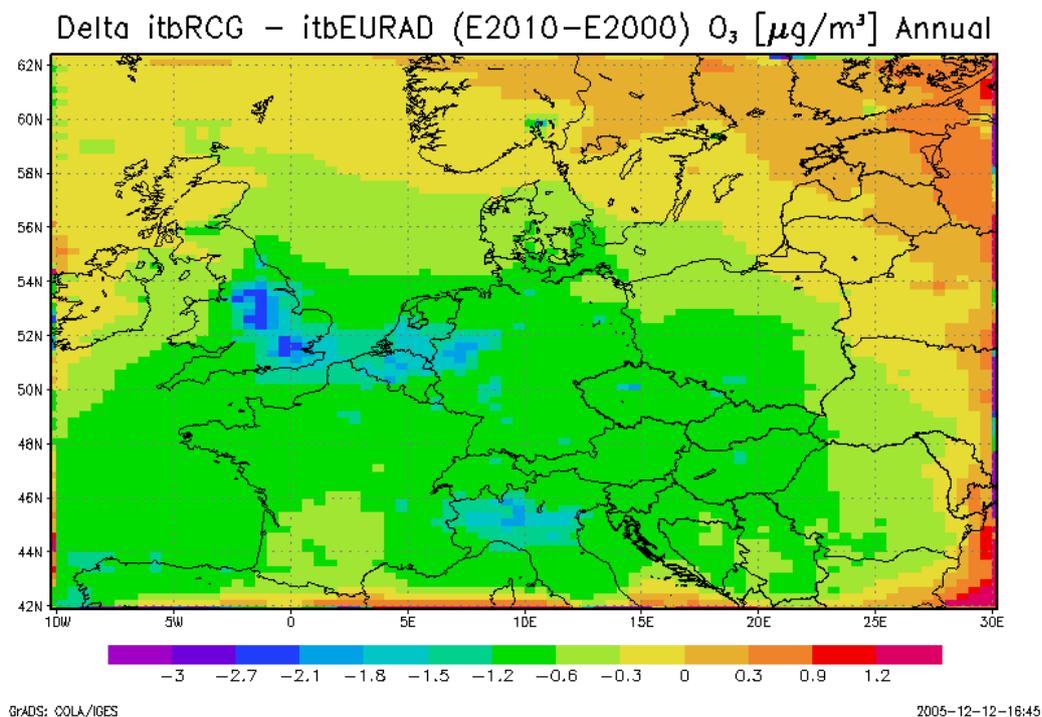


Abbildung 70 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der Ozon-Jahresmittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000))

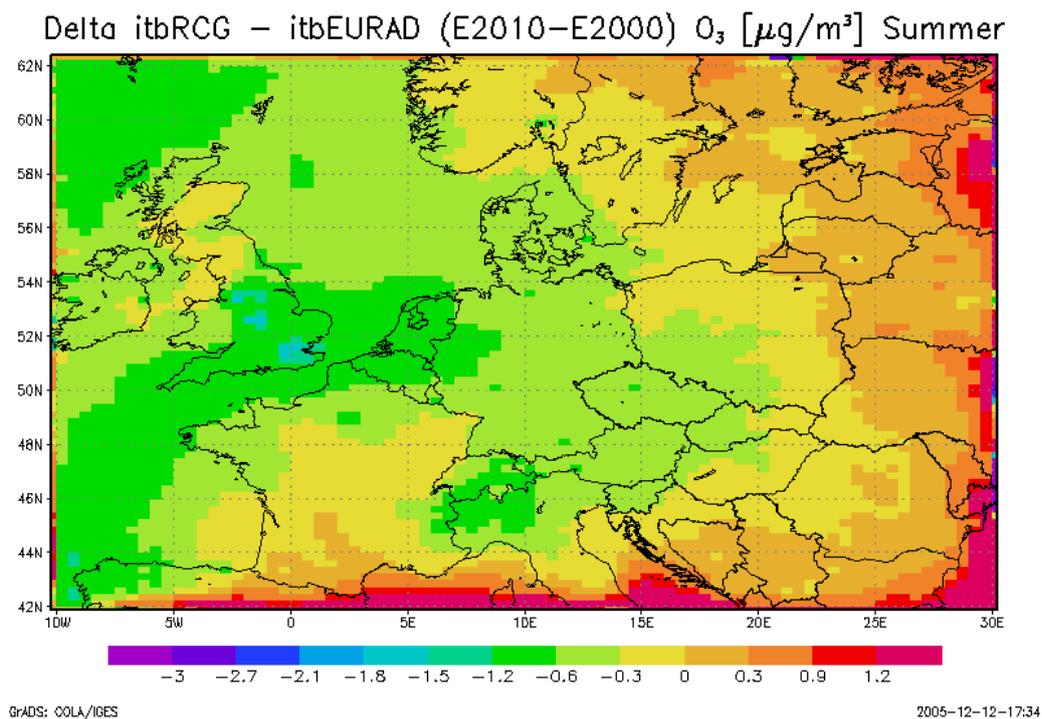


Abbildung 71 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der Ozon-Sommertelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000))

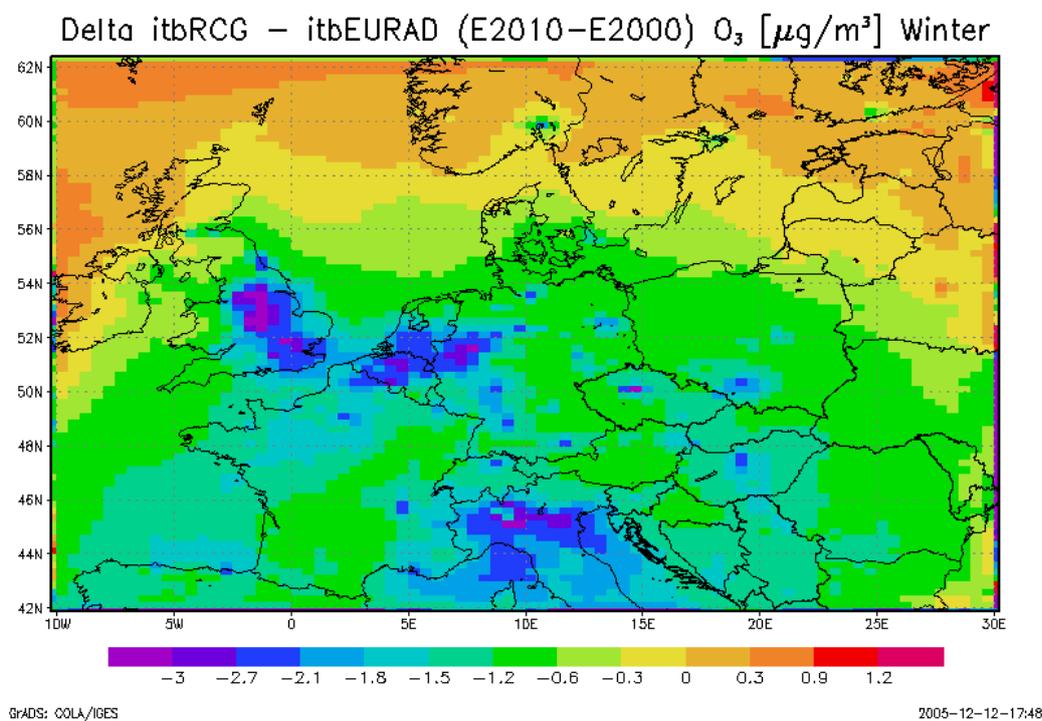


Abbildung 72 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der Ozon-Wintertelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000))

5.3.1.2 NO₂

Im Jahresmittel werden in den Ballungsgebieten mit RCG-EURAD höhere NO₂-Minderungen prognostiziert als mit RCG-Standard (Abbildung 73). Die Differenzen zwischen den zwei NO₂-Deltas, die jeweils als Folge der Emissionsveränderung von 2000 nach 2010 berechnet wurden, sind aber relativ gering und liegen unter 2.5 µg/m³ in Mittelengland und unter 2 µg/m³ im Ruhrgebiet. Dies entspricht in etwa 10 bis 20% der Gesamtänderung durch die Emissionsabnahme bezogen auf den RCG-Standardlauf. Im Rest des Simulationsgebietes werden so gut wie keine unterschiedlichen Werte prognostiziert.

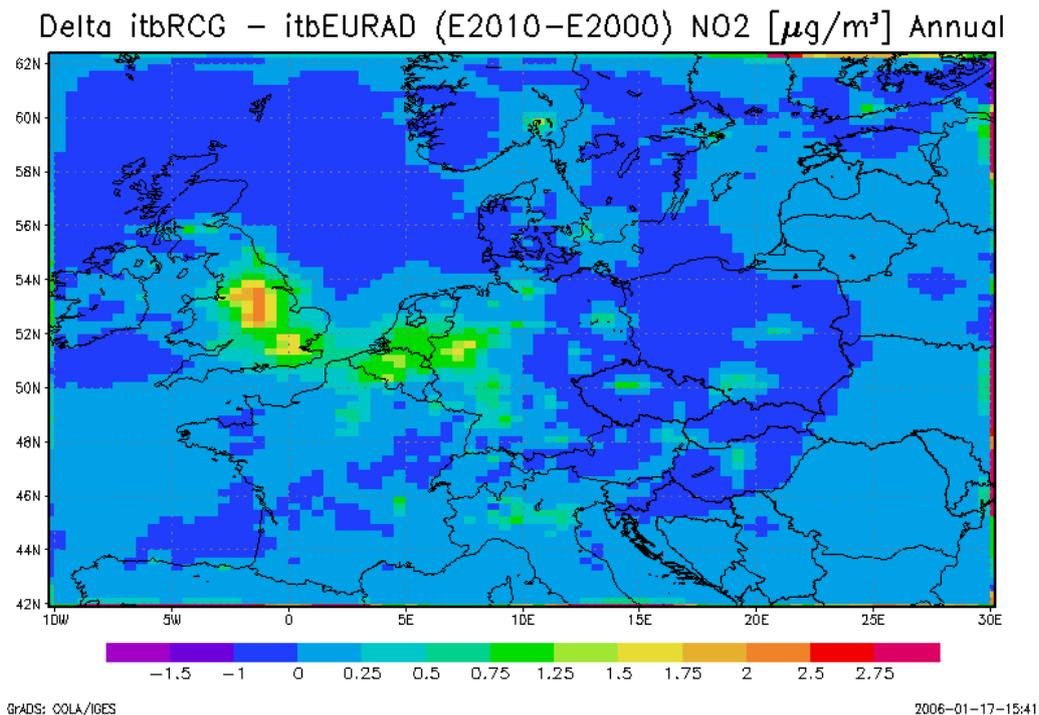


Abbildung 73 Differenz (in µg/m³) der NO₂-Jahresmittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)). Positive Zahlen bedeuten eine größere Reduktion der NO₂-Jahresmittelwerte vom Emissionszustand 2000 nach 2010 bei Verwendung der EURAD-Randbedingungen als bei Verwendung der RCG-Standardbedingungen.

5.3.1.3 PM₁₀

Die geringsten Unterschiede in den Immissionsdeltas ergeben sich für die PM₁₀-Prognose. Hier simulieren beide Modellversionen über weite Teile Europas sehr ähnliche PM₁₀-Änderungen. Wie schon bei NO₂, jedoch weit geringer in der relativen Bedeutung, werden von RCG-EURAD in den Ballungsgebieten höhere Änderungen in den Jahresmitteln prognostiziert als von RCG-Standard (Abbildung 74). Der saisonale Einfluss ist jedoch, wie schon bei Ozon, auch bei PM₁₀ bemerkbar. So werden auch bei dieser Spezies im Winter deutlich höhere Änderungen vor allem über den Ballungsgebieten prognostiziert, werden EURAD-Randbedingungen benutzt, als im Sommer (Abbildung 75 und Abbildung 76).

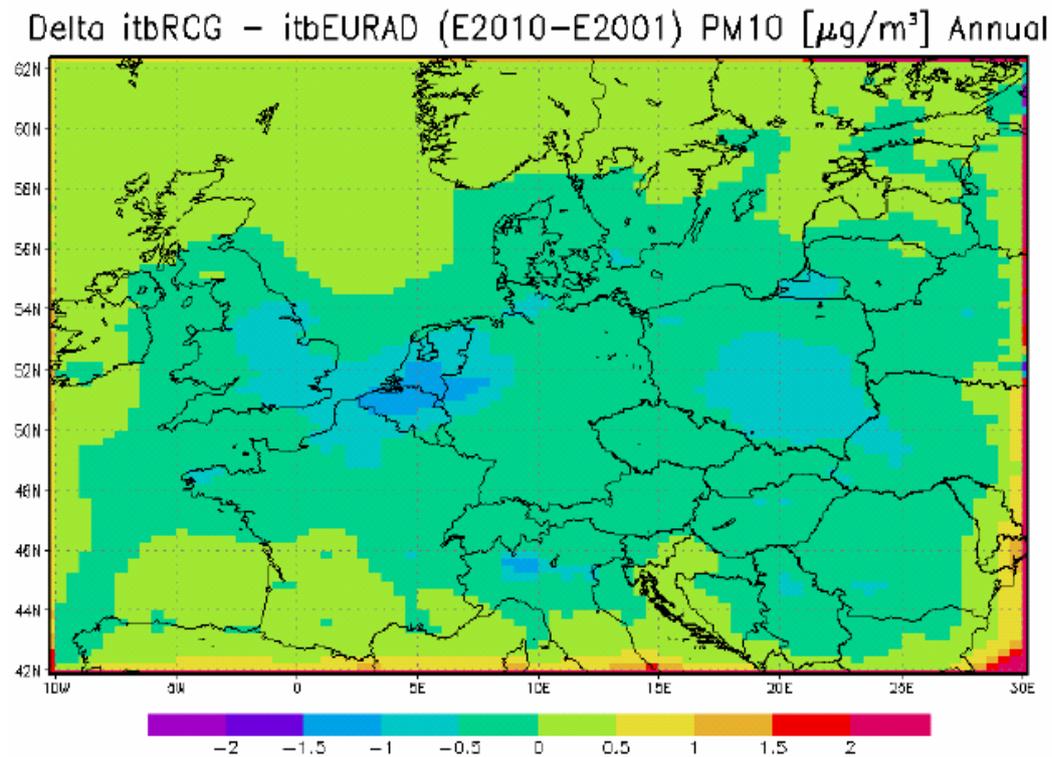


Abbildung 74 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der PM10-Jahresmittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000))

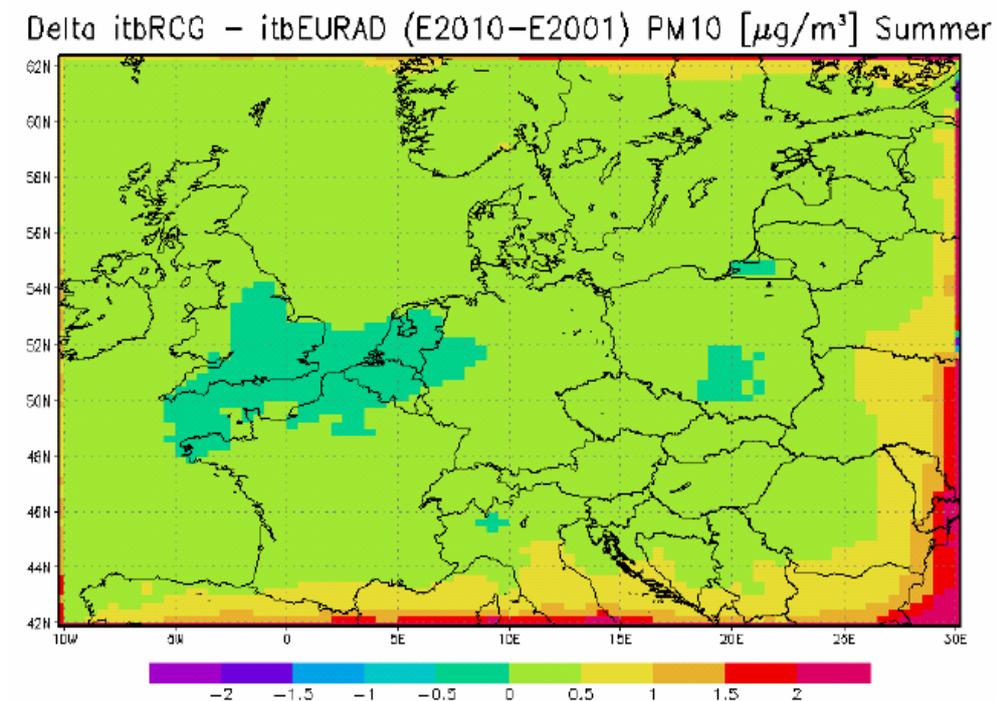


Abbildung 75 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der PM10-Sommermittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000))

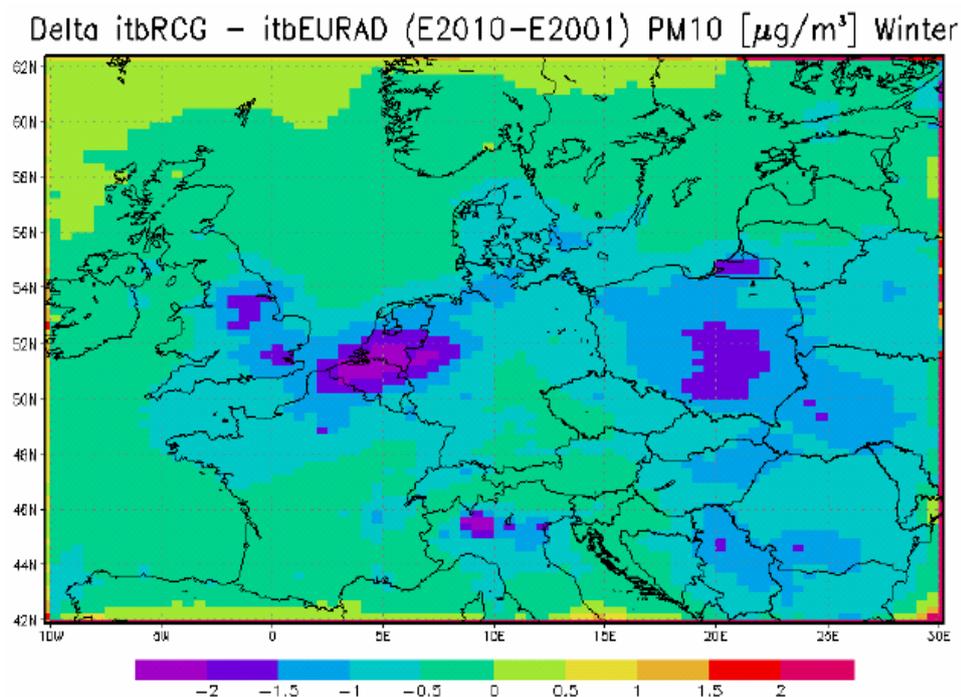


Abbildung 76 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der PM10-Wintermittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000))

5.3.2 Monatsmittel für Ozon an ausgewählten Stationen

Es werden die Immissionsdeltas an ausgewählten Stationen dargestellt. Wieder wurden diese Änderungen zum einen mit der Standardversion RCG, zum anderen mit der auf den EURAD-Randbedingungen basierenden RCG-EURAD-Version berechnet. Es wurde bereits ausgeführt, dass sich die Ergebnisse der beiden Modellversionen vor allem für Ozon unterscheiden, sowohl in der Simulation des Basislaufes als auch in der Simulation der Emissionssituation 2010. Deshalb wird hier an den gewählten Stationen nur das Verhalten der beiden Modellversionen in der Zu- und Abnahmeberechnung für Ozon dargestellt.

Abbildung 77 bis Abbildung 82 stellen die mit den beiden Modellversionen berechneten Ozonänderungen bis 2010 in Waldhof, Zingst und Deuselbach dar. Grundsätzlich wird von beiden Modellversionen in Waldhof eine Ozonzunahme im Januar, Februar, März und Oktober, November und Dezember vorhergesagt. Im Mai, Juni, Juli und August ergeben sich mit beiden Versionen Abnahmen der Ozonkonzentration. Die Tendenzen stimmen also bis auf den September überein, die absoluten Änderungen sind jedoch teils sehr unterschiedlich bei den beiden Modellversionen. So werden zum Beispiel im März in Waldhof von RCG-Standard ca. $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozonzunahme, von RCG-EURAD hingegen ca. $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ vorhergesagt. Auch relativ können Änderungen aufgrund unterschiedlicher Randbedingungen beobachtet werden. So werden für den Januar in Waldhof absolut von RCG-EURAD höhere Ozonzunahmen prognostiziert, relativ aber werden von RCG-Standard höhere Zunahmen vorhergesagt. Für den September wird von RCG-EURAD sowohl absolut als auch relativ in Waldhof eine Ozonabnahme prognostiziert, von RCG-Standard hingegen eine Ozonzunahme. Dieses Phänomen tritt auch in Zingst im April auf. Auch hier werden von den zwei Modellversionen grundsätzlich unterschiedliche Aussagen über das Ozonverhalten aufgrund veränderter Emissionen gemacht. Relative Ab- oder Zunahmen sind unterschiedlich für

Oktober in Zingst. Auch in Deuselbach gibt es sich widersprechende Aussagen über die Ozonänderungen bis 2010.

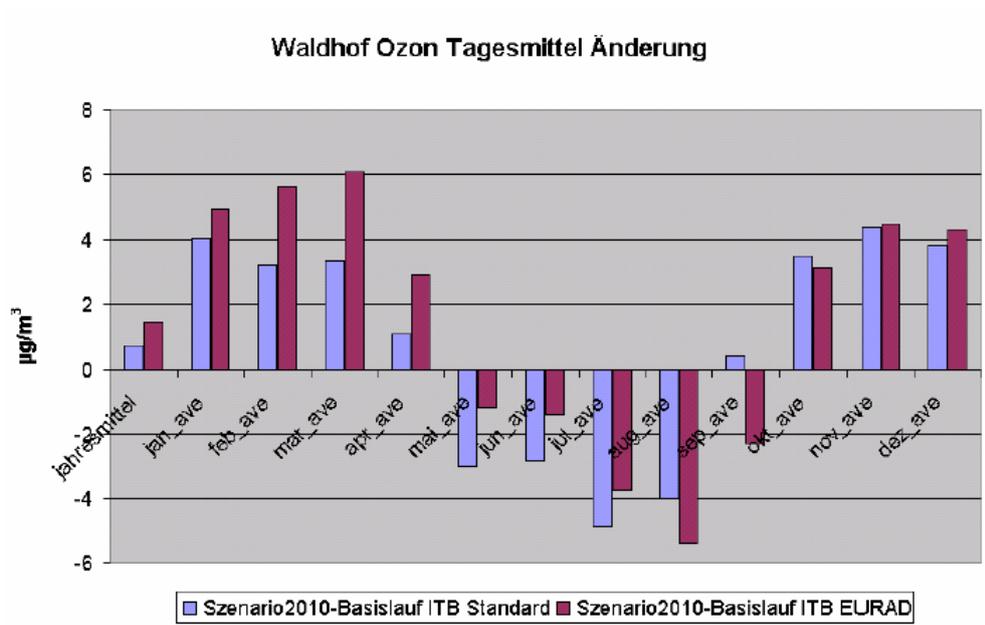


Abbildung 77 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Ozon in Waldhof, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD

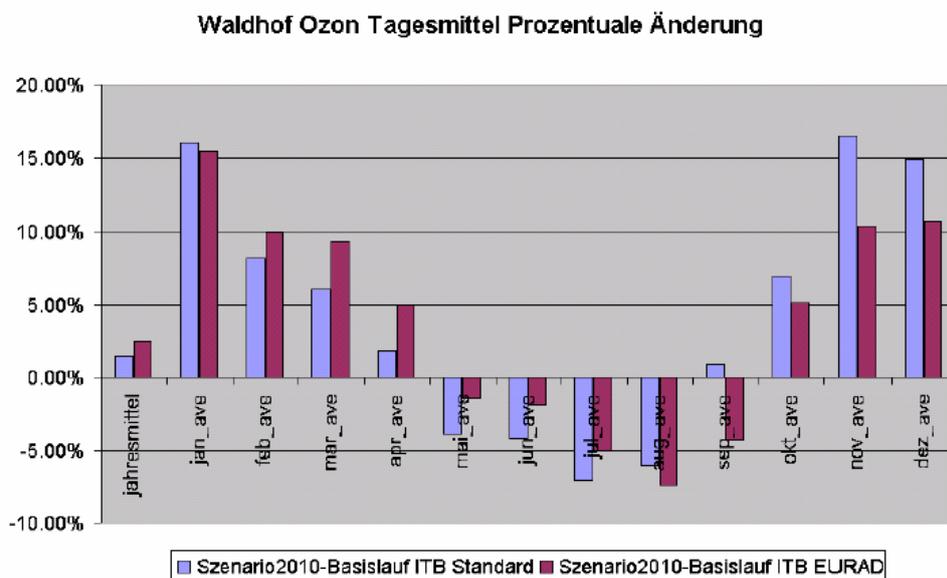


Abbildung 78 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in % an Ozon in Waldhof, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD

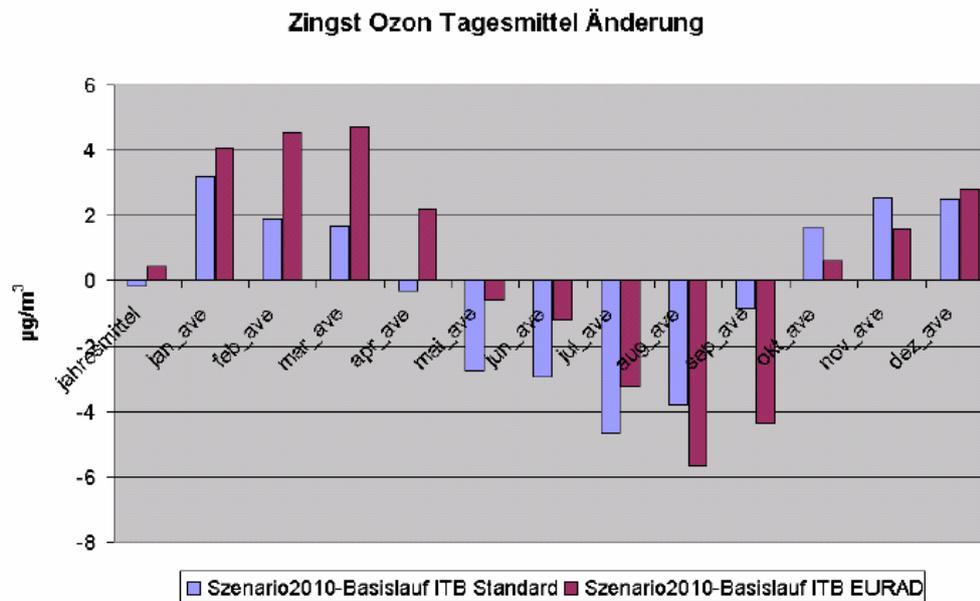


Abbildung 79 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Ozon in Zingst, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD

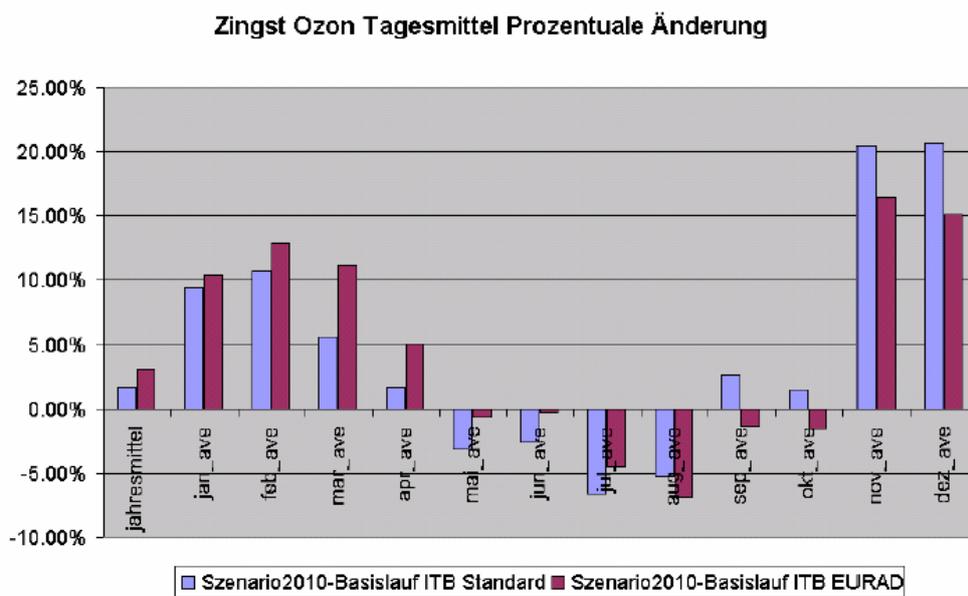


Abbildung 80 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in % an Ozon in Zingst, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD

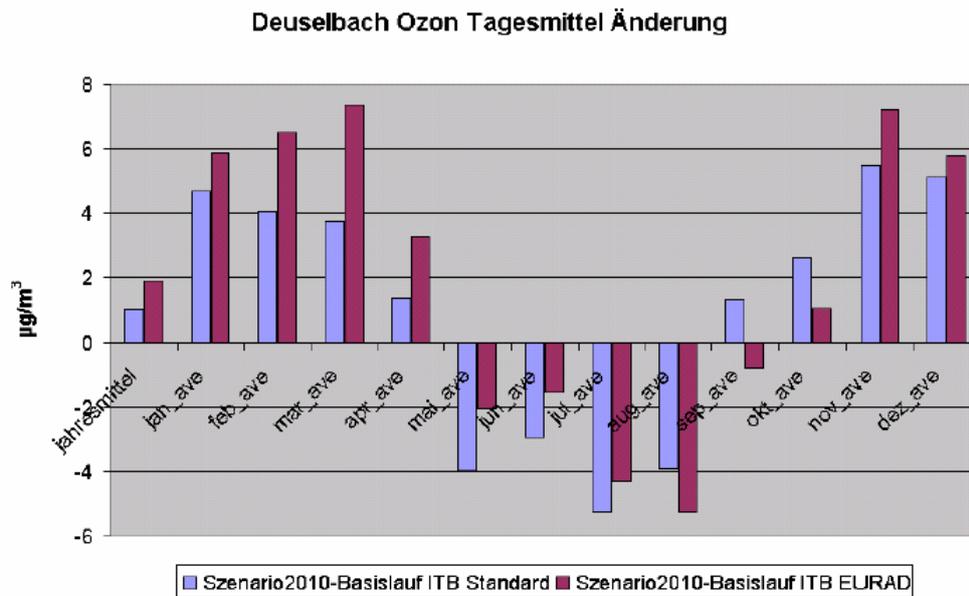


Abbildung 81 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in µg/m³ an Ozon in Deuselbach, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD

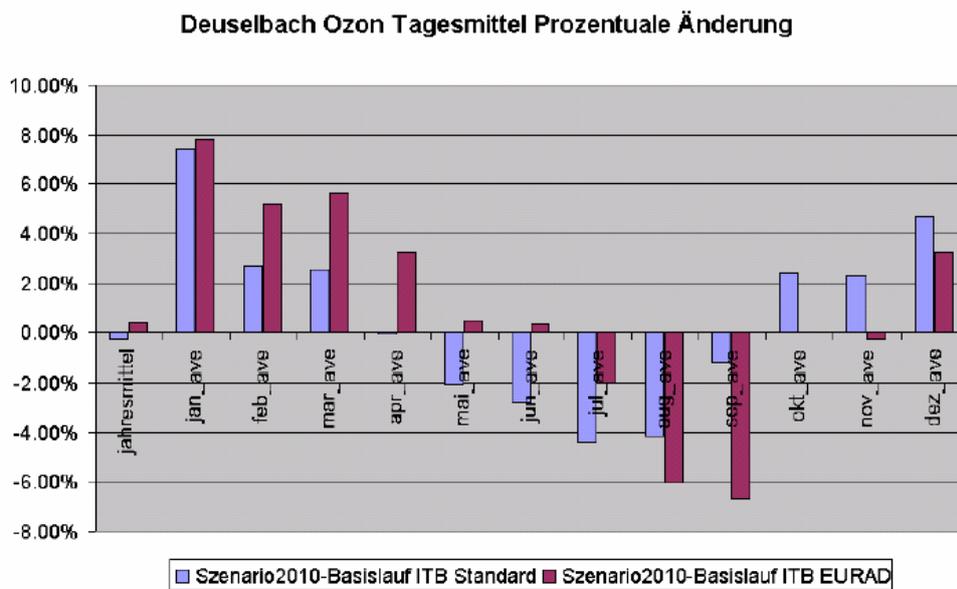


Abbildung 82 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in % an Ozon in Deuselbach, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD

5.4 Bewertung

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Wahl der Randbedingungen in den hier vorgestellten Läufen für Ozon eine wichtige Einflussgröße ist. Grundsätzlich werden für die RCG-Modellversion, die als seitliche und obere Randbedingungen die Ergebnisse des Hemisphärenmodells EURAD verwendet, deutlich höhere Bodenozonkonzentrationen berechnet als für die RCG-Version mit den klimatologischen Standardbedingungen. Ursache dafür sind vor allem die hohen Ozonkonzentrationen des EURAD-Modells in der mittleren Troposphäre, die deutlich höher liegen als diejenigen, die aus den Logan-Daten abgeleitet werden können (siehe Abbildung 41). Die hohe obere EURAD-Randbedingung drückt sich infolge des vertikalen Austauschs bis zum Boden durch und führt dazu, dass mit der RCG-EURAD-Version am Boden durchweg höhere Ozonkonzentrationen berechnet werden als mit der RCG-Standardversion. Die höheren Ozonkonzentrationen bewirken dann vor allem im Winter in den Ballungsgebieten mit hohen NO_x-Emissionen auch höhere NO₂-Konzentrationen, da mehr NO durch Ozon in NO₂ umgewandelt wird. Beim PM₁₀ sind die Unterschiede am geringsten, aber auch hier werden mit der RCG-EURAD-Version höhere Konzentrationen berechnet als mit der RCG-Standard-Version, da die Aerosolkonzentrationen der EURAD-Läufe relativ hoch sind.

Bei der Beurteilung des Einflusses der Randbedingungen auf die Immissionsprognose 2010 müssen 2 Punkte beachtet werden:

- Die Unterschiede in der Basissimulation
- Die Unterschiede in den Randbedingungen 2010

In der RCG-EURAD-Version stammen die Randbedingungen aus einem EURAD-Lauf, der die hemisphärische Emissionssituation 2010 beschreibt, bei der RCG-Standard-Version werden dagegen für 2010 dieselben klimatologischen Randbedingungen benutzt wie für die Basissimulation. Der Abbildung 83 kann man entnehmen, dass sich die für die RCG-EURAD Läufe verwendeten Randbedingungen für die Ist-Situation und das Emissionsszenario 2010 sehr viel weniger unterscheiden als die klimatologischen Randbedingungen der RCG-Standard-Version und die aus den EURAD-Läufen für 2010 abgeleiteten Randbedingungen. Dies bedeutet, dass die Unterschiede der Randbedingungen von der Ist-Situation zur Situation 2010 bei beiden Paaren von Simulationen (RCG-Standard Ist-Zustand und 2010, RCG-EURAD Ist-Zustand und 2010) sehr viel geringer sind als die Unterschiede zwischen den klimatologischen Randbedingungen und den aus den EURAD-Läufen abgeleiteten Randbedingungen. Damit sind die Unterschiede in den Immissionsdeltas auch weniger auf die zeitliche Variation der Randbedingungen als auf die unterschiedlichen Konzentrationsniveaus der Basissimulationen zurückzuführen.

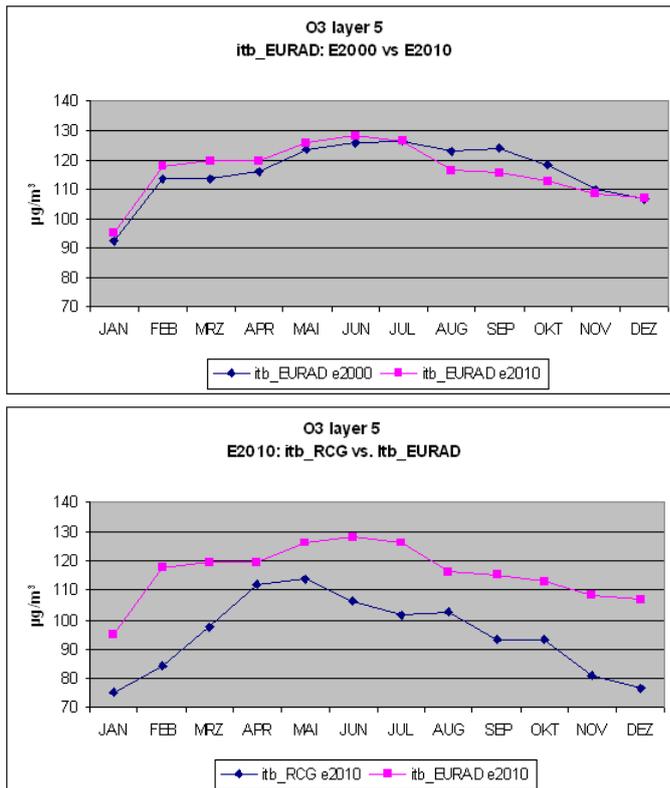


Abbildung 83 Obere Ozon-Randbedingung im RCG-Modell nach Logan (RCG-Standard) und nach EURAD (RCG-EURAD-Version). Monatsmittelwerte gemittelt über alle horizontalen Zellen des Modellgebiets. Oben: EURAD 2000 und EURAD 2010. Unten: RCG 2010 und EURAD 2010.

6 Sensitivitätsuntersuchungen

6.1 RCG nur mit den seitlichen Randbedingungen von EURAD

In diesem Rechenlauf wurden nur für die seitlichen Konzentrationsflüsse die Ergebnisse der hemisphärischen EURAD-Berechnungen verwendet. Die oberen Randbedingungen entsprechen den Werten der RCG-Standardversion. Es sei nochmals angemerkt, dass eine Berücksichtigung des hemisphärischen Hintergrunds in einer kontinentaleuropäischen Modellanwendung aber eine Modellkoppelung benötigt, die die seitlichen und die oberen Randbedingungen umfasst. Die folgenden Berechnungen, die für das Basisjahr 2001 unter Verwendung der TNO2000 Emissionen durchgeführt wurden sollen daher nur zur Einschätzung der Bedeutung der beiden Ränder dienen. Abbildung 84 zeigt die Differenz der Ozonkonzentrationen zwischen dem Lauf mit den lateralen Randbedingungen von EURAD (RCG-L-EURAD) und dem RCG-Standardlauf. Ersetzt man die seitlichen klimatologischen Randbedingungen des RCG-Modells mit den EURAD-Werten, ergeben sich für Deutschland Zunahmen der Ozonjahresmittelwerte zwischen $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den Ballungsgebieten bis zu $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den ländlichen Regionen. Vor allem am westlichen Rand des Modellgebiets machen sich die höheren Werte des EURAD-Modells stark bemerkbar. Die Zunahmen durch die Änderung der seitlichen Randbedingungen werden hauptsächlich in den Wintermonaten produziert, im Wintermittelwert liegen die Unterschiede zwischen $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Süden Deutschlands und $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in den Küstenregionen der Nordsee. im Sommer sind sie dagegen in Deutschland gering. Diese Werte können direkt mit denen in Abbildung 19 bis Abbildung 24 verglichen werden, die die Unterschiede zwischen der RCG-Standardversion und der RCG-EURAD-Version zeigt. In der letzteren wurden für die seitlichen und die oberen Randbedingungen die Ergebnisse der EURAD-Rechenläufe benutzt. Es ist offensichtlich, dass in den zentralen Regionen des Modellgebiets, die nicht in Meernähe liegen, mehr als die Hälfte der Unterschiede zwischen RCG-EURAD und RCG-Standard durch die Unterschiede in der oberen Randbedingung bewirkt wird.

Abbildung 85 zeigt dieselbe Auswertung für NO_2 . Der Vergleich mit Abbildung 26 macht deutlich, dass auch die NO_2 -Unterschiede zwischen den Modellversionen in den zentralen Regionen des Modellgebiets zu mehr als der Hälfte durch die obere Randbedingung verursacht werden. Lediglich in England, das unter dem starken Einfluss der westlichen seitlichen Randbedingung liegt, kommt der seitlichen Randbedingung eine gleichwertige Bedeutung wie der oberen Randbedingung zu. Es wurde bereits ausgeführt, dass die Auswirkung der Randbedingungen auf die NO_2 -Konzentrationen ein indirekter Effekt ist, der mit der Veränderung der Ozonkonzentrationen zusammenhängt.

Der Einfluss der Randbedingungen auf die PM_{10} -Konzentrationen ist insgesamt geringer als derjenige auf NO_2 und Ozon, insbesondere in den Ballungsgebieten mit hohen PM_{10} -Konzentrationen. Die Differenzen der Versionen RCG-L-EURAD – RCG-Standard sind auch für PM_{10} deutlich kleiner (Abbildung 86) als diejenigen der Versionen RCG-EURAD – RCG-Standard (Abbildung 29), d.h. auch bei den PM_{10} -Komponenten spielen die oberen Randbedingungen in den zentralen Modellregionen eine größere Rolle als die seitlichen Randbedingungen. Es muss aber auch hier betont werden, dass die EURAD-Aerosolkonzentrationen sehr hoch sind, wodurch auch den Beitrag der oberen Randbedingungen zu den Bodenkonzentrationen in der RCG-EURAD-Version relativ hoch werden kann.

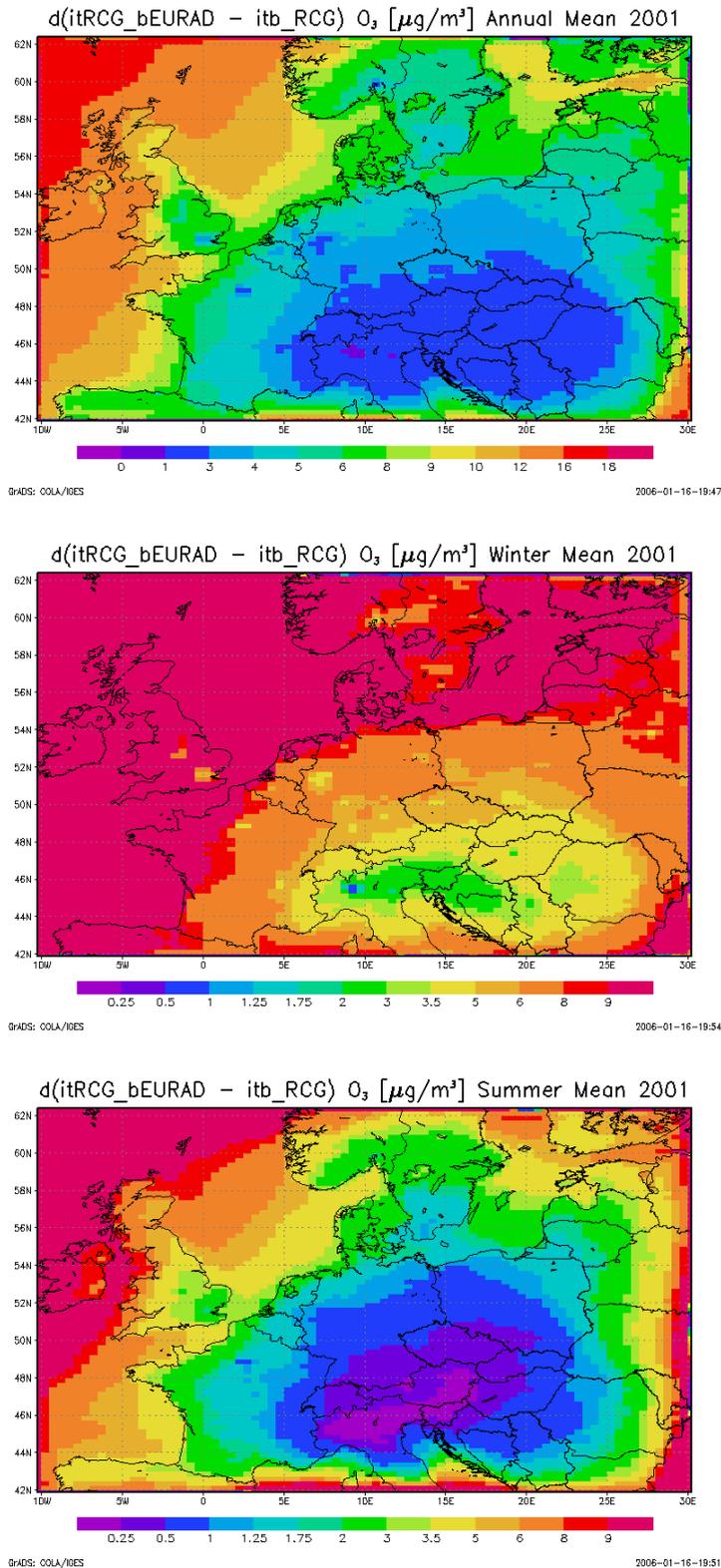


Abbildung 84 Differenz der RCG-Versionen: RCG-L-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Jahres-, Winter- und Sommermittelwerte an Ozon. Die Abbildungen sind autoskaliert.

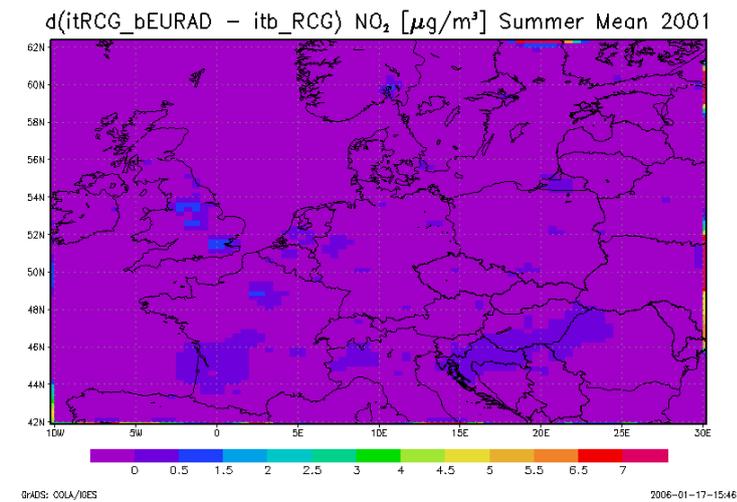
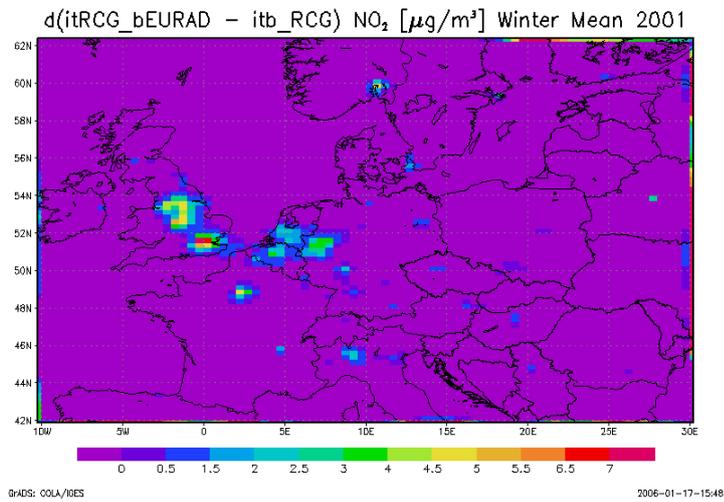
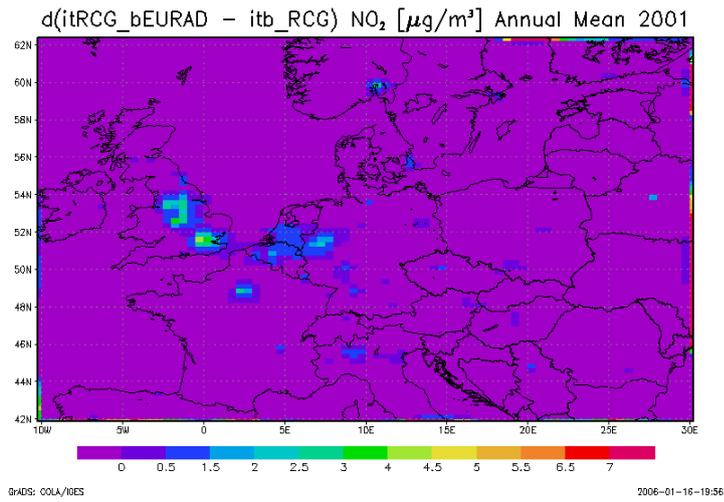


Abbildung 85 Differenz der RCG-Versionen: RCG-L-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. NO₂-Jahres-, Winter- und Sommermittelwerte. Die Abbildungen sind autoskaliert.

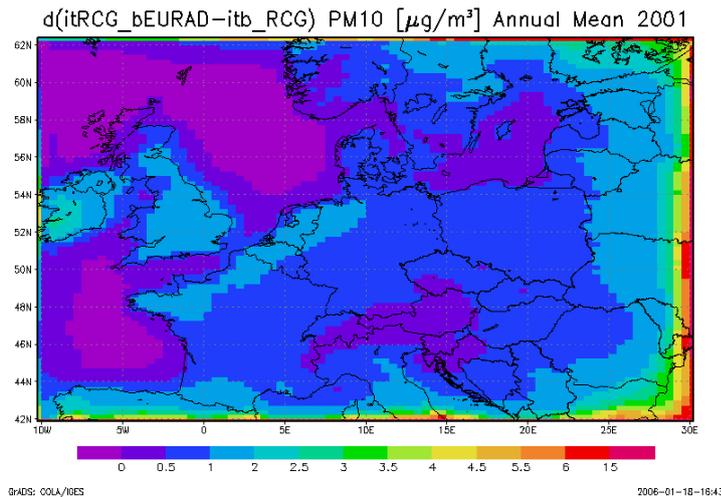


Abbildung 86 Differenz der RCG-Versionen: RCG-L-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. PM10-Jahresmittelwerte.

6.2 RCG mit Null-Randbedingungen

Um grundsätzliche Aussagen über die Bedeutung der Randbedingungen auf die Konzentrationen im Simulationsgebiet machen zu können, wurde zusätzlich ein Basislauf gestartet, in dem die seitlichen, oberen und Anfangsbedingungen auf Null gesetzt wurden. Die Ergebnisse dieses hypothetischen Rechenlaufs stellen den maximalen Einfluss der Randbedingungen auf die berechneten Konzentrationen dar. Betrachtet wurden wiederum die Schadstoffe Ozon, NO_2 und PM10. Alle weiteren Eingangsdaten wurden nicht geändert.

6.2.1 Ozon

Abbildung 87 stellt die mittlere Jahreskonzentration an Ozon dar, die zum einen (links) mit Null-Randbedingungen, zum anderen (rechts) mit klimatologischen Randbedingungen berechnet worden ist. Das Ozonniveau sinkt von der standardmäßigen Berechnung von bis zu $90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über den Meeren auf maximale 30 bis $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über der Poebene und über der Adria. Vor allem die über der Nordsee nimmt die berechnete Ozonkonzentration bei Vernachlässigung der Randbedingungen drastisch ab. Werden mit der Standard-Version Werte von über $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahresmittel berechnet und stellen ein räumliches Maximum dar, so werden diese Werte mit der RCG-Version mit Null-Randbedingungen minimal simuliert und liegen bei ca. 5 – $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Flächenverteilung ist zum größten Teil unabhängig von der Jahreszeit (siehe Abbildung 88 und Abbildung 89). Sowohl im Sommer als auch im Winter werden die berechneten Ozonwerte über der Nordsee minimal berechnet, wenn keine Ozonwerte über die seitlichen und oberen Randbedingungen in das Simulationsgebiet fließen. Die Niveaus zwischen den Jahreszeiten sind sehr unterschiedlich. Im Winter reicht der Einfluss der westlichen und nördlichen seitlichen Randbedingungen weiter in das zentrale Simulationsgebiet als im Sommer. Dies wird vor allem in den prozentualen Änderungen der berechneten Ozonwerte deutlich (Abbildung 90, Abbildung 91 und Abbildung 92). Im Jahresmittel ist der Einfluss der Randbedingungen vor allem im Nordwesten des Simulationsgebietes, d.h. über der Nordsee, am stärksten und bedingt dort fast vollständig den Ozonaufbau. Am schwächsten ist der Einfluss in der Poebene, wo er auf ca. 50% im Jahresmittel geschätzt werden kann. Die Ozonbildung in Deutschland wird zu ca. 60% von den Ozonwerten an den Modellrändern bedingt. Es

wird daran erinnert, dass auch die Randbedingungen am oberen Modellrand auf Null gesetzt worden sind. Der Einfluss der unterschiedlichen Ränder wurde nicht getrennt analysiert. Es lässt sich jedoch ein klarer West-Ost-Gradient in der Einflussbedeutung der Randbedingungen auf das Ozonniveau erkennen. Des Weiteren lässt sich sehr deutlich eine Unterscheidung zwischen Land und Meer erkennen: über den Meeren ist der Einfluss größer als über Land. Dies ist vor allem im Winter sehr gut zu erkennen: während der kalten Jahreszeit tragen fast nur die Randbedingungen zu dem Ozonaufbau über Wasser bei. Die geringste Bedeutung haben die Randwerte auf die Poebene, die weitgehend abgeschirmt von maritimem Einfluss, infolge ihrer hohen Emissionen verbunden mit starker sommerlicher Einstrahlung eine autarke Ozonbildung zulässt.

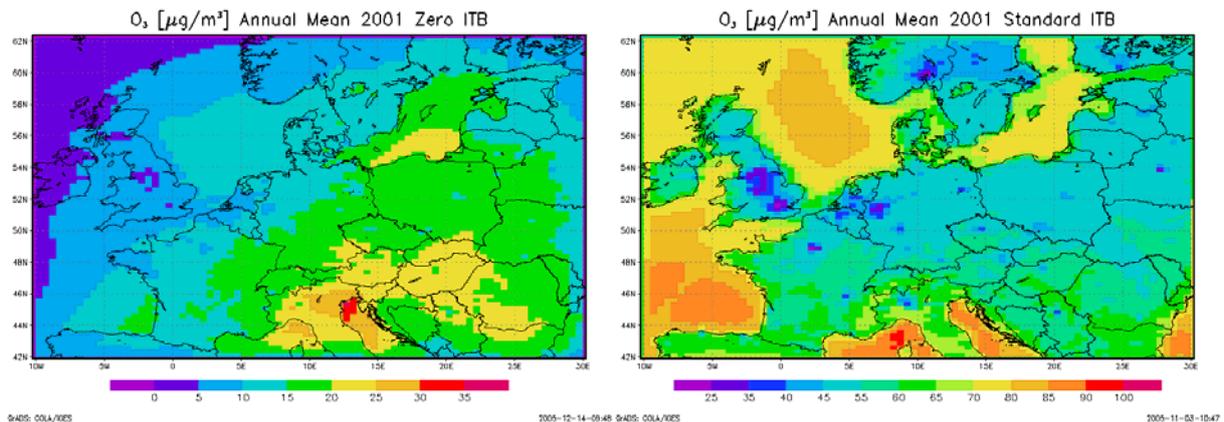


Abbildung 87 Jahresmittelwert Ozon in µg/m³: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen

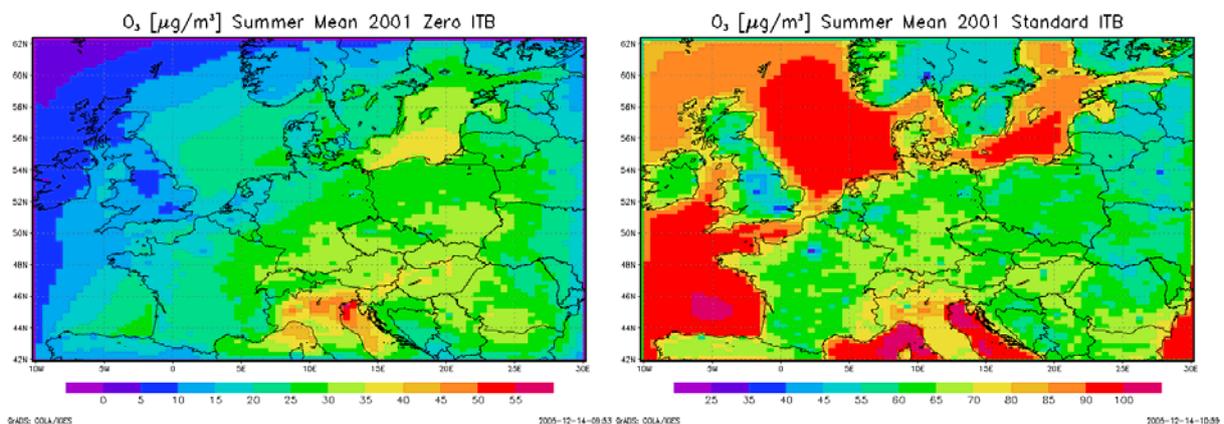


Abbildung 88 Sommermittelwert Ozon in µg/m³: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen

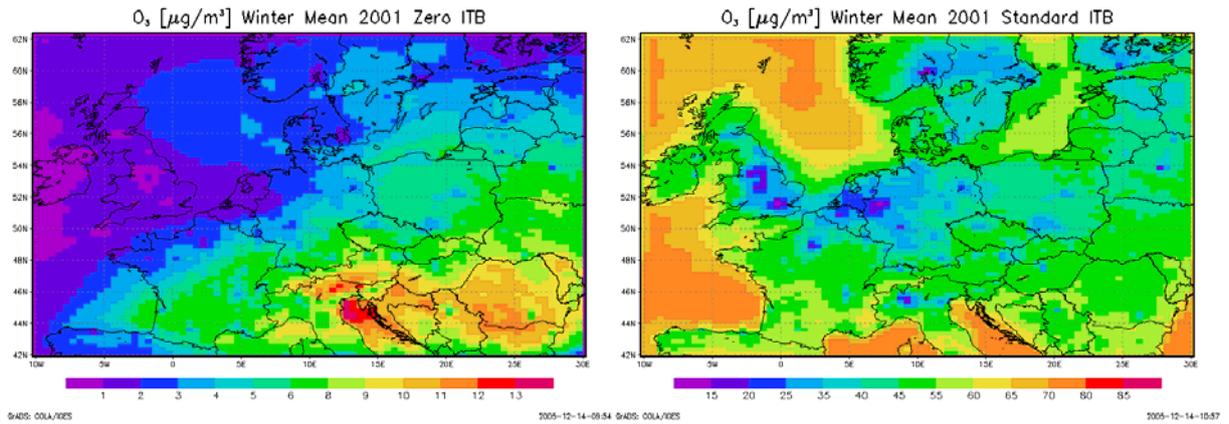


Abbildung 89 Wintermittelwert Ozon in µg/m³: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen

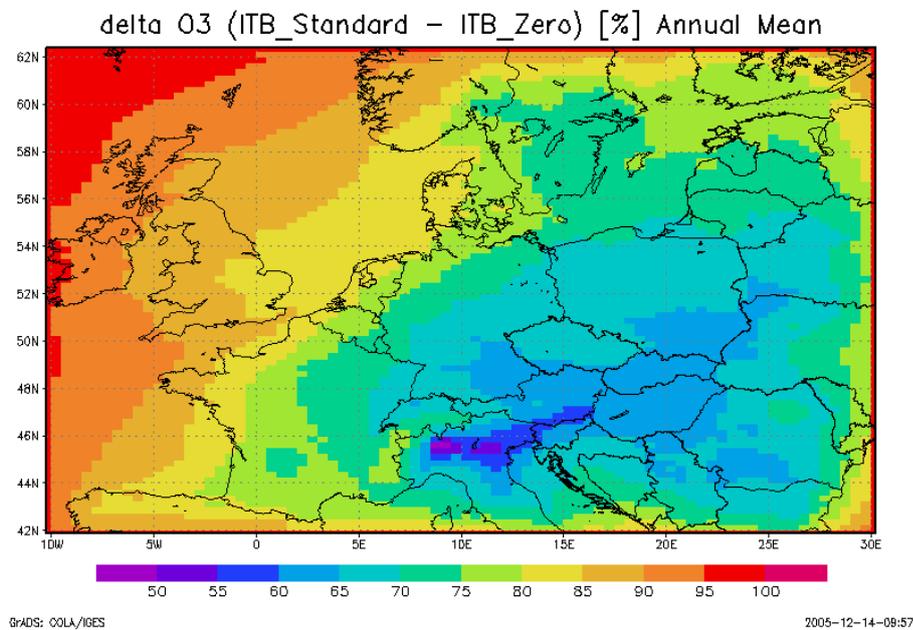


Abbildung 90 Prozentuale Ozonänderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Jahresmittel

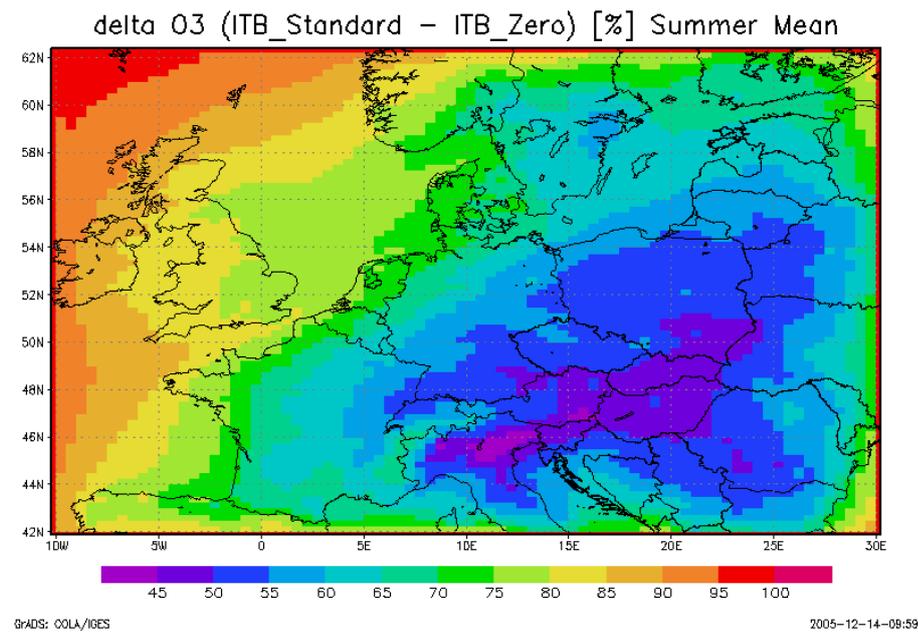


Abbildung 91 Prozentuale Ozonänderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Sommermittel

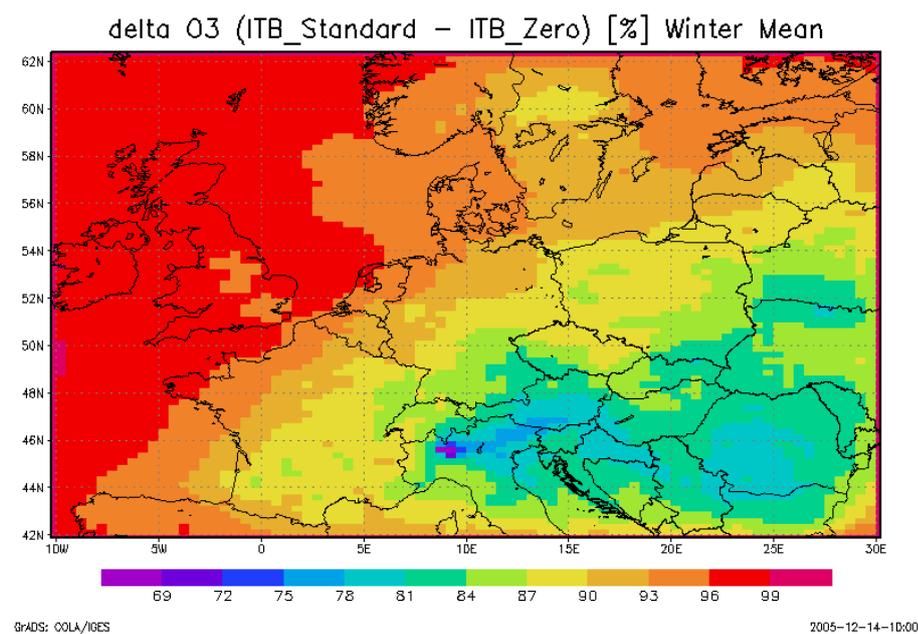


Abbildung 92 Prozentuale Ozonänderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Wintermittel

6.2.2 NO₂

Abbildung 93 und Abbildung 94 zeigen den Einfluss der Randbedingungen auf die NO₂-Jahresmittelwerte. Die absolute Flächenverteilung der Stickoxide ist unabhängig von den Randbedingungen auf die Ballungsgebiete Europas konzentriert. Die maximale Höhe der jährlichen NO₂-Werte wird von den Randwerten im Bereich der NO_x-Emissionsgebiete im Vergleich zu dem Lauf ohne Randwerte angehoben, was wieder ein indirekter, vom Ozon

verursachter Effekt ist. Die NO_2 -Randbedingungen sind für sich gesehen sehr niedrig (Größenordnung $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ oder weniger) und können die Anhebung alleine nicht verursachen. Der Lauf mit Null-Randbedingungen zeigt räumliche Maxima nur über den Ballungsgebieten, mit einem starken Konzentrationsgradienten zwischen Stadt und Land. Dieser Gradient wird über die Randwerte abgeschwächt, da die über die seitlichen und oberen Ränder einströmenden Ozonmassen mehr NO in NO_2 umwandeln, was vor allem im Winter der dominierende Mechanismus der NO_2 -Produktion ist. Auf eine Darstellung der prozentualen Änderungen wurde verzichtet, da für große Teile des Modellgebiets sehr geringe NO_2 -Konzentrationen berechnet wurden, was aber sehr große, nicht interpretierbare relative Änderungen bewirken kann. Deshalb wurden nur die absoluten Differenzen dargestellt. Es ist deutlich ersichtlich, dass die absoluten Differenzen im Bereich der Ballungsgebiete am höchsten sind. Es werden Änderungen aufgrund des Einflusses der Randwerte von über $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet. Dies sind bezogen auf die maximalen Jahresmittelwerte in den Ballungsgebieten Paris, London und Mailand von über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ circa 20 bis 30% der berechneten Jahresmittelwerte des RCG-Standardlaufs.

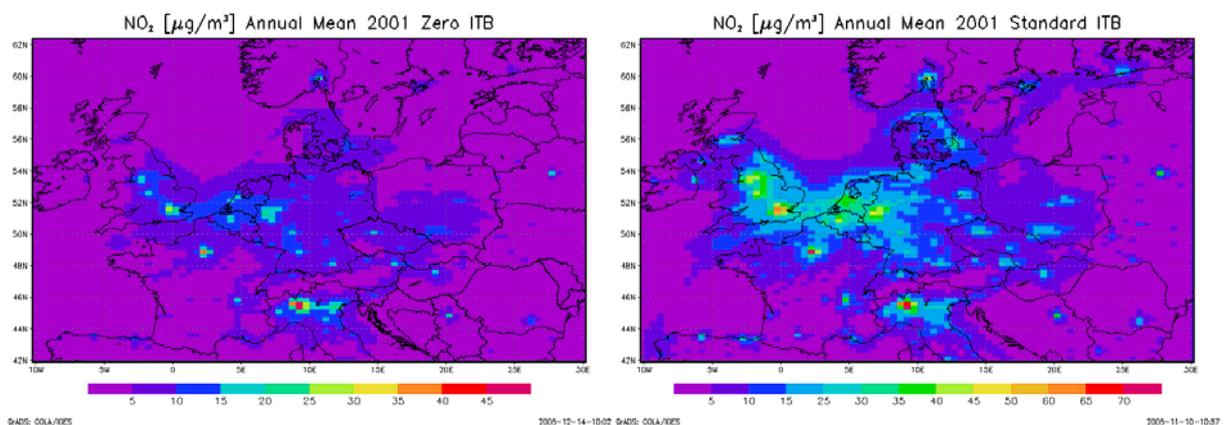


Abbildung 93 Jahresmittelwert NO_2 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen

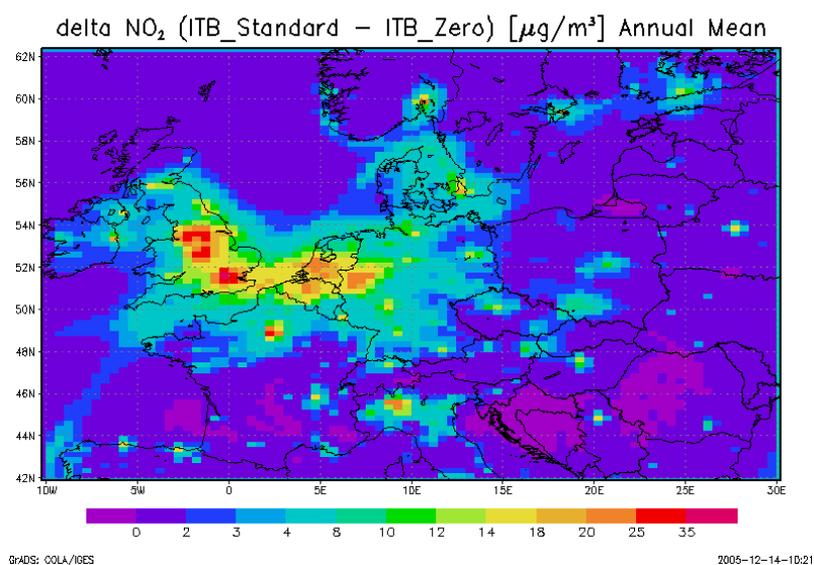


Abbildung 94 Absolute NO_2 -Änderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Jahresmittel

6.2.3 PM10

Abbildung 95 und Abbildung 96 zeigen den Einfluss der Randbedingungen auf die Jahresmittelwerte von Feinstaub. Die seitlichen Randbedingungen der sekundären Aerosole, die einen erheblichen Anteil am Gesamt-PM10 besitzen, machen sich insbesondere in der Osthälfte des Modellgebiets bemerkbar, da die östlichen Randbedingungen zur Erfassung der Quellen in der Ukraine und Weißrussland relativ hoch sind. Aber auch in wenig belasteten Gebieten ist der Beitrag der Randbedingungen hoch, was auf die Bedeutung des Ferntransports hinweist. Die geringsten relativen Änderungen, d.h. der geringste Einfluss der Randbedingungen, zeigen sich in den Ballungsgebieten. In London, Paris, Ruhrgebiet und Poebene ist der Einfluss der Randwerte auf die jährlichen Mittelwerte sehr gering. Über den ländlichen Gebieten, in denen sehr geringe PM10-Werte simuliert werden, wird der Einfluss der Randbedingungen auf ca. 30% bis 40% geschätzt. Dies trägt zum Anstieg der Hintergrundwerte bei, ist absolut jedoch sehr gering.

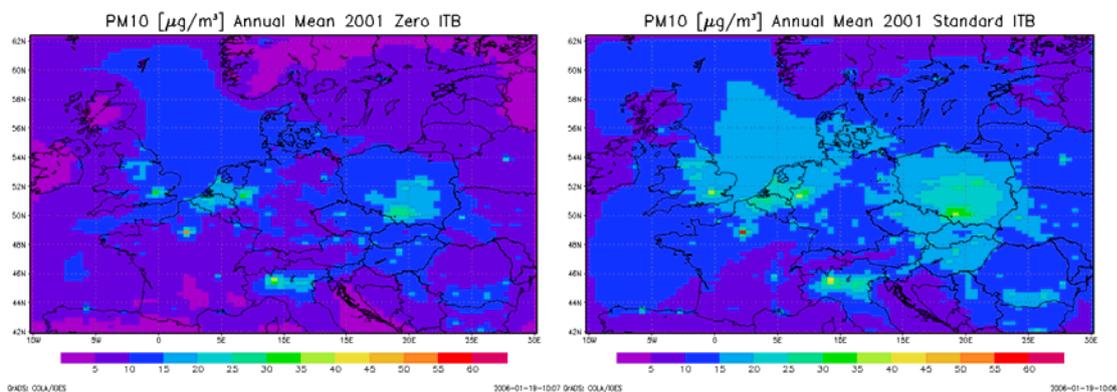


Abbildung 95 Jahresmittelwert PM10 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen

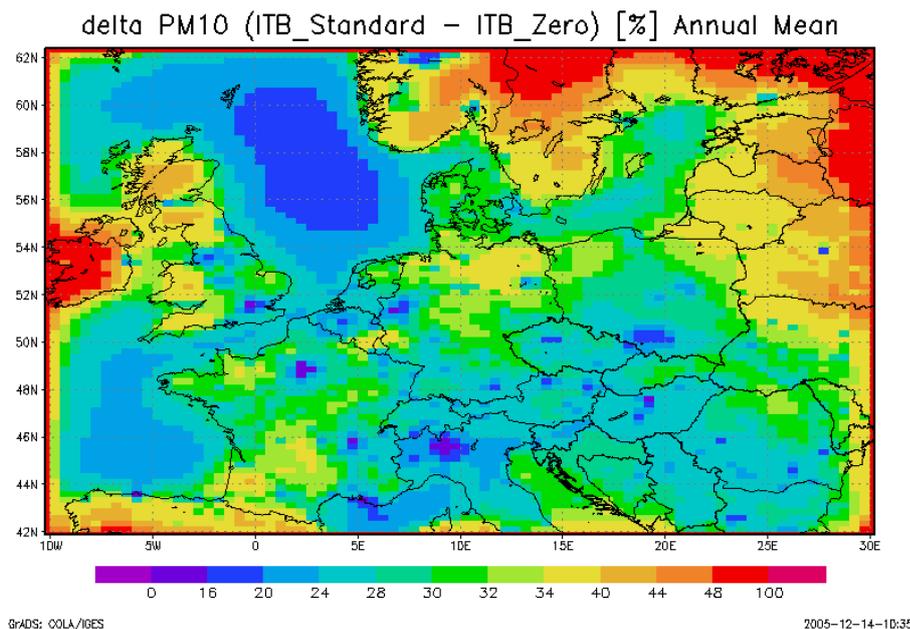


Abbildung 96 Prozentuale PM10-Änderung aufgrund der Randbedingungen im Jahresmittel

6.3 Monatsmittel vs. Stundenmittel aus EURAD-Simulationen

Die RCG-EURAD-Version wird mit Randbedingungen betrieben, die für jede Stunde aus den Simulationsergebnissen der hemisphärischen Version des EURAD-Modellsystems übernommen wurden. Neben der in den vorhergehenden Kapiteln untersuchten Frage, ob die Verwendung von Modelldaten als Randbedingung zu grundsätzlich anderen Ergebnissen führt als die Verwendung beobachteter Randbedingungen, muss auch der Einfluss der zeitlichen Auflösung der Randbedingungen untersucht werden. Die Berücksichtigung der Beiträge der in letzter Zeit stark diskutierten hemisphärischen Transportvorgänge zu den kontinentaleuropäischen Immissionsverteilungen ist nur möglich, wenn diese Transporte sich in den verwendeten Randbedingungen abbilden lassen.

Die Sensitivität der RCG-Modellergebnisse bezüglich der zeitlichen Auflösung der Randbedingungen wurde daher ebenfalls untersucht. Dazu erfolgte eine monatsweise Mittelung der von EURAD gelieferten Randbedingungen. Der Vergleich eines Rechenlaufs, der mit den Monatsmitteln der EURAD-Randbedingungen gesteuert wird, mit dem Lauf, der die EURAD-Randbedingungen in stündlicher Auflösung verwendet, sollte zumindest einen Hinweis geben können, ob die Berücksichtigung von hemisphärischen Transportphänomenen für europaweite Modellrechnungen von Wichtigkeit ist. Der Betrachtungszeitraum ist das ganze Jahr 2001. Es konnte aber nicht untersucht werden, ob und wie stark dieses Bezugsjahr durch hemisphärische Transportvorgänge geprägt war und ob die EURAD-Simulation solche Transportphänomene, falls sie denn aufgetreten sind, auch richtig wiedergegeben hat. Dazu sei auf Feldmann et al.(2006) verwiesen. Da Ozon sich als sensibelster Schadstoff bezüglich der Randwerte erwiesen hat, beschränkt sich die Auswertung der zwei verschiedenen Läufe auf diesen Schadstoff.

Abbildung 97, Abbildung 98 und Abbildung 99 zeigen die jährlichen und saisonalen Änderungen in der simulierten Ozonkonzentration, die sich ergeben, werden anstatt der stündlichen Randbedingungen aus EURAD monatliche Mittelwerte verwendet. Die Unterschiede in den Jahresmittelwerten sind, sowohl absolut als auch prozentual für Mitteleuropa, sehr gering. Über Deutschland, beispielsweise, wurden prozentual maximal 2% höhere Werte Ozon-Jahresmittel berechnet, wenn RCG mit monatlichen Mittelwerten aus EURAD gesteuert wird. Mit monatlichen Mittelwerten als Randbedingungen werden immer höhere Ozonwerte simuliert als mit stündlichen Randwerten aus dem hemisphärischen EURAD-Lauf. Dies ist nicht von der Jahreszeit abhängig. Die Unterschiede in der Nähe der Randzellen sind natürlich höher. Dort werden maximal 10% höhere Ozonwerte simuliert, werden monatliche Randwerte benutzt. Der Einfluss der unterschiedlichen Randbedingungen lässt jedoch über dem europäischen Festlands sehr schnell nach. Die winterlichen relativen Differenzen sind dabei geringer als die sommerlichen.

Abbildung 100 und Abbildung 101 zeigt die berechneten Mittelwerte und Korrelationskoeffizienten, die mit dem RCG-EURAD-Lauf mit monatlichen Randwerten für die Messstationen berechnet worden sind. Diese beiden Tabellen sollen mit Abbildung 51 und Abbildung 52 verglichen werden, die den Vergleich mit Messdaten und den RCG-Ergebnissen mit Randwerten aus EURAD in stündlicher Auflösung zeigen. Es ist festzustellen, dass sich die Ergebnisse der RCG-EURAD-Version kaum ändern, werden anstatt stündlicher monatliche Mittelwerte als Randwerte genommen. Betrachtet man alle beobachteten und simulierten Stundenwerte an Ozon an den untersuchten Messorten, steigt der Korrelationskoeffizient sogar um ein paar Prozentpunkte, werden monatliche Mittelwerte als Randbedingungen verwendet. Werden nur die Stunden zwischen Sonnenaufgang und Sonnenuntergang betrachtet, verbessert sich das zeitliche Verhalten sogar deutlicher, wenn anstatt Stundenwerte Monatsmittelwerte in das RCG-EURAD-System einfließen. Allerdings sind all diese Unterschiede zu gering, um aus den hier präsentierten Berechnungen eine belastbare Aussage abzuleiten, ob hemisphärische Transportphänomene einen Einfluss auf die in Zentraleuropa berechneten Schadstoffkonzentrationen haben oder nicht. Dies wird nochmals in Abbildung 102 und Abbildung 103 deutlich. Hier wurden die Monatsmittel an der Station Waldhof für die täglichen Ozonmittel und täglichen Ozonmaxima aufgetragen. Die Unterschiede in den Monatsmitteln sind gering. Allerdings muss nochmals betont werden, dass die EURAD-Ergebnisse weitgehend nur qualitativ in Hinsicht auf solche Transportphänomene untersucht wurden (Feldmann et al., 2006). Quantitative Bewertungen des Transportbeitrags sind daher nicht möglich.

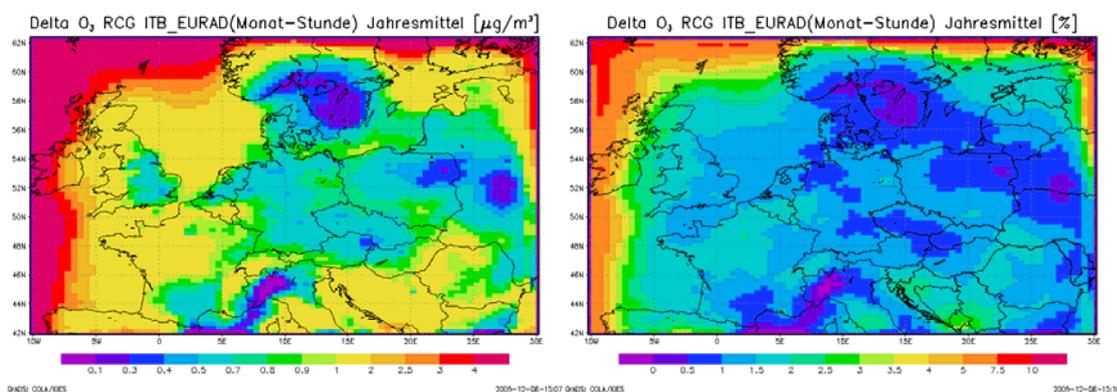


Abbildung 97 Differenz der Ozonjahresmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (links) und % (rechts) aus dem RCG-Lauf mit EURAD-Monatsmitteln und dem Lauf mit EURAD-Stundenmitteln für die Randbedingungen.

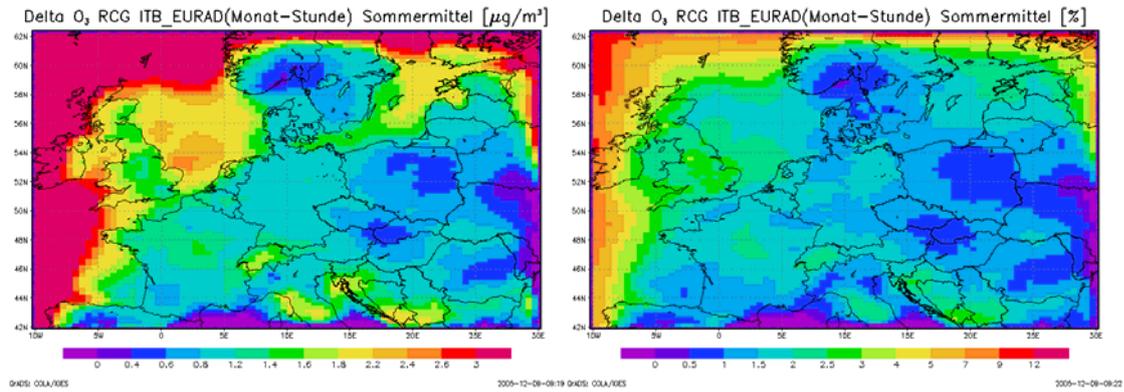


Abbildung 98: Differenz der Ozonsommermittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (links) und % (rechts) aus dem RCG-Lauf mit EURAD-Monatsmitteln und dem Lauf mit EURAD-Stundenmitteln für die Randbedingungen.

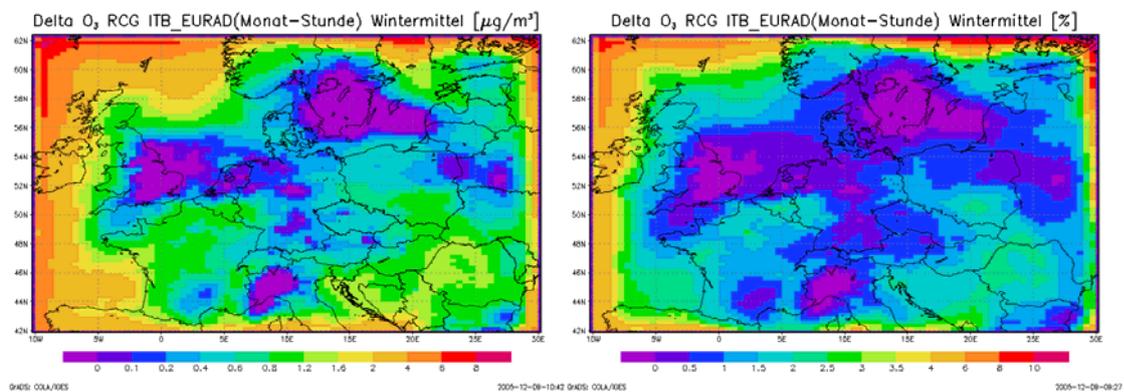


Abbildung 99 Differenz der Ozonwintermittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (links) und % (rechts) aus dem RCG-Lauf mit EURAD-Monatsmitteln und dem Lauf mit EURAD-Stundenmitteln für die Randbedingungen.

WHOLE DAY

O3	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	57.11	59.24	27.15	33.68	0.57
RCG_itb_RCG	55.55	54.93	20.18	25.49	0.64
RCG_itb_EURAD	55.55	65.72	23.34	29.03	0.61
daymax O3	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	79.60	86.41	25.05	30.91	0.68
RCG_itb_RCG	78.92	81.35	16.87	21.79	0.74
RCG_itb_EURAD	78.92	95.03	22.84	27.81	0.69
Ox	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	67.22	77.64	22.26	28.18	0.59
RCG_itb_RCG	67.27	68.49	16.40	21.23	0.65
RCG_itb_EURAD	67.27	78.58	20.79	25.73	0.59
daymax Ox	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	87.76	98.93	20.90	26.63	0.72
RCG_itb_RCG	87.71	88.07	14.72	19.78	0.75
RCG_itb_EURAD	87.71	101.12	20.89	25.45	0.69
NO2	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	12.95	21.37	15.19	20.46	0.36
RCG_itb_RCG	13.75	14.60	9.58	13.04	0.44
RCG_itb_EURAD	13.75	14.43	9.66	13.31	0.44
NOx	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	17.27	33.64	24.39	37.36	0.37
RCG_itb_RCG	18.46	19.42	12.54	19.12	0.44
RCG_itb_EURAD	18.46	18.49	12.15	18.62	0.45
NO	obs. mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD	3.53	6.16	6.62	14.30	0.24
RCG_itb_RCG	3.77	2.71	3.51	7.58	0.28
RCG_itb_EURAD	3.77	2.21	3.36	7.47	0.28

Abbildung 100 Statistische Kenngrößen aus Stundenwerten für Ozon, NO₂, NO_x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD) mit monatlich gemittelten Werten.

DAY TIME

O3		obs.	mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD		63.63	69.16		26.72	33.16	0.64
RCG_itb_RCG		62.34	68.78		19.36	24.65	0.70
RCG_itb_EURAD	Monthly	62.34	81.21		25.67	31.17	0.66
daymax O3		obs.	mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD		77.52	83.13		25.55	31.49	0.69
RCG_itb_RCG		76.76	81.35		17.16	22.10	0.75
RCG_itb_EURAD	Monthly	76.76	95.03		24.18	29.11	0.71
Ox		obs.	mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD		73.54	84.14		22.37	28.42	0.66
RCG_itb_RCG		73.62	78.68		16.07	20.90	0.70
RCG_itb_EURAD	Monthly	73.62	90.61		22.93	27.71	0.63
daymax Ox		obs.	mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD		86.32	96.12		21.22	27.02	0.72
RCG_itb_RCG		86.27	88.02		14.82	19.79	0.76
RCG_itb_EURAD	Monthly	86.27	101.12		21.69	26.17	0.70
NO2		obs.	mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD		12.64	16.81		12.41	17.28	0.42
RCG_itb_RCG		13.46	10.24		8.41	11.43	0.51
RCG_itb_EURAD	Monthly	13.46	10.21		8.54	11.69	0.51
NOx		obs.	mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD		17.36	28.74		21.32	34.93	0.41
RCG_itb_RCG		18.65	15.38		11.58	18.54	0.50
RCG_itb_EURAD	Monthly	18.65	14.68		11.44	18.35	0.51
NO		obs.	mean	mod. mean	residue	RMSE	corr.
EURAD		3.86	6.37		6.62	14.17	0.27
RCG_itb_RCG		4.14	2.93		3.54	7.81	0.32
RCG_itb_EURAD	Monthly	4.14	2.48		3.43	7.80	0.32

Abbildung 101 Statistische Kenngrößen aus den Stundenwerten (nur Tag) für Ozon, NO₂, NO_x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD) mit monatlich gemittelten Werten.

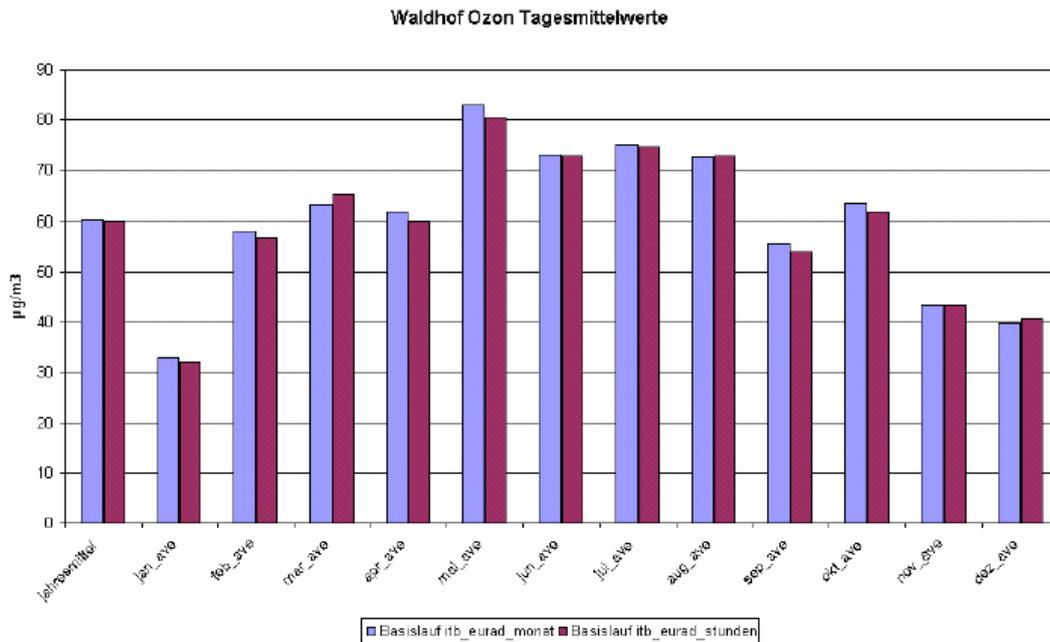


Abbildung 102 Ozon-Jahresmittel und Monatsmittel an der Station Waldhof. RCG-EURAD-Lauf mit monatlich und stündlich gemittelten Randbedingungen.

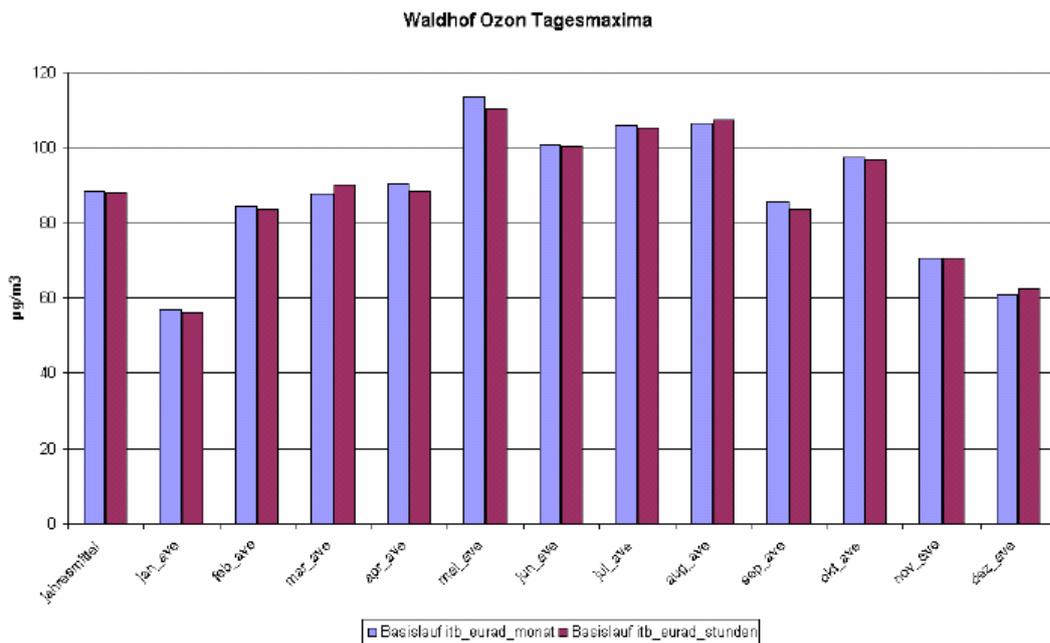


Abbildung 103 Ozon-Tagesmaxima im Jahresmittel und im Monatsmittel an der Station Waldhof. RCG-EURAD-Lauf mit monatlich und stündlich gemittelten Randbedingungen.

6.4 RCG-Lauf 2010 mit EURAD-Randbedingungen 2001

In diesem Rechenlauf wurden für die Immissionsprognose 2010 die EURAD-Randbedingungen des Basislaufs benutzt. Dieser Ansatz entspricht der RCG-Standardvorgehensweise, nur dass anstatt der klimatologischen Randbedingungen die vom EURAD-Modell gelieferten Randbedingungen benutzt werden. Die Unterschiede zu dem Lauf RCG-EURAD 2010, der die EURAD-Randbedingungen für 2010 benutzt, beschreiben damit den Einfluss der zeitlichen Variation (2001 bis 2010) der EURAD-Randbedingungen auf die RCG-Immissionsprognose. Abbildung 104 zeigt die Änderung der Ozonjahresmittelwerte vom Emissionszustand 2000 nach 2010, links unter Verwendung der EURAD-Randbedingungen 2010, rechts unter Verwendung der EURAD-Randbedingungen 2001. Die linke Abbildung ist identisch mit der Abbildung 55 rechts. Abbildung 105 zeigt die absoluten Unterschiede zwischen den in Abbildung 104 dargestellten Ozonänderungen. Die beiden Änderungsfelder unterscheiden sich nur geringfügig. Dies bedeutet, wie schon mehrfach ausgeführt wurde, dass die Unterschiede in den Immissionsdeltas weniger auf die zeitliche Änderung der Randbedingungen als auf die unterschiedlichen Konzentrationsniveaus der Basissimulationen zurückzuführen sind. Für die jahreszeitlichen Änderungen und auch für die Änderungen der NO₂- und PM10-Immissionsprognosen gilt dieselbe Aussage, auf Abbildungen wurde deswegen verzichtet.

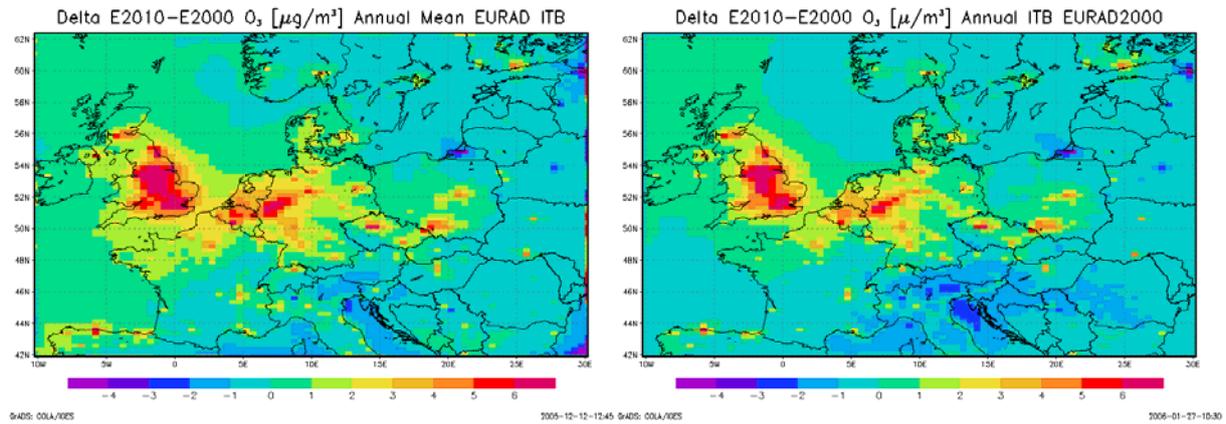


Abbildung 104 Berechnete Ozonänderung aufgrund der Emissionsänderung von 2000 nach 2010: Modellversion RCG-EURAD mit EURAD-Randbedingungen für 2010 (links) bzw. für den Basislauf 2001 (rechts); absolute Änderung der Jahresmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

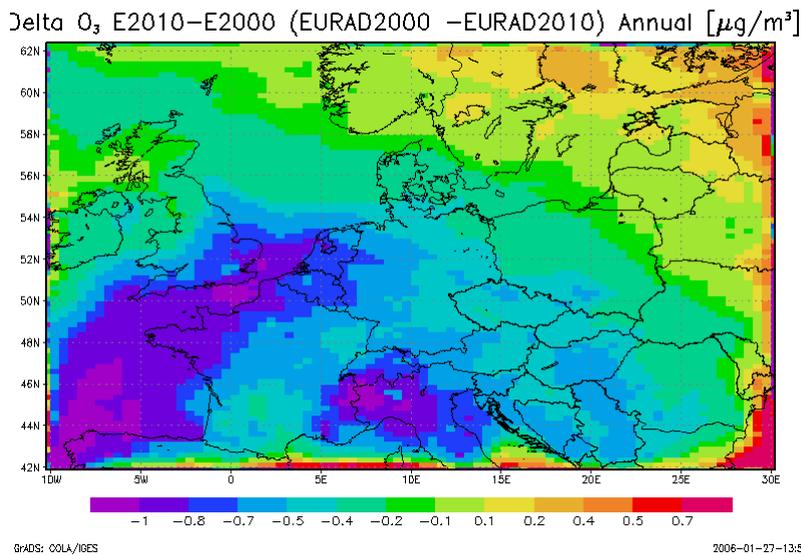


Abbildung 105 Absolute Unterschiede zwischen den in Abbildung 104 dargestellten Ozonänderungen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

7 Zusammenfassung

In diesem Bericht wurde die Koppelung eines Hemisphärenmodells mit einem kontinentalen Modell vorgestellt. Das mit Unterstützung des Umweltbundesamts entwickelte REM-CALGRID-Modell (RCG), das von der europäischen bis zur urbanen Skala eingesetzt werden kann (Stern 2003; Stern et al., 2003; Stern 2004a) wurde dazu mit der hemisphärischen Version des an der Universität Köln entwickelten EURAD-Modells (RIU, 2005) gekoppelt. Beide Modelle sind dreidimensionale Gittermodelle, die alle für die Ozon- und Aerosolbildung wesentlichen physikalisch-chemischen Prozesse in stündlicher Auflösung simulieren.

Das RCG-Modell wird normalerweise mit aus Beobachtungen abgeleiteten seitlichen und oberen Randbedingungen betrieben. Diese Randbedingungen sind für alle Spezies außer Ozon zeitlich konstant gesetzt. Lediglich für Ozon werden aus einer von Logan (1998) erstellten Ozonklimatologie zeitlich (Monatsmittel) und räumlich variierende Randbedingungen benutzt. Auch für die Prognose der Auswirkungen von zukünftigen Emissionsszenarien werden die für den Ist-Zustand geltenden Randbedingungen benutzt. Damit ist es nicht möglich, hemisphärische oder globale Emissionsentwicklungen zu berücksichtigen. Ob eine solche Berücksichtigung für die Beurteilung der zukünftigen europäischen Luftqualität notwendig ist, wurde in diesem Bericht untersucht.

Das nordhemisphärische EURAD-System wird am Rheinischen Institut für Umweltforschung (RIU) betrieben. Aus den nordhemisphärischen Läufen für das meteorologische Bezugsjahr 2001 lieferte RIU an die FU Berlin alle zum Betreiben des RCG-Modells notwendigen Randbedingungen in einer räumlichen Auflösung von 125 km und einer zeitlichen Auflösung von 1 Stunde. Es wurden zwei EURAD-Datensätze erstellt:

- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, Emissionsbezugsjahr 1995²
- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, Emissionsbezugsjahr 2010

Die Anpassung der EDGAR-Emissionsdaten auf 2010 erfolgte auf der Basis der IPCC-SRES und IIASA-Szenarien (RIU, 2005).

Das RCG-Modell wird mit von der TNO erstellten Emissionsdaten betrieben, die als Bezugsjahr 2000 und 2010 haben, wobei der Stand 2010 den Emissionsvorgaben des im Rahmen des CAFE-Prozesses benutzten CLE-Szenarios entspricht (Stern, 2005b; Visscherdijk und Van der Gon, 2005).

Das RCG-Modell wurde für die hier beschriebene Untersuchung in folgenden Konstellationen auf Zentraleuropa angewandt:

- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, TNO-Emissionen 2000, klimatologische Randbedingungen des Ist-Zustands,
- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, TNO-Emissionen 2000, EURAD-Randbedingungen (Emissionen EDGAR V3.2) in stündlicher Auflösung,

² Für den Basislauf wurden im EURAD-Modell ein hemisphärischer Emissionsdatensatz mit dem Bezugsjahr 1995 benutzt (EDGARV3.2), da neuere Emissionen nicht vorlagen.

- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, TNO-Emissionen 2010, klimatologische Randbedingungen des Ist-Zustands,
- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, TNO-Emissionen 2010, EURAD-Randbedingungen (Emissionen EDGAR V3.2 skaliert auf 2010) in stündlicher Auflösung,

und zusätzlich

- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, TNO-Emissionen 2000, EURAD-Randbedingungen (Emissionen EDGAR V3.2) in stündlicher Auflösung nur für die seitlichen Ränder,
- Meteorologisches Bezugsjahr 2001, TNO-Emissionen 2000, EURAD-Randbedingungen (Emissionen EDGAR V3.2) in monatlicher Auflösung.

Der Lauf mit den Randbedingungen von EURAD ausschließlich für die seitlichen Ränder des RCG-Modellgebiets dient zur Separierung des Einflusses der seitlichen gegenüber der oberen Randbedingung. Der letzte Lauf sollte Aufschluss darüber geben, ob die Wahl der zeitlichen Auflösung der Randbedingungen (stündlich gegen Monatsmittel) einen Einfluss auf die berechneten Konzentrationsverteilungen hat. Hintergrund dieser Fragestellung ist, ob mögliche interkontinentale Transportphänomene über zeitlich hoch aufgelöste Randbedingungen erfasst werden können und ob sich solche Transportphänomene in bodennahen regionalen Konzentrationsverteilungen bemerkbar machen.

Die hemisphärischen EURAD-Konzentrationsverteilungen wurden ausschließlich für die seitlichen und oberen Randbedingungen des RCG-Modells verwendet. Beide Modelle wurden vollständig mit ihren eigenen Datenbasen betrieben. Als meteorologischen Treiber benutzt EURAD das prognostische MM5-Modell während das RCG-Modell seine meteorologischen Daten aus einer Analyse (Optimale Interpolation) von meteorologischen Beobachtungen bezieht.

Der Schwerpunkt der Analyse lag auf der Klärung von 3 Fragen:

Welche Rolle spielt die Wahl der Randbedingungen für die Ergebnisse eines auf Europa angewandten Transportmodells?

Muss für die Berechnung von Schadstoffprognosen in Europa eine mögliche zeitliche Änderung des hemisphärischen Hintergrunds berücksichtigt werden?

Welche Rolle spielt die zeitliche Auflösung von Randbedingungen?

Bewertung der Basisläufe für die Ist-Situation

Die Ergebnisse des hemisphärischen EURAD-Basislauf und der regionalen RCG-Läufe mit klimatologischen Standard-Randbedingungen bzw. EURAD-Randbedingungen wurden anhand der Messungen an ländlichen Stationen überprüft. Die Überprüfung diente nicht zur Evaluierung des EURAD-Modells sondern wurde nur vorgenommen, um eine Bewertung der aus den EURAD-Ergebnissen abgeleiteten Randbedingungen zu ermöglichen. Die Standardversion des RCG-Modells, die klimatologische Randbedingungen verwendet, lieferte dabei die besten Resultate. Der Jahresmittelwert 2001 der Ozonstagesmaxima über alle Messstationen wurde um 3% unterschätzt, die Simulation des Tagesganges mit einem

Korrelationskoeffizient von 0.64 war zufrieden stellend. EURAD überschätzte den Mittelwert der Tagesmaxima um 9%. Die RCG-EURAD-Version, die als Randbedingungen die von EURAD berechneten Konzentrationen benutzt, überschätzte diesen Mittelwert sogar um 20%. Die Wahl der Randbedingungen hat also einen starken Einfluss auf die Ozonkonzentrationen. So wurden im Mittel über alle Messstationen und über das gesamte Jahr 2001 18% höhere Ozonkonzentrationen von RCG-EURAD simuliert als von der RCG-Standard-Version. Die Unterschiede sind besonders hoch in der kalten Jahreszeit und am geringsten im Spätfrühling. Ursache der im Vergleich mit Messungen deutlich zu hohen Ozonkonzentrationen der RCG-EURAD-Version sind die hohen von EURAD berechneten Ozonwerte am Oberrand des RCG-Modellgebiets, die sehr viel höher sind als die aus der Ozonklimatologie von Logan (1998) abgeleiteten Werte. Die Ozonüberschätzung des EURAD-Modells, auch an weit von Ballungsgebieten entfernten Stationen (z.B. Mace Head in Irland) mag seine Ursache in der EURAD-Emissionsdatenbasis haben, die den Stand von 1995 repräsentiert. Die hohen Konzentrationen an den seitlichen und oberen RCG-Rändern gelangen dann durch Mischung zum Boden und bewirken damit die Überschätzung der RCG-EURAD-Version.

Wie für Ozon, liefert die RCG-Standard-Version auch für NO_2 und PM_{10} im Vergleich mit Messungen die besten Ergebnisse. Sowohl die NO_x - als auch die Aerosolkomponenten werden in der EURAD-Simulation am Boden überschätzt. Die Ursache für diese Überschätzung trotz einer Maschenweite von 125 km ist unklar, kann aber in den Emissionsdaten liegen, die die Situation von 1995 beschreiben. In der Höhe sind die Unterschiede zwischen den klimatologischen Randbedingungen und den aus den EURAD-Rechnungen abgeleiteten Randbedingungen für NO_x und die PM_{10} -Komponenten deutlich geringer als für Ozon. Trotzdem werden mit der RCG-EURAD-Modellversion am Boden vor allem in den Ballungsgebieten unter Verwendung der EURAD-Randbedingungen höhere NO_2 -Konzentrationen berechnet als mit der RCG-Standardversion. Dies ist ein indirekter Effekt, der nicht auf die NO_2 -Randbedingungen sondern auf die Ozon-Randbedingungen zurückzuführen ist. Die hohen Ozonwerte der EURAD-Randbedingungen bewirken am Boden vor allem im Winter eine Verstärkung des Titrationseffekts, d.h. der Umwandlung von NO in NO_2 durch Ozon.

Auch für PM_{10} werden unter Verwendung der EURAD-Randbedingungen höhere Werte simuliert als mit der RCG-Standard-Version. In den Ballungsgebieten macht sich die Wahl der Randbedingungen auf die PM_{10} -Konzentrationen kaum bemerkbar, was auf den hohen Eigenbeitrag dieser Gebiete zum Gesamt- PM_{10} hinweist. Die Hintergrundwerte werden über dem Kontinent um 2 bis $2.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher simuliert, werden die Randbedingungen aus EURAD-Rechnungen abgeleitet. Dabei muss berücksichtigt werden, dass EURAD die beobachteten Aerosole zum Teil kräftig überschätzt.

Emissionsprognose 2010 unter Verwendung klimatologischer Randbedingungen bzw. prognostizierter Randbedingungen

Die berechneten Änderungen der Ozonwerte über Europa aufgrund des Emissionsszenarios 2010 ergaben eine allgemeine Zunahme der Jahresmittelwerte in den Ballungsgebieten und eine Abnahme in den ländlichen Gebieten. Die deutlichsten Ozonsteigerungen bis 2010 wurden absolut mit bis zu $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (15 – 25%) über England und dem Ruhrgebiet simuliert. Die Ozonänderung im Winterhalbjahr war bei beiden RCG-Versionen positiv über das gesamte mitteleuropäische Festland und besonders hoch in den Ballungsgebieten. RCG-EURAD simuliert dabei Ozonzunahmen von über $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über weiten Teilen Mittelenglands, den Niederlanden, des Ruhrgebiet und der Poebene, wohingegen RCG-Standard nur Zunahmen von $3\text{--}6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in diesen Gebieten simuliert. Das Sommerhalbjahr war durch geringere Zu-

nahmen in den nördlichen Ballungsgebieten und Abnahmen in den ländlichen Gebieten sowie in der Poebene gekennzeichnet.

Im Jahresmittel ergaben sich für die RCG-EURAD-Version größere Ozonänderungen als für die Standard-RCG-Version. Die Unterschiede lagen bei 1 bis 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in ländlichen und 2 bis 3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in Ballungsräumen. Im Sommer waren die Unterschiede geringer als im Winter. Für PM10 und NO₂ sind sie geringer.

Bei der Beurteilung des Einflusses der Randbedingungen auf die Immissionsprognose 2010 müssen 2 Punkte beachtet werden:

- Die Unterschiede in der Basissimulation
- Die Unterschiede in den Randbedingungen 2010

In der RCG-EURAD-Version stammen die Randbedingungen aus einem EURAD-Lauf, der die hemisphärische Emissionssituation 2010 beschreibt, bei der RCG-Standard-Version werden dagegen für 2010 dieselben klimatologischen Randbedingungen benutzt wie für die Basissimulation. Die für die RCG-EURAD Läufe verwendeten Randbedingungen für die Ist-Situation und das Emissionsszenario 2010 unterscheiden sich sehr viel weniger als die klimatologischen Randbedingungen der RCG-Standard-Version und die aus den EURAD-Läufen für 2010 abgeleiteten Randbedingungen. Dies bedeutet, dass die Unterschiede der Randbedingungen von der Ist-Situation zur Situation 2010 bei beiden Paaren von Simulationen (RCG-Standard Ist-Zustand und 2010, RCG-EURAD Ist-Zustand und 2010) sehr viel geringer sind als die Unterschiede zwischen den klimatologischen Randbedingungen und den aus den EURAD-Läufen abgeleiteten Randbedingungen. Damit sind die Unterschiede in den Immissionsdeltas auch weniger auf die zeitliche Variation der Randbedingungen als auf die unterschiedlichen Konzentrationsniveaus der Basissimulationen zurückzuführen. Aus den hier zur Verfügung gestandenen Daten kann daher nicht festgestellt werden, dass die zeitliche Änderungen der hemisphärischen Hintergrundkonzentrationen, soweit sie mit dem EURAD-Modell erfasst werden, einen signifikanten Einfluss auf die in Zentraleuropa berechneten Auswirkungen von europäischen Emissionsminderungsmaßnahmen auf die Luftqualität haben. Es muss aber betont werden, dass diese Aussage nur für die hier verwendeten Daten gilt. Ob die Verwendung anderer hemisphärischer Modellrechnungen als Randbedingungen, die möglicherweise eine größere oder andere Reaktion auf hemisphärische Emissionsszenarien zeigen als EURAD, zu anderen Aussagen führen würde, muss offen bleiben.

Zeitliche Auflösung der Randbedingungen

Die RCG-EURAD-Version wird mit Randbedingungen betrieben, die für jede Stunde aus den Simulationsergebnissen der hemisphärischen Version des EURAD-Modellsystems übernommen wurden. Die Berücksichtigung der Beiträge der in letzter Zeit stark diskutierten hemisphärischen Transportvorgänge zu den kontinentaleuropäischen Immissionsverteilungen ist nur unter der Verwendung solcher zeitlich hoch aufgelöster Randbedingungen möglich, da Transporte sonst nicht erfasst werden können. Die Sensitivität der RCG-Modellergebnisse bezüglich der zeitlichen Auflösung der Randbedingungen wurde daher ebenfalls untersucht. Dazu erfolgte eine monatsweise Mittelung der von EURAD gelieferten Randbedingungen. Der Vergleich eines Rechenlaufs, der mit den Monatsmitteln der EURAD-Randbedingungen gesteuert wird, mit dem Lauf, der die EURAD-Randbedingungen in stündlicher Auflösung verwendet, sollte zumindest einen Hinweis geben können, ob die Berücksichtigung von hemisphärischen Transportphänomenen für europaweite Modellrechnungen von Wichtigkeit ist. Es konnte aber nicht untersucht werden, ob und wie stark dieses Bezugsjahr durch hemi-

sphärische Transportvorgänge geprägt war und ob die EURAD-Simulation solche Transportphänomene, falls sie denn aufgetreten sind, auch richtig wiedergegeben hat. Darüber hinaus ist eine Quantifizierung des Einflusses von Interkontinental-Transporten auf die Grenzschicht sehr schwierig, da sich die Konzentration der Spurenstoffe in Interkontinentalplumes oft nicht sehr deutlich von der Zusammensetzung der umgebenden Luftmassen unterscheidet (siehe Feldmann et al., 2006).

Es ist festzustellen, dass sich die RCG-Modellergebnisse für 2001 nur geringfügig ändern, wenn anstatt stündlicher, monatliche Mittelwerte als Randwerte genommen werden. Es muss aber nochmals betont werden, dass die Identifizierung von Interkontinentalen Transporten in der Grenzschicht schwierig ist (Feldmann et al., 2006). Es können auch keine quantitativen Aussagen getroffen werden, wie stark sich die von EURAD in der freien Troposphäre berechneten einzelnen episodischen Transportphänomene von den Monatsmitteln, die diese Transporte ja auch enthalten, abheben. In den Auswertungen der RCG-Randbedingungen sind die episodischen Inkremente jedenfalls gering. Es gilt weiter zu berücksichtigen, dass sich die Konfigurationen der beiden Modelle in allen wesentlichen Parametern unterscheiden (Gitterauflösung, vertikale Auflösung der Atmosphäre, Emissionen, Meteorologie, etc.). Von EURAD berechnete Transportepisodes, die das RCG-Modellgebiet über die Randbedingungen erreichen, müssen sich daher nicht notwendigerweise auch in den RCG-Bodenkonzentrationsfeldern bemerkbar machen.

8 Literatur

Ackermann, I. J., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F.B. Binkowski, and U. Shankar (1998). Modal Aerosol dynamics model for Europe: Development and first applications. *Atmos. Environ.*, 32, 2891-2999.

Binkowski, F.S. and Shankar, U. (1995). The Regional Particulate Matter Model, 1. Model description and preliminary results, *J. Geophys. Res.*, 100, D12, 26191-26209.

Builtjes, P.J.H., C. Borrego, A.C. Carvalho, A. Ebel, M. Memmesheimer, H. Feichter, A. Münzenberg, E. Schaller, Z. Zlatev (2003). Global and Regional Atmospheric Modeling. Overview over the Subproject GLOREAM. In: *Towards Cleaner Air for Europe – Science, Tools and Applications. Part2: Overview from the Final Reports of the EUROTRAC-2 Subprojects.* Ed.: P.M. Midgley, M. Reuther; Markgraf Publishers, Weikersheim, pp. 139 -164.

Builtjes, P. and Schaap, M., (2005) Long range transport contribution to the PM load within Germany North-Hemispherical transport: Aerosol-Composition, natural and anthropogenic. Internationales BMU/UBA - Fachgespräch über den Beitrag des Ferntransport zur Feinstaubbelastung in Deutschland

Builtjes, P. (2005) North-Hemispherical transport: Aerosol composition, natural and anthropogenic. International BMU/UBA-Workshop on the Contribution from Long-Range Transport to the PM Load in Germany on 14 and 15 March 2005 in Umweltbundesamt Berlin

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

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

Derwent, R.G., D.S. Stevenson, W.J. Collins, and C.E. Johnson (2002). Coupling between the global and regional scale ozone distributions over Europe and the role of intercontinental transport, presented at the U.S. EPA/EMEP Workshop on Hemispheric Pollution, Bad Breisig, Germany, October 7-9.

Derwent, R.G., P.G. Simmonds, S. Seuring, and C. Dimmer (1998). Observation and interpretation of the seasonal cycles in the surface concentrations of ozone and carbon monoxide at Mace Head, Ireland from 1990 to 1994, *Atmos. Environ.*, 32, 145-157.

Ebel, A., N. Moussiopoulus, K. H. Becker, C.A. Borrego, R. Bouscaren, P.J.H. Builtjes, A. Flossmann, U. Hansen, M. Hantel, H. Hass, D. Poppe, R. Rosset, (1997a). Air quality modelling and models in EUMAC: an overview. In: *Transport and Chemical Transformation of Pollutants in the Troposphere.* Eds.: P. Borrell et al., Vol. 7, *Tropospheric Modelling and Emission Estimation*, eds. A. Ebel, Rainer Friedrich, Henning Rodhe, pp. 3 - 24.

Ebel, A., H. Elbern, H. Feldmann, H.J. Jakobs, C. Kessler, M. Memmesheimer, A. Oberreuter, G. Piekorz, (1997b) Air Pollution Studies with the EURAD Model System (3): EURAD - European Air Pollution Dispersion Model System. *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*, Hrsg. A. Ebel, M. Kerschgens, F.M. Neubauer, P. Speth, Heft Nr. 120

Ehhalt, D.H., Schmidt, U. , Zander, R. , Demoulin, Ph. , and Rinsland, C.P. , (1991), Seasonal cycle and secular trend of the total and tropospheric column abundance of ethane above the Jungfrauoch, *J. Geophys. Res.*, 96, 4985-4994,

Emmons, L.K. , Hauglustaine, D. , Müller, J.-F. , Carroll, M.A. , Brasseur, G.P. , Brunner, D. , Staehelin, J. , Thouret, V. , and Marenco, A. , (2000) Data composites of airborne observations of tropospheric ozone and its precursors, *J. Geophys. Res.*, 105, No. D16, 20497-20538.

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 Rates 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 Rates 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 Rates vom 12.2.2002 über den Ozongehalt der Luft. Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 67/14 vom 9.3. 2002.

EMEP (2003). Transboundary acidification, eutrophication and ground level ozone in Europe. PART I: Unified EMEP model description. EMEP Status Report 2003. ISSN 08606-4520.

Feldmann, H., Memmesheimer, M., Friese, E., Jakobs, H., Piekorz, G., Ebel, A. (2006) Hemisphärische Simulationsergebnisse mit EURAD. RIU, im Unterauftrag der FU Berlin

Feichter, J., U. Lohmann, and I. Schult, (1997). The atmospheric sulfur cycle in ECHAM-4 and its impact on the shortwave radiation. *Clim. Dyn.*, 13, 235-246.

Friese, E., M. Memmesheimer, I. J. Ackermann, H. Hass, A. Ebel, M. J. Kerschgens (2000). A study of aerosol-cloud interactions with a comprehensive air quality model. Contribution to the European Aerosol Conference Dublin, *J. Aerosol. Sci.*, 31, S54 - S55.

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

Gipson, G. and Young, J. (1999). Gas-phase chemistry. Chapter 8 in SCIENCE ALGORITHMS OF THE EPA MODELS-3 COMMUNITY MULTISCALE AIR QUALITY (CMAQ) MODELING SYSTEM Edited by: D. W. BYUN and J. K. S. CHING. Atmospheric Modeling Division National Exposure Research Laboratory U.S. Environmental Protection Agency Research Triangle Park, NC 27711, EPA/600/R-99/030

Isaksen, I.S.A. and Hov, Ø , (1987), Calculation of trends in the tropospheric concentration of O₃, OH, CO, CH₄ and NO_x, *Tellus*, 39B, 271-285.

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

Kerschbaumer, A., Stern, R. und Reimer, E. (2005) Ausbreitungsrechnungen mit dem Aerosol-Chemie-Transportmodells REM/CALGRID für die Region Berlin-Brandenburg. Abschlussbericht zum „Vorhaben der Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Berlin: Untersuchung des Potentials und der Umsetzbarkeit von Maßnahmen und der damit erzielbaren Minderungen der Feinstaub- (PM₁₀) und Stickoxidemissionen in Berlin“

Li, Q., D.J. Jacob, I. Bey, P.I. Palmer, B.N. Duncan, B.D. Field, R.V. Martin, A.M. Fiore, R.M. Yantosca, D.D. Parrish, P.G. Simmonds, and S.J. Oltmans, (2002) Transatlantic transport of pollution and its effects on surface ozone in Europe and North America, *J. Geophys. Res.*, 107(D13), 4166, doi:10.1029/2001JD001422.

Logan, J. (1998). An analysis of ozonesonde data for the troposphere, recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.* 104, 16, 1998

Loon van, M. et. al. (2004). Model Intercomparison in the framework of the review of the Unified EMEP. TNO-Report R 2004/282.

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

- Memmesheimer, M., H.J. Jakobs, J. Tippke, A. Ebel, M.J. Kerschgens, G. Piekorz, H. Geiß, B. Wickert, R. Friedrich, U. Schwarz (2001a).** Simulation of photooxidant formation during the BERLIOZ episode. Proceedings EUROTRAC Symposium 2000,.
- Memmesheimer, M., E. Friese, H.J. Jakobs, A. Ebel (2001b).** Anwendungsmöglichkeiten von 3-D-Chemie-Transport-Modellen für die PM_x-Quellenidentifizierung. Zusammenfassung des Vortrags auf dem Workshop „PM_x-Quellenidentifizierung: Methoden und Ergebnisse“, Duisburg 12./13., 16 Seiten.
- Memmesheimer M., Jakobs H. J., Friese E., Müller W. J., Ebel A. and Feldmann H. (2004)** Episodes of high concentrations of PM₁₀ and PM_{2.5} over Europe in winter 2002/2003: Meteorological conditions and chemical composition as calculated with a complex operational short-term air-quality model. *Journal of Aerosol Science*, Volume 35, Supplement 2, Pages 1251-1262
- Memmesheimer M., Feldmann H., Ebel, A., Piekorz, E., Friese, E. (2006)** Emissionsdatenbasis für die hemisphärische Modellierung von Spurenstoffen mit EURAD. RIU, im Unterauftrag der FU Berlin
- Nenes A, Pandis SN, Pilinis C (1998a).** ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols, *Aquat. Geoch.*, **4**, 123-152
- Nenes A., Pilinis C., and Pandis S.N. (1998b)** Continued Development and Testing of a New Thermodynamic Aerosol Module for Urban and Regional Air Quality Models, *Atmos. Env.*, **33**, 1553-1560
- Olivier, J.G.J. and J.J.M. Berdowski (2001)** Global emissions sources and sinks. In: Berdowski, J., Guicherit, R. and B.J. Heij (eds.) "The Climate System", pp. 33-78. A.A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands. ISBN 90 5809 255 0.
- Penkett, S. A. , Blake, N. J. , Lightman, P. , Marsh, A. R. W. , Anwyl, P. , and Butcher, G. , (1993),** The seasonal variation of nonmethane hydrocarbons in the free troposphere over the North Atlantic ocean: possible evidence for extensive reaction of hydrocarbons with the nitrate radical, *J. Geophys. Res.*, 98, No. D2, 2865-2885.
- Putaud, J.P. et al. (2004)** A European aerosol phenomenology- 2.: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmos. Env.* 38 (2004), pp.2579-2595.
- Reimer E. und Scherer B. (1992).** An operational meteorological diagnostic system for regional air pollution analysis and long-term modelling. *Air Poll. Modelling and its Applications IX*. Plenum Press
- RIU(2005)** Anwendung des EURAD-Modell-Systems im Rahmen des FE-Vorhabens 202 43 270. Förderverein des Rheinischen Instituts für Umweltforschung an der Universität zu Köln e.V.
- Schaap, M. (2000).** Aerosols in Lotos, TNO-Report R 2000/405 (2000).
- Schell B., I. J. Ackermann, H. Hass, F. S. Binkowski, and A. Ebel, (2001).** Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, *J. Geophys. Res.*, 106, 28275-28293.
- Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N. (1998).** Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change, John Wiley & Sons, Inc., New York, USA
- Solberg, S. , Dye, C. , Schmidbauer, N. , Herzog, A. , and Gehrig, R. , (1996),** Carbonyls and nonmethane hydrocarbons at rural European sites from the Mediterranean to the Arctic, *J. Atmos. Chem.*, 25, 33-66.
- Solberg, S. , Dye, C. , Walker, S.E. , and Simpson, D. , (2000),** Long-term measurements and model calculations of formaldehyde at rural European monitoring sites, *Atmospheric Environment*, 35, No. 2, 195-207.
- Stern, R. (2003)** 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., 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. (2004a) Weitere Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM-CALGRID für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien. Abschlussbericht im Rahmen des Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 201 43 250 auf dem Gebiet des Umweltschutzes „Anwendung modellgestützter Beurteilungssysteme für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien“.

Stern, R. (2004b) Großräumige PM10-Ausbreitungsmodellierung: Abschätzung der gegenwärtigen Immissionsbelastung in Europa und Prognose bis 2010. KRdL-Experten-Forum "Staub und Staubinhaltsstoffe", 2004-11-11/10, Düsseldorf, VDI-KRdL-Schriftenreihe 33, 2004

Stern, R. (2005b) Der Beitrag des Ferntransports zu den PM10- und den NO₂-Konzentrationen in Deutschland: Eine Modellstudie. KRdL-Experten-Forum "Partikel und Stickstoffdioxid", VDI-KRdL-Schriftenreihe 34, 2005

Stern, R. (2006a) Der Beitrag des Ferntransports zu den PM10- und den NO₂-Konzentrationen in Deutschland unter besonderer Betrachtung der polnischen Emissionen: Eine Modellstudie. Abschlussbericht zum Fe-Vorhaben 202 43 270 „Entwicklung von Modellen zur Identifizierung von Schadstoffquellen -insbesondere im Verkehrsbereich- im Rahmen der 22. BImSchV - Dokumentation, Weiterentwicklung, Validierung und Maßnahmenplanung für ein bundeseinheitliches Vorgehen“

Stern, R. (2006b) Erstellung einer hoch aufgelösten Emissionsdatenbasis für Deutschland und Europa, Bezugsjahre 2000 und 2010. Abschlussbericht zum Fe-Vorhaben 202 43 270 „Entwicklung von Modellen zur Identifizierung von Schadstoffquellen -insbesondere im Verkehrsbereich- im Rahmen der 22. BImSchV - Dokumentation, Weiterentwicklung, Validierung und Maßnahmenplanung für ein bundeseinheitliches Vorgehen“

Stockwell, W. R., Middleton P., Chang J. S., Tang X., (1990). The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. *J. Geophys. Res.* 95, 16343-16367

Sundet, J.K. , (1997), Model studies with a 3-d global CTM using ECMWF data, PhD thesis, Department of Geophysics, University of Oslo, Norway.

Visscherdijk, A. und Van der Gon, D. (2005) Gridded European anthropogenic emission data for NO_x, SO₂, NMVOC, NH₃, CO, PM10, PM2.5 and CH₄ for the year 2000. TNO-report B&O-A R 2005/106.

Warneck, P., (1988). Chemistry of the Natural Atmosphere. Academic Press, Inc., Vol. 41, International Geophysics Series, New York.

Yamartino R.J., Scire J.S., Carmichael G.R. and Chang Y.S. (1992) The CALGRID mesoscale photochemical grid model. - I Model formulation. *Atmospheric Environment*, 26A, 1493-1512.

9 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: links: rot unterlegt das EURAD-Modell-Gebiet im stereopolaren, äquidistanten Gitter mit einer horizontalen Auflösung von 125 km; rechts: das geographische RCG-Gitter mit einer Auflösung von 0.5° in Ost-West-Richtung und 0.25° in Nord-Süd-Richtung.	13
Abbildung 2 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Mace Head (Irland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG.....	17
Abbildung 3 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Neuglobsow, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.	18
Abbildung 4 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Langenbrügge, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.	18
Abbildung 5 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Schauinsland, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.	19
Abbildung 6 Berechnete und beobachtete Ozon-Zeitreihe in Schauinsland, 2001. Täglicher Ozonmittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG (1.Modellschicht); EURAD = EURAD-Modell; RCG 5.Schicht = Standardversion RCG (5. Modellschicht).	19
Abbildung 7 Berechnete und beobachtete NO-Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG.....	20
Abbildung 8 Berechnete und beobachtete NO ₂ -Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG.....	21
Abbildung 9 Berechnete und beobachtete NO-Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG.....	21
Abbildung 10 Berechnete und beobachtete NO ₂ -Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG.....	22
Abbildung 11 Berechnete und beobachtete Ammonium-Zeitreihe in Melpitz, 2001. Täglicher Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.....	23
Abbildung 12 Berechnete und beobachtete Sulfat-Zeitreihe in Melpitz, 2001. Täglicher Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.....	24
Abbildung 13 Berechnete und beobachtete Nitrat-Zeitreihe in Melpitz, 2001. Täglicher Mittelwert in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Obs = beobachtete Werte; RCG = Standardversion RCG; EURAD = EURAD-Modell.....	24
Abbildung 14 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: Ammonium.....	25
Abbildung 15 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: Sulfat	25
Abbildung 16 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: Nitrat	26
Abbildung 17 Beobachtete (x-Achse) und simulierte (y-Achse) Jahresmittelwerte: SO ₂	26
Abbildung 18 Berechnete Ozon-Jahresmittelwerte 2001 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit der Standardversion RCG (links) und mit Randbedingungen aus EURAD (rechts)	27

Abbildung 19 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Ozon-Jahresmittelwerte des Basislaufs.....	28
Abbildung 20 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. Jahresmittelwerte an Ozon des Basislaufs	29
Abbildung 21 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Sommermittelwerte an Ozon des Basislaufs.....	29
Abbildung 22 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. Sommermittelwerte an Ozon des Basislaufs.....	30
Abbildung 23 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Wintermittelwerte an Ozon des Basislaufs	30
Abbildung 24 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Wintermittelwerte an Ozon des Basislaufs	31
Abbildung 25 Berechnete NO_2 -Jahresmittelwerte 2001 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit der Standardversion RCG (links) und mit der RCG-EURAD-Version (rechts)	32
Abbildung 26 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. NO_2 - Jahresmittelwerte des Basislaufs.....	33
Abbildung 27 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. NO_2 - Jahresmittelwerte des Basislaufs.....	33
Abbildung 28 Berechnete PM_{10} -Jahresmittelwerte 2001 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit der Standardversion RCG (links) und mit der RCG-EURAD-Version (rechts)	34
Abbildung 29 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Jahresmittelwerte an PM_{10} des Basislaufs	34
Abbildung 30 Differenz der RCG-Versionen: RCG-EURAD – RCG-Standard in %. Jahresmittelwerte an PM_{10} des Basislaufs	35
Abbildung 31 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Mace Head (Irland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	36
Abbildung 32 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Cabo de Creus (Spanien) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD	36
Abbildung 33 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Shepeljovo (Russland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	37
Abbildung 34 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Osen (Norwegen) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	37
Abbildung 35 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte über alle Messstationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	39
Abbildung 36 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	39
Abbildung 37 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Illmitz (Österreich) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	40
Abbildung 38 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Jeleniow (Polen) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	40
Abbildung 39 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Ispra (Italien) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD.....	41

Abbildung 40 Berechnete und beobachtete Ozon-Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD	41
Abbildung 41 Obere Ozon-Randbedingung im RCG-Modell nach Logan (RCG-Standard) und nach EURAD (RCG-EURAD-Version). Monatsmittelwerte gemittelt über alle horizontalen Zellen des Modellgebiets.	42
Abbildung 42 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus Tagesmittelwerten an Ozon mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).	42
Abbildung 43 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus den 8 höchsten Stundenwerten pro Tag an Ozon mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).	43
Abbildung 44 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus Tagesmaxima an Ozon mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).	43
Abbildung 45 Berechnete und beobachtete NO_2 -Monatsmittelwerte über alle Messstationen in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD	44
Abbildung 46 Berechnete und beobachtete NO_2 -Monatsmittelwerte in Melpitz (Deutschland) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD	45
Abbildung 47 Berechnete und beobachtete NO_2 -Monatsmittelwerte in Illmitz (Österreich) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD	45
Abbildung 48 Berechnete und beobachtete NO_2 -Monatsmittelwerte in Jeleniow (Polen) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD	46
Abbildung 49 Berechnete und beobachtete NO_2 -Monatsmittelwerte in Vredepeel (Niederlande) in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 2001. Obs = beobachtete Werte; EURAD = EURAD-Modell; RCG = Standardversion RCG, RCG EURAD = RCG mit Randbedingungen aus EURAD	46
Abbildung 50 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus NO_2 -Tagesmittelwerten mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).	47
Abbildung 51 Statistische Kenngrößen aus Stundenwerten für Ozon, NO_2 , NO_x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD)	49
Abbildung 52 Statistische Kenngrößen aus Tagesstundenwerten für Ozon, NO_2 , NO_x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD)	50
Abbildung 53 Statistische Kenngrößen für Sulfate (SO_4), Ammonium (NH_4), Nitrate (NO_3), Gesamt-PM10 (PM10) über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD)	50

Abbildung 54 Vergleich der simulierten Jahresmittelwerte aus Tagesmittelwerten an PM10 mit unterschiedlichen RCG-Versionen: x-Achse: RCG-Standard; y-Achse: RCG-EURAD. Die Formel bezieht sich die lineare Regression zwischen den simulierten Werten und den Bestimmtheitsgrad (R^2).	51
Abbildung 55 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Jahresmittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	53
Abbildung 56 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Jahresmittelwertänderung in %	53
Abbildung 57 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Sommermittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	54
Abbildung 58 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Sommermittelwertänderung in %	54
Abbildung 59 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Wintermittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	55
Abbildung 60 Berechnete Ozonänderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Wintermittelwertänderung in %	55
Abbildung 61 Berechnete NO_2 -Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Jahresmittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	56
Abbildung 62 Berechnete NO_2 -Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Jahresmittelwertänderung in %	56
Abbildung 63 Berechnete PM10-Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); absolute Jahresmittelwertänderung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$	57
Abbildung 64 Berechnete PM10-Änderung aufgrund veränderter Emissionen: Modellversion RCG mit Standard-Randbedingungen (links) und RCG mit Randbedingungen, abgeleitet aus dem entsprechenden EURAD-Lauf (rechts); relative Jahresmittelwertänderung in %	57
Abbildung 65 Von EURAD berechnete Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 (blaue Balken) und mit geschätzten Emissionen für das Jahr 2010 (rote Balken) und den daraus resultierenden prozentualen Änderungen: Mace Head (Irland)	59
Abbildung 66 Von EURAD berechnete Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 (blaue Balken) und mit geschätzten Emissionen für das Jahr 2010 (rote Balken) und den daraus resultierenden prozentualen Änderungen: Waldhof (Deutschland)	59

Abbildung 67 Von den zwei RCG-Versionen berechneten Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 und mit geschätzten Emissionen für das Jahr für die Messstation Waldhof: violette Balken: Standard-RCG-Berechnung des Basislaufs, orange Balken: Standard-RCG-Berechnung des Szenariolaufs 2010, dunkelgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Basislaufs, hellgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Szenariolaufs 2010.....	60
Abbildung 68 Von den zwei RCG-Versionen berechneten Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 und mit geschätzten Emissionen für das Jahr für die Messstation Zingst: violette Balken: Standard-RCG-Berechnung des Basislaufs, orange Balken: Standard-RCG-Berechnung des Szenariolaufs 2010, dunkelgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Basislaufs, hellgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Szenariolaufs 2010.....	61
Abbildung 69 Von den zwei RCG-Versionen berechneten Ozon-Monatsmittel (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) mit den Emissionen für 2001 und mit geschätzten Emissionen für das Jahr für die Messstation Deuselbach: violette Balken: Standard-RCG-Berechnung des Basislaufs, orange Balken: Standard-RCG-Berechnung des Szenariolaufs 2010, dunkelgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Basislaufs, hellgrüne Balken: RCG-EURAD-gekoppelte Berechnung des Szenariolaufs 2010.....	61
Abbildung 70 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der Ozon-Jahresmittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)).....	63
Abbildung 71 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der Ozon-Sommermittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)).....	64
Abbildung 72 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der Ozon-Wintermittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)).....	64
Abbildung 73 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der NO_2 -Jahresmittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)). Positive Zahlen bedeuten eine größere Reduktion der NO_2 -Jahresmittelwerte vom Emissionszustand 2000 nach 2010 bei Verwendung der EURAD-Randbedingungen als bei Verwendung der RCG-Standardbedingungen.	65
Abbildung 74 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der PM_{10} -Jahresmittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)).....	66
Abbildung 75 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der PM_{10} -Sommermittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)).....	66
Abbildung 76 Differenz (in $\mu\text{g}/\text{m}^3$) der PM_{10} -Wintermittelwertsänderung von den Emissionsbedingungen 2000 zu den Emissionsbedingungen 2010 aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen. (RCG_Standard(E2010-E2000) – RCG_EURAD(E2010-E2000)).....	67
Abbildung 77 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Ozon in Waldhof, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD.....	68

Abbildung 78 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in % an Ozon in Waldhof, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD	68
Abbildung 79 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Ozon in Zingst, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD	69
Abbildung 80 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in % an Ozon in Zingst, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD	69
Abbildung 81 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ an Ozon in Deuselbach, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD	70
Abbildung 82 Berechnete Jahres- und Monatsmitteländerung in % an Ozon in Deuselbach, Deutschland: Blau: RCG-Standard; Rot: RCG-EURAD	70
Abbildung 83 Obere Ozon-Randbedingung im RCG-Modell nach Logan (RCG-Standard) und nach EURAD (RCG-EURAD-Version). Monatsmittelwerte gemittelt über alle horizontalen Zellen des Modellgebiets. Oben: EURAD 2000 und EURAD 2010. Unten: RCG 2010 und EURAD 2010.....	72
Abbildung 84 Differenz der RCG-Versionen: RCG-L-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Jahres-, Winter- und Sommermittelwerte an Ozon. Die Abbildungen sind autoskaliert.	74
Abbildung 85 Differenz der RCG-Versionen: RCG-L-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. NO_2 -Jahres-, Winter- und Sommermittelwerte. Die Abbildungen sind autoskaliert.....	75
Abbildung 86 Differenz der RCG-Versionen: RCG-L-EURAD – RCG-Standard in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. PM_{10} -Jahresmittelwerte.....	76
Abbildung 87 Jahresmittelwert Ozon in $\mu\text{g}/\text{m}^3$: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen.....	77
Abbildung 88 Sommermittelwert Ozon in $\mu\text{g}/\text{m}^3$: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen.....	77
Abbildung 89 Wintermittelwert Ozon in $\mu\text{g}/\text{m}^3$: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen.....	78
Abbildung 90 Prozentuale Ozonänderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Jahresmittel.....	78
Abbildung 91 Prozentuale Ozonänderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Sommermittel	79
Abbildung 92 Prozentuale Ozonänderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Wintermittel	79
Abbildung 93 Jahresmittelwert NO_2 in $\mu\text{g}/\text{m}^3$: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen	80
Abbildung 94 Absolute NO_2 -Änderung aufgrund der Null-Randbedingungen im Jahresmittel	80
Abbildung 95 Jahresmittelwert PM_{10} in $\mu\text{g}/\text{m}^3$: links mit Null-Randbedingungen, rechts: RCG-Standard-Randbedingungen.....	81
Abbildung 96 Prozentuale PM_{10} -Änderung aufgrund der Randbedingungen im Jahresmittel	82
Abbildung 97 Differenz der Ozonjahresmittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (links) und % (rechts) aus dem RCG-Lauf mit EURAD-Monatsmitteln und dem Lauf mit EURAD-Stundenmitteln für die Randbedingungen.....	83
Abbildung 98: Differenz der Ozonsommermittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (links) und % (rechts) aus dem RCG-Lauf mit EURAD-Monatsmitteln und dem Lauf mit EURAD-Stundenmitteln für die Randbedingungen.	84
Abbildung 99 Differenz der Ozonwintermittelwerte in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (links) und % (rechts) aus dem RCG-Lauf mit EURAD-Monatsmitteln und dem Lauf mit EURAD-Stundenmitteln für die Randbedingungen.....	84
Abbildung 100 Statistische Kenngrößen aus Stundenwerten für Ozon, NO_2 , NO_x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit	

Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD) mit monatlich gemittelten Werten.	85
Abbildung 101 Statistische Kenngrößen aus den Stundenwerten (nur Tag) für Ozon, NO ₂ , NO _x und NO über alle verfügbaren Messungen und den Modellen EURAD, RCG mit Standardrandbedingungen (RCG_itb_RCG) und RCG mit Randbedingungen aus EURAD (RCG_itb_EURAD) mit monatlich gemittelten Werten.	86
Abbildung 102 Ozon-Jahresmittel und Monatsmittel an der Station Waldhof. RCG-EURAD-Lauf mit monatlich und stündlich gemittelten Randbedingungen.	87
Abbildung 103 Ozon-Tagesmaxima im Jahresmittel und im Monatsmittel an der Station Waldhof. RCG-EURAD-Lauf mit monatlich und stündlich gemittelten Randbedingungen.	87
Abbildung 104 Berechnete Ozonänderung aufgrund der Emissionsänderung von 2000 nach 2010: Modellversion RCG-EURAD mit EURAD-Randbedingungen für 2010 (links) bzw. für den Basislauf 2001 (rechts); absolute Änderung der Jahresmittelwerte in µg/m ³	89
Abbildung 105 Absolute Unterschiede zwischen den in Abbildung 104 dargestellten Ozonänderungen in µg/m ³	89