

TEXTE

149/2023

Abschlussbericht

Immissionsseitige Bewertung der Luftschadstoff- Emissionen einzelner Quellen und Anpassung der nationalen Emissionsdaten zur Beurteilung der Luftqualität

von:

Anne Caroline Lange, Philipp Franke, Pascal Backes, Hendrik Elbern
Forschungszentrum Jülich, Jülich

Herausgeber:
Umweltbundesamt

Für Mensch & Umwelt

Umwelt 
Bundesamt

TEXTE 149/2023

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

Forschungskennzahl 3717 51 252 0
FB001242

Abschlussbericht

**Immissionsseitige Bewertung der
Luftschadstoff-Emissionen einzelner Quellen
und Anpassung der nationalen
Emissionsdaten zur Beurteilung der
Luftqualität**

von

Anne Caroline Lange, Philipp Franke, Pascal Backes,
Hendrik Elbern
Forschungszentrum Jülich, Jülich

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Impressum

Herausgeber

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

Durchführung der Studie:

Forschungszentrum Jülich GmbH (IEK-8)
Wilhelm-Johnen-Str.
52425 Jülich

Abschlussdatum:

März 2022

Redaktion:

Fachgebiet II 4.2 Beurteilung der Luftqualität, II 4.1 Grundsatzfragen der Luftreinhaltung
Stefan Feigenspan, Dr. Stephan Nordmann

Publikationen als pdf:

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

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, November 2023

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

Kurzbeschreibung: Immissionsseitige Bewertung der Luftschatstoff-Emissionen einzelner Quellen und Anpassung der nationalen Emissionsdaten zur Beurteilung der Luftqualität

Zur Bewertung der Luftqualität und zur Simulation von Szenarien hinsichtlich der Minderung der Schadstoffbelastung in der Atmosphäre werden Chemie-Transport-Modelle verwendet. Diese beruhen auf Emissionsdaten, die in Emissionsinventaren meist als nationale Jahresemissionen zusammengefasst werden. Mittels Verteilfunktionen werden diese Gesamtemissionen sowohl räumlich als auch zeitlich verteilt. Diese Verteilfunktionen geben ein statistisches Emissionsverhalten wieder, welches in Wirklichkeit aufgrund von Wetterbedingungen und individuellen Entscheidungen der Menschen sehr viel variabler ist. Erstmals wird eine vollumfängliche Analyse anthropogener Emissionen mithilfe der im EURAD-IM (European Air pollution Dispersion – Inverse Model) implementierten 4D-var (vier-dimensionale variationelle) Datenassimilationsmethode durchgeführt. Hierbei werden unterschiedliche atmosphären-chemische Beobachtungen genutzt, um Emissionskorrekturfaktoren für die Emissions-Eingangsdaten aus dem Gridding Emission Tool for ArcGIS (GRETA) zu bestimmen. Der Fokus liegt auf der Optimierung anthropogener Spurengas- und Aerosolemissionen für das Analysejahr 2016. Unter Verwendung von drei verschiedenen horizontalen Modellauflösungen ($15 \times 15 \text{ km}^2$, $5 \times 5 \text{ km}^2$, $1 \times 1 \text{ km}^2$) werden die Emissionen in Europa, Deutschland und in drei innerdeutschen Regionen detailliert bezüglich ihrer horizontalen Verteilung analysiert. Die 4D-var Re-Analyse ermöglicht eine erfolgreiche Evaluierung der räumlichen Verteilung der Emissionen in Europa. Die gesamt-europäischen Emissionskorrekturen deuten im Mittel auf zu geringe Emissionen in Emissionsinventaren hin. Die Emissionskorrekturen für Deutschland ergeben, dass die nationalen Gesamtemissionen im Mittel nahe den analysierten Emissionen liegen. Allerdings werden regionale Unterschiede zu den Emissionsinventaren analysiert, die auf Verbesserungspotentiale der räumlichen Verteilung der Emissionen durch GRETA hindeuten. Die räumlich aufgelösten Emissionskorrekturen sollten als Monats- bzw. saisonales Mittel genutzt werden. Zur Rückführung auf potenzielle Unsicherheiten der räumlichen Verteilung der Emissionsdaten müssen die Ergebnisse folglich mit räumlichen Verteilparametern, die zur Verteilung der Emissionen genutzt werden, korreliert werden.

Abstract: Spatially resolved evaluation of air pollutant emissions and optimization of national emission data for air quality analyses

Chemistry-transport-models are, among others, used to evaluate air quality and to simulate mitigation scenarios of severe air pollution in the atmosphere. For this, anthropogenic emission data are included that are provided by emission inventories as a national annual emission rate. These annual emission rates are distributed using predefined spatio-temporal distribution functions, which reflect the statistical knowledge on emission behavior by specific sectors. However, for certain weather conditions or societal aspects, these statistical emissions may largely differ from the true emissions. Thus, for the first time, a comprehensive analysis of anthropogenic emissions using the 4D-var (four dimensional variational) data assimilation method implemented in the EURAD-IM (EUROpean Air pollution Dispersion – Inverse Model) is performed. Here, a variety of observations of atmospheric constituents are used to derive correction factors for the emission input data, which are spatially distributed by the Gridding Emission Tool for ArcGIS (GRETA). The re-analysis focusses on anthropogenic trace gas and aerosol emissions in the year 2016. Simulations are performed on three different horizontal resolutions to correct emissions in Europe ($15 \times 15 \text{ km}^2$), Germany ($5 \times 5 \text{ km}^2$) and three inner-German regions ($1 \times 1 \text{ km}^2$). The results enable a successful evaluation of the spatial distribution of emissions within Europe. The analysis shows an increase in total European emissions. For Germany, the corrections of the total emissions are small. However, a strong regional variability of the emission correction factors indicates potential to improve the spatial distribution of the emissions within GRETA. The spatially resolved emission corrections should be used as monthly and seasonal averages. For a better evaluation of potential uncertainties in GRETA, the analyzed emission correction factors will be correlated with the spatial distribution functions.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis.....	10
Tabellenverzeichnis.....	14
Abkürzungsverzeichnis.....	15
Chemisch Abkürzungen.....	16
Zusammenfassung.....	18
Summary	29
1 Problemstellung und Zielsetzung	39
1.1 Einleitung	39
1.2 Ziele des Vorhabens.....	42
2 Methodik	43
2.1 Modelle	43
2.1.1 EURAD-IM	43
2.1.2 WRF.....	44
2.2 Datenassimilation	45
2.2.1 Vierdimensionale variationelle Datenassimilation	45
2.2.2 Inkrementaler Ansatz für 4D-var	47
2.2.3 Besonderheiten bei der Optimierung von Emissionskorrekturfaktoren	49
2.2.4 Berechnung der Fehlerkovarianzmatrizen des Hintergrundes und der Korrekturfaktoren der Emissionen	50
2.3 Begriffserklärung.....	52
2.4 Emissionen	53
2.4.1 Anthropogene Emissionen.....	54
2.4.1.1 Nationale Emissionen	54
2.4.1.2 Europäische Emissionen	54
2.4.2 Verteilung anthropogener Emissionen auf Modellvariablen.....	57
2.4.3 Zeitliche Verteilung anthropogener Emissionen	58
2.4.4 Vertikale Verteilung anthropogener Emissionen.....	59
2.4.5 Biogene Emissionen im EURAD-IM	60
2.5 Vergleich anthropogener und biogener Emissionen	61
2.6 Beobachtungsdaten	63
3 Durchführung der Analyse der Jahresemissionen.....	66
3.1 Beschreibung der Modellgebiete.....	66
3.2 Auswahl des Referenzjahres	68

3.3	Auswahl hochaufgelösten Modellgebiete und Analyseperioden	76
3.4	Praktische Durchführung der Analysesimulationen	79
3.4.1	Einrichtung der Modellkette	79
3.4.2	Durchführung der Simulationen	80
3.4.3	Anpassung des EURAD-IM	82
3.5	Metriken	83
4	Auswertung	85
4.1	Vergleich der Simulationen mit Beobachtungen	85
4.1.1	CO-Konzentrationen	85
4.1.2	SO ₂ -Konzentrationen	91
4.1.3	NO ₂ - und O ₃ -Konzentrationen	93
4.1.4	PM ₁₀ - und PM _{2,5} -Konzentrationen	97
4.1.5	NH ₃ -Konzentrationen	103
4.2	Analyse der Emissionskorrekturen	105
4.2.1	CO-Emissionskorrekturen	106
4.2.2	SO _x -Emissionskorrekturen	109
4.2.3	NH ₃ -Emissionskorrekturen	111
4.2.4	NO _x - und VOC-Emissionskorrekturen	113
4.2.5	PM ₁₀ - und PM _{2,5} -Emissionskorrekturen	117
4.2.6	Gesamtemissionen für das Jahr 2016	120
4.3	Vergleich der Ergebnisse auf verschiedenen Modellaufösungen	121
4.3.1	Modellregion ua1 – überwiegend landwirtschaftlich geprägt	122
4.3.2	Modellregion ub1 – überwiegend industriell geprägt	131
4.3.3	Modellregion uc1 – überwiegend urban geprägt	138
4.3.4	Fazit zur hochaufgelösten Analyse	148
4.4	Einschränkungen der Analyse	149
5	Ausblick	150
6	Schlussfolgerung	153
	Danksagung	156
A	Sektorspezifische Emissionskorrekturen als Erweiterung des EURAD-IM	157
A.1	Motivation	157
A.2	Methode zur Berechnung der sektorspezifischen Emissionskorrekturfaktoren	157
A.2.1	Allgemeine Veränderungen	157
A.2.2	Optimierung der sektorspezifischen Emissionskorrekturfaktorberechnung	159

Volle Korrelation zwischen den Spezies innerhalb eines Sektors	159
Streckung des Gradient entlang von Straßen.....	159
Skalierung der Gradienten zur verschiedenen Gewichtung der Spezies	160
A.3 Vorläufige Ergebnisse.....	160
A.3.1 Ergebnisse aus Identical Twin Experimenten	161
A.3.2 Ergebnisse mit realen Beobachtungen für den 10. März 2016 in Nordrhein-Westfalen.....	163
A.4 Ausblick: Potenzial und Limitierung der Methode.....	164
B Anlage zur Auswertung des Projektvorhabens	166
B.1 Biogener Anteil an Gesamtemissionen.....	166
B.2 Test der vertikalen Verteilung der Emissionen.....	167
B.3 CO Konzentrationen.....	168
B.4 NH ₃ Konzentrationen	169
B.5 O ₃ Konzentrationen.....	170
B.6 Emissionskorrekturen in Europa	173
B.7 Zum Vergleich der Ergebnisse auf verschiedenen Modellauflösungen.....	175
B.8 Schlussfolgerung	178
7 Quellenverzeichnis	179

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1:	Veranschaulichung des 4D-var Prinzips.....	46
Abbildung 2:	Modelltrajektorien unter Berücksichtigung einer Separatrix ..	47
Abbildung 3:	Exemplarischer Tagesgang von NO ₂ -Emissionen	49
Abbildung 4:	Korrelationsmatrizen der Korrekturfaktoren der Emissionen..	52
Abbildung 5:	Schematische Darstellung der verschiedene Modellläufe und deren Zusammenhänge.....	53
Abbildung 6:	Schematische Darstellung des EEM-Präprozessors.....	56
Abbildung 7:	Vergleich der TNO-Schiffsemissionen mit den Landnutzungsdaten	56
Abbildung 8:	Zeitliche Verteilfunktionen für anthropogene Emissionen im EURAD-IM	59
Abbildung 9:	Vertikale Verteilfunktionen für anthropogene Emissionen im EURAD-IM	60
Abbildung 10:	Vergleich biogener und anthropogener VOC-Emissionen für das Jahr 2016	61
Abbildung 11:	Vergleich biogener und anthropogener Gesamtemissionen im Jahr 2016	62
Abbildung 12:	Jahresgang der Anteile biogener und anthropogener Emissionen im Jahr 2016	62
Abbildung 13:	Europäische Luftqualitäts-Beobachtungsstationen	63
Abbildung 14:	Verteilung der NH ₃ -Beobachtungen.....	64
Abbildung 15:	Vergleich der vertikalen Auflösung des EURAD-IM mit 23 und 30 Schichten	66
Abbildung 16:	Vergleich der 5 km-Modellgitter	68
Abbildung 17:	Temperatur-, Niederschlag-, Ozon- und Feinstaubzeitreihen für Deutschland von 2010-2017 zur Ermittlung des Analysejahres	69
Abbildung 18:	Temperaturanomalie im Dezember 2015	70
Abbildung 19:	Überschreitungsstunden der O ₃ -Informationsschwelle von 2000-2017.....	71
Abbildung 20:	Temperaturanomalien und Niederschlagskarte für ausgewählte Monate 2010	72
Abbildung 21:	Niederschlagsanomalien in Deutschland im Mai und Juni 2013	73
Abbildung 22:	Temperatur- und Niederschlagsanomalien in Deutschland für Sommer 2017	73
Abbildung 23:	Temperatur- und Niederschlagsanomalien in Deutschland für 2012	74
Abbildung 24:	Temperatur- und Niederschlagsanomalien in Deutschland für 2016	74
Abbildung 25:	Saharastaubtage an der Messstation Hohenpeißenberg.....	75

Abbildung 26:	Verbrannte Waldfläche in südlichen EU-Staaten von 2012-2016	75
Abbildung 27:	Potenzielle 1 km-Modellgebiete in Deutschland	77
Abbildung 28:	Flussdiagramm des EURAD-IM	80
Abbildung 29:	CO-RMSE Evaluierung in Europa	85
Abbildung 30:	RMSE der CO-Konzentrationen in Deutschland	86
Abbildung 31:	Vergleich der CO-Tagesmittelwerte	88
Abbildung 32:	Häufigkeitsverteilung der CO-Tagesmittelkonzentration.....	89
Abbildung 33:	Monatsmittelwerte der CO-Konzentration in Deutschland	89
Abbildung 34:	Monatsmittelwerte der CO Konzentration in Bayern	90
Abbildung 35:	SO ₂ -RMSE Evaluierung in Europa	91
Abbildung 36:	Vergleich der SO ₂ -Tagesmittelwerte	92
Abbildung 37:	SO ₂ -RMSE Evaluierung in Deutschland.....	92
Abbildung 38:	SO ₂ -Konzentrationen in Nordrhein-Westfalen.....	93
Abbildung 39:	O ₃ - und NO ₂ -RMSE Evaluierung in Europa	94
Abbildung 40:	O ₃ - und NO ₂ -Tagesmittelkonzentrationen in Deutschland	95
Abbildung 41:	Zeitreihe der O ₃ -Tagesmaxima und -minima für Deutschland.	96
Abbildung 42:	Wochengang des relativen NO ₂ -Fehlers in Deutschland.....	97
Abbildung 43:	PM ₁₀ -RMSE Evaluierung in Europa	98
Abbildung 44:	Häufigkeitsverteilung der PM ₁₀ -Konzentrationen in Deutschland.....	100
Abbildung 45:	Vergleich der PM ₁₀ -Tagesmittelwerte in Deutschland.....	101
Abbildung 46:	Relativer Anteil der PM _{2,5} -Konzentrationen an den PM ₁₀ - Konzentrationen.....	102
Abbildung 47:	Vergleich der PM _{2,5} -Konzentrationen in Deutschland.....	102
Abbildung 48:	Häufigkeitsverteilung der PM _{2,5} -Konzentrationen in Deutschland.....	103
Abbildung 49:	Vergleich der NH ₃ -Monatsmittelkonzentrationen in Niedersachsen und Mecklenburg-Vorpommern	104
Abbildung 50:	Räumlich gemittelte Zeitreihen der Emissionskorrekturen für Deutschland.....	106
Abbildung 51:	Vergleich der jährlichen CO-Emissionen mit deren Korrekturen	107
Abbildung 52:	Relative Änderung der CO-Konzentration im Vergleich zu den CO-Emissionskorrekturen.....	108
Abbildung 53:	Vergleich der CO-Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen	109
Abbildung 54:	Räumliche Verteilung der SO _x -Emissionskorrekturen	110
Abbildung 55:	Vergleich der SO _x -Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen	111
Abbildung 56:	Räumliche Verteilung der NH ₃ -Emissionskorrekturen	112
Abbildung 57:	Vergleich der jährlichen Emissionskorrekturfaktoren für NH ₃ mit den Emissionsstärken an PM ₁₀ -Beobachtungsstationen .	113

Abbildung 58:	Räumliche Verteilung der NO _x -Emissionskorrekturen	114
Abbildung 59:	Räumliche Verteilung der VOC-Emissionskorrekturen.....	115
Abbildung 60:	Vergleich der NO _x -Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen.....	116
Abbildung 61:	Vergleich der VOC-Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen.....	117
Abbildung 62:	Vergleich der originalen mit den nachbereiteten Emissionskorrekturen für PM ₁₀ und PM _{2,5}	119
Abbildung 63:	Räumliche Verteilung der PM _{2,5} -Emissionskorrekturen	120
Abbildung 64:	Vergleich der Gesamtemissionen für 2016 mit den verschiedenen Berichterstattungen.....	120
Abbildung 65:	Dominierende GNFR-Sektoren im ua1-Modellgebiet	123
Abbildung 66:	Differenz der NO ₂ -Konzentrationen aus Analyse und Hintergrund an allen Beobachtungsstationen im ua1- Modellgebiet	124
Abbildung 67:	Normalisierten mittleren Bias aller Simulationen innerhalb des ua1-Modellgebiets.....	125
Abbildung 68:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NO _x für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets.....	126
Abbildung 69:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NMVOC für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets	127
Abbildung 70:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NH ₃ für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets.....	129
Abbildung 71:	Räumlich gemittelte Emissionskorrekturfaktoren für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets	130
Abbildung 72:	Dominierende GNFR-Sektoren im ub1-Modellgebiet	131
Abbildung 73:	Mittlere NO ₂ -Konzentration der Beobachtungen und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von NO ₂ innerhalb des ub1- Modellgebiets.....	132
Abbildung 74:	Mittlere SO ₂ -Konzentration der Beobachtung und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von SO ₂ innerhalb des ub1- Modellgebiets.....	133
Abbildung 75:	Normalisierten mittleren Bias aller Simulationen innerhalb des ub1-Modellgebiets	134
Abbildung 76:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für CO für alle Modellaufösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets	135

Abbildung 77:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für SO _x für alle Modellaufösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets	136
Abbildung 78:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NO _x für alle Modellaufösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets	137
Abbildung 79:	Räumlich gemittelte Emissionskorrekturfaktoren für alle Modellaufösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets	138
Abbildung 80:	Dominierende GNFR-Sektoren im uc1-Modellgebiet.....	139
Abbildung 81:	Normalisierten mittleren Bias aller Simulationen innerhalb des uc1-Modellgebiets.....	140
Abbildung 82:	Mittlere NO ₂ -Konzentration der Beobachtung und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von NO ₂ innerhalb des uc1-Modellgebiets.....	141
Abbildung 83:	Mittlere PM ₁₀ -Konzentration der Beobachtung und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von PM ₁₀ innerhalb des uc1-Modellgebiets.....	142
Abbildung 84:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NO _x für alle Modellaufösungen innerhalb des uc1-Modellgebiets	144
Abbildung 85:	Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für CO für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets.....	145
Abbildung 86:	Emissionskorrekturfaktoren für alle Modellaufösungen an den Beobachtungsstandorten von DEBE051 und DEBE032	147
Abbildung 87:	Straßenfeld in NRW	160
Abbildung 88:	Emissionskorrekturfaktoren im Identical Twin-Experiment...	161
Abbildung 89:	Durchschnittliches Abweichungsquadrat zwischen Analyse und nature run.....	162
Abbildung 90:	Sektorspezifische Emissionskorrekturfaktoren für den 10. März 2016 in NRW.....	163
Abbildung 91:	RMSE des Hintergrundlaufs und der Analyse.....	164
Abbildung 92:	Biogener Anteil an Gesamtemissionen	166
Abbildung 93:	Vergleich der Simulationen mit verschiedenen vertikalen Emissionsverteilungen im Rahmen des CAMS Projektes	167
Abbildung 94:	Häufigkeitsverteilung der CO-Konzentrationen an Assimilationsstationen	168
Abbildung 95:	Vergleich der je Bundesland gemittelten NH ₃ -Konzentrationen	169
Abbildung 96:	Modellwetter am 28.05.2016, 12 UTC	170
Abbildung 97:	Tägliche Minima und Maxima der O ₃ -Konzentration	171

Abbildung 98:	Mittlerer Wochengang der CO Konzentrationen	172
Abbildung 99:	Temperaturadvektion am 20.02.2016, 6 UTC	172
Abbildung 100:	Emissionsänderung für das Jahr 2016	173
Abbildung 101:	Emissionsänderung für das Jahr 2016	174
Abbildung 102:	Beobachtungsstationen im Modellgebiet ua1	175
Abbildung 103:	Beobachtungsstationen im Modellgebiet ub1	176
Abbildung 104:	Beobachtungsstationen im Modellgebiet uc1	177
Abbildung 105:	Reduktion der Kostenfunktion des u15 Gitters.....	178

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Genutzte Parametrisierungen des WRF Modells Version 3.7 ..	44
Tabelle 2:	Absoluter Fehler der Aerosole zur Berechnung der Hintergrundfehler-kovarianzmatrix im EURAD-IM.....	51
Tabelle 3:	GNFR-Sektoren	55
Tabelle 4:	Aufteilung der Jahresemissionen von NO _x , SO _x , VOCs und PM auf die einzelnen Modellvariablen für alle GNFR-Sektoren....	57
Tabelle 5:	Beobachtungsdaten, die im Vorhaben genutzt werden	65
Tabelle 6:	Vergleich der σ-Level und Schichtgrenzen für das EURAD-IM mit geringer und hoher vertikaler Auflösung.....	67
Tabelle 7:	Übersicht der 1 km-Modellgebiete und den dazugehörigen Analyseperioden.....	78
Tabelle 8:	Übersicht zur Rechenzeit und Speicherbedarf im Projektvorhaben.....	82
Tabelle 9:	RMSE der CO-Konzentrationen in Europa und Deutschland....	86
Tabelle 10:	Bias der PM ₁₀ -Konzentrationen in Europa	98

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Erklärung
AERONET	Aerosol Robotic Network
AIRS	Atmospheric Infrared Sounder
AOD	Aerosoloptische Dicke
ARW	Advanced Research WRF
A-train	Afternoon train
BLUE	Best Linear Unbiased Estimate
CAMS	Copernicus Atmospheric Monitoring Service
C-IFS	Composition Integrated Forecasting System
CLC	CORINE Land Cover
CLRTAP	Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution
CMAQ	Community Multiscale Air Quality
CORINE	Coordination of Information on the Environment
Corr	Korrelationskoeffizient
CTM	Chemie-Transport-Modell
DE	Deutschland
DWD	Deutscher Wetterdienst
EARLINET	European Aerosol Research Lidar Network
ECMWF	Europäisches Zentrum für Mittelfristige Wettervorhersagen
EEA	European Environment Agency
EEM	EURAD Emission Module
ENVISAT	Environmental Satellite
EPA	Environmental Protection Agency
ETEX	European Tracer Experiment
EURAD-IM	EUROpean Air pollution Dispersion - Inverse Model
FEOM	Fully equivalent operational model
FORLI	Fast optimal retrievals on layers for IASI
FTUV	Fast Tropospheric Ultraviolet-Visible model
GFAS	Global Fire Assimilation System
GNFR	Gridded New Format for Reporting
GOME-2	Global Ozone Monitoring Experiment-2
GRETA	Gridding Emission Tool for ArcGIS
GRIB	GRid In Binary
HDMR	High dimensional model representation
HPC	High Performance Computer
IAGOS	In-Service Aircraft for a Global Observing System
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer

Abkürzung	Erklärung
IEK-8	Institut für Energie- und Klimaforschung - Troposphäre
IFS	Integrated Forecasting System
JURECA-DC	Jülich Research on Exascale Cluster Architectures – Data Centric
JUWELS	Jülich Wizard for European Leadership Science
KNMI	Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut
L-BFGS	Limited Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno Verfahren
MADE	Modal Aerosol Dynamics model for Europe
MEGAN	Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature
NCAR	National Center for Atmospheric Research
NEC	National Emission Ceilings
NMB	Normierter mittlerer Bias
NME	Normierter mittlerer Fehler
NRW	Nordrhein-Westfalen
OMI	Ozone Monitoring Instrument
PDF	Probability Density Function / Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion
PEGASOS	Pan-European Gas-AeroSOls-climate interaction Study
PREP	PREProcessor
RACM-MIM	Regional Atmospheric Chemistry Mechanism - Mainz Isoprene Mechanism
RMSE	Root mean square error / Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers
SDI	Saharastaubindex
SNAP	Selected Nomenclature for Sources of Air Pollution
TNO	Toegepast Natuurwetenschappelijk Onderzoek / Netherlands Organisation for Applied Scientific Research
UBA	Umweltbundesamt, Dessau
USA	United States of America
WRF	Weather Research and Forecasting Model
ZSE	Zentrales System Emissionen
3D-var	Dreidimensionale variationelle Datenassimilation
4D-var	Vierdimensionale variationelle Datenassimilation

Chemische Abkürzungen

Abkürzung	Erklärung
CO	Kohlenstoffmonoxid
CO₂	Kohlenstoffdioxid
H⁺	Wasserstoff (positiv geladen)
H₂O	Wasser
H₂SO₄	Schwefelsäure

Abkürzung	Erklärung
NH_3	Ammoniak
NH_4^+	Ammonium
NMVOC	Non-methane volatile organic compounds / Nicht-Methan flüchtige organische Verbindungen
NO	Stickstoffmonoxid
NO₂	Stickstoffdioxid
NO_3^-	Nitrat
NO_x	Stickstoffoxide
O₃	Ozon
PM₁₀	Feinstaub/Aerosole mit einem aerodynamischen Durchmesser von maximal 10 Mikrometern
PM_{2,5}	Feinstaub/Aerosole mit einem aerodynamischen Durchmesser von maximal 2,5 Mikrometern
SO₂	Schwefeldioxid
SO_4^{2-}	Sulfat
SO_x	Schwefeloxide

Zusammenfassung

Anthropogene Emissionen zählen zu den wesentlichen Treibern der atmosphären-chemischen Zusammensetzung und Luftverschmutzung. Um die genauen Auswirkungen anthropogener Emissionen analysieren zu können, werden Emissionsdaten in Emissionsinventaren zusammengefasst. Diese Emissionsdatensätze dienen als Grundlage für Chemie-Transport-Modelle (CTM), mit denen flächendeckende Luftschatdstoffkonzentrationen für die Bewertung der Luftqualität und deren Entwicklung oder Szenarien für Strategien zur Minderung der Schadstoffbelastung berechnet werden können. Dabei werden die nationalen Emissionen als jährlicher Gesamtbetrag mittels Verteilfunktionen sowohl räumlich als auch zeitlich verteilt. Den räumlichen Verteilfunktionen liegen Hilfsdaten wie zum Beispiel Bevölkerungsdichte oder Verkehrsaufkommen zugrunde. Dabei besteht in der Regel ein statistischer Zusammenhang zwischen den Hilfsdaten und den tatsächlichen Emissionen. Gerade in einer flexibler werdenden Welt mit variablen Verhaltensmustern der Emittenten sind die statischen Emissionsdaten im Einzelfall nicht repräsentativ für die tatsächlichen Emissionen atmosphärischer Spurengase und Aerosole. So haben die Wetterbedingungen und individuelle Entscheidungen der Menschen einen Einfluss auf die anthropogenen Emissionen. Zum Beispiel beeinflusst die Nutzung erneuerbarer Energien die Schadstoffemissionen durch die Energieproduktion von Gas- und Kohlekraftwerken und alternative Arbeitsmodelle (z. B. Homeoffice und flexible Arbeitszeiten) ändern die mobilitätsbedingten Emissionen.

In diesem Vorhaben wird erstmals eine vollumfängliche Analyse anthropogener Emissionen unter Nutzung atmosphären-chemischer Beobachtungen durchgeführt. Zu diesem Zweck dienen die durch das Gridding Emissions Tool for ArcGIS (GRETA)-Tool (Schneider et al., 2016) räumlich verteilten jährlichen Emissionen als Eingabedaten für das Chemie-Transport Modell EURAD-IM (EUROpean Air pollution Dispersion – Inverse Model). Diese werden unter Zuhilfenahme der vier-dimensionalen variationellen Datenassimilation (4D-var) analysiert.

Die Assimilation von Spurengas- und Aerosolkonzentrationen in Chemie-Transport-Modellen zur Optimierung der Emissionsdaten ist durch die Verfügbarkeit einer Vielzahl von Beobachtungssystemen innerhalb des letzten Jahrzehnts immer populärer geworden. Bisher sind in den verschiedenen Untersuchungen von Spurengas- und Aerosolemissionen in der Regel nur einzelne Spezies untersucht worden. Weitere Studien befassen sich mit der Assimilation verschiedener Spurengase für einen kurzen Zeitraum oder einer Episode im Rahmen von Kampagnen. Die hiermit vorgelegte Analyse ist die erste regionale, vollumfängliche Analyse für Gesamtemissionen von Spurengasen und Aerosolen innerhalb eines ganzen Jahres. Die Analyse evaluiert die mit dem GRETA-Tool verteilten Emissionsdaten des Umweltbundesamtes unter Nutzung atmosphären-chemischer Beobachtungsdaten und den Chemie-Transportberechnungen des EURAD-IM mittels der 4D-var Methode. Dabei soll untersucht werden

- ▶ ob simulierte Konzentrationsfelder, die auf nationalen Emissionen und deren Verteilung durch das GRETA-Tool beruhen, mit den beobachteten Konzentrationen von Luftschatdstoffen konsistent sind.
- ▶ inwieweit die Unsicherheiten in den Emissionsdaten einzelnen Quellsektoren zugeschrieben werden können.
- ▶ in welchem Maße die jahreszeitliche Verteilung der Emissionen Einfluss auf Modellfehler hat.

Das EURAD-IM ist ein regionales CTM, welches bereits erfolgreich zur Analyse der Luftqualität und von Emissionsdaten eingesetzt wurde. Das Modell verfügt über die Möglichkeit einer sequenziellen Modellgebietsverfeinerung, dem sogenannten Nesting, bis zu einer horizontalen Auflösung von 1 km x 1 km. Dies ermöglicht, die Analyse mit mehreren Modellauflösungen durchzuführen und im Projektvorhaben unter Berücksichtigung verschiedener Fragestellungen zu untersuchen. Dabei umfassen die Analysen folgende Schwerpunkte:

- ▶ Die 15 km x 15 km-Analyse (u15) für Gesamteuropa dient der Untersuchung der europäischen Emissionen sowie der Berechnung von optimalen Randwerten für das feinere zentraleuropäische Modellgitter.
- ▶ Die zentraleuropäische 5 km x 5 km-Analyse (u05) wird zur Einschätzung der nationalen Emissionsdaten für Deutschland durchgeführt und liefert die Randwerte für die hochauflösten Modellanalysen.
- ▶ Die hochauflösten 1 km x 1 km-Analysen (ua1, ub1, uc1) für drei innerdeutsche Regionen, deren Luftqualität durch unterschiedliche Emittenten dominiert werden, beleuchten die detaillierte räumliche Verteilung der abgeleiteten Emissionskorrekturen sowie die Identifizierung der Emissionsbeiträge einzelner Verursachergruppen.

Im Vorhaben erfolgt die Analyse für die beiden groben Modellgitter (u15 und u05) für das gesamte Jahr 2016 (Emissionsberichterstattung 2019), während die Analyse auf den feinen Gittern (ua1, ub1, uc1) aufgrund der enormen Rechenzeit nur für zweiwöchige Episoden möglich ist.

4D-var ist eine statistische Methode. Ziel ist die Optimierung des Zustandsvektors mittels der Minimierung einer sogenannten Kostenfunktion. Die Kostenfunktion besteht aus drei Termen. Diese berechnen die Differenz der Modellkonzentrationen von Luftschatstoffen mit den Hintergrundwerten, die Differenz der Modellkonzentrationen mit den Beobachtungen sowie die Differenz zwischen den Hintergrundemissionen und den Modellemissionen. Die Hintergrundwerte spiegeln hierbei ein Basiswissen (zum Beispiel die Vorhersagekonzentrationen, die aus der Analyse bzw. den analysierten Emissionen des jeweiligen Vortages resultieren) wider. Da die Differenzen in den Termen der Kostenfunktion mit den jeweiligen Fehlern normiert sind, ist die Analyse, d. h. der Modellzustand, der die Kostenfunktion minimiert, ein gewichtetes Mittel aus dem Hintergrundwissen (Anfangswerte und Emissionen) und den Beobachtungen. Somit ermöglicht die Kostenfunktion, dass die Analyse im statistischen Sinn zwischen den Modellergebnissen des Hintergrundes und den Beobachtungen liegt.

Das Besondere bei der 4D-var Methode ist, dass Beobachtungen innerhalb eines Zeitfensters (Assimilationsfenster) zur Optimierung des Modellzustandes genutzt werden. Somit ermöglicht die 4D-var Methode eine raumzeitliche Assimilation der Beobachtungen, was zu einer physikalisch und chemisch konsistenten Analyse führt. Die Minimierung der Kostenfunktion erfolgt iterativ und beinhaltet die Berechnung des Gradienten der Kostenfunktion. Der Gradient wird mithilfe des adjungierten Modells ermittelt und gibt ein Maß für die Stärke und die Richtung der Änderungen des Modellzustandsvektors an. Im Projektvorhaben beinhaltet der Zustandsvektor die chemischen Anfangswerte der Modellsimulationen (Konzentrationsfelder der Schadstoffverteilung) sowie Korrekturfaktoren für die Emissionen, beides je Gitterzelle. Das adjungierte Modell ermöglicht es, Differenzen zwischen den simulierten und beobachteten Schadstoffkonzentrationen auf die Emissionen und Anfangswerte zu projizieren. Dieses Verfahren ist insbesondere auch imstande Korrekturen für unbeobachtete Luftschatstoffe (etwa NH₃) abzuleiten, die chemisch mit beobachteten Spezies gekoppelt sind.

Die Entwicklung des adjungierten Modells basiert auf der tangent-linearen Näherung des Modells. Unter anderem deswegen ist die Analyse an das BLUE-Prinzip (Best Linear Unbiased Estimate) gebunden, d. h. dass Modell und Beobachtungen keinen systematischen Fehler aufweisen dürfen. Durch die Zuhilfenahme der tangent-linearen Näherung hat die Methode bei stark nicht-linearen Prozessen, wie etwa der Chemie innerhalb von Wolkentropfen, Schwächen. Daher ist in diesem Vorhaben beispielsweise kein adjungiertes Wolkenmodul berücksichtigt worden. Gleches gilt für die sekundären organischen Aerosole. Das adjungierte Modell berücksichtigt jedoch die Module der Advektion, der Diffusion, der chemischen Umwandlung sowie der sekundären anorganischen Aerosole.

Zur effizienten Durchführung der Analyse werden weitere Annahmen gemacht, welche für die Datenassimilation nötig sind. Zum einen impliziert die Korrektur der Modellanfangswerte sowie der Emissionen, dass diese die beiden relevanten Fehlerquellen in der Modellsimulation sind. Somit wird angenommen, dass zum Beispiel die Unsicherheiten der Meteorologiesimulationen oder der Randwerte nur eine untergeordnete Rolle für die Differenz zwischen simulierten und beobachteten Konzentrationen von Luftschatstoffen spielen. Zum anderen werden nur Korrekturfaktoren für die Emissionsdaten berechnet, was impliziert, dass der Fehler des Tagesgangs der Emissionen sowie der vertikalen Verteilung deutlich geringer ist als der Fehler der Amplitude der Emissionsdaten.

Trotz dieser Annahmen ist die 4D-var Datenassimilation die Methode, die die valideste Analyse der Emissionsdaten ermöglicht. Dies wird dadurch gestützt, dass die Nutzung des adjungierten Modells die Projektion der Modell-Beobachtungsdiskrepanz auf die Emissionen in räumlicher und zeitlicher Distanz realisiert. Des Weiteren dient das adjungierte Modell zur Rückführung der Modell-Beobachtungsdiskrepanz auf Vorläufersubstanzen, was unter anderem die Optimierung von Spurengasen ermöglicht, die nicht beobachtet werden. Die Korrektur der Emissionen erfolgt hierbei über die im adjungierten Modell berechneten Sensitivitäten der beobachteten Spezies gegenüber den Vorläuferstoffen. Vereinfacht dargestellt, wird somit eine physikalisch und chemisch konsistente Analyse erzielt, in der die Unterschiede zwischen Modellsimulationen und Beobachtungen auf die wahrscheinlichste Ursache zurückgeführt werden. Dies ist in alternativen Methoden der Datenassimilation (z. B. beim Ensemble Kalman Filter) wenn überhaupt nur bedingt möglich.

Das für die Analyse genutzte EURAD-IM berücksichtigt alle relevanten physikalischen und chemischen Prozesse in der Atmosphäre wie Transport (Advektion und Diffusion), chemische Transformation (inkl. Wolkenchemie) sowie Aerosoldynamik und die Bildung sekundärer anorganischer Aerosole. Meteorologische Felder werden über das Weather Research and Forecasting (WRF) Modell berechnet. Zu diesem Zweck sind das EURAD-IM und WRF offline gekoppelt, wodurch eine Rückkopplung beispielsweise von den Aerosolberechnungen auf die meteorologischen Parameter (etwa für die Wolkenentstehung) unberücksichtigt bleibt.

Im Vorhaben werden die Emissionen eines ganzen Referenzjahres analysiert. Zu diesem Zweck werden sukzessive 4D-var Analysen mit einem Assimilationsfenster von 24 Stunden durchgeführt. Die Analyse eines jeden Tages nutzt die Vorhersage des vorherigen Tages als Hintergrundwissen. Die Randwerte der feineren Gitter werden von der Analyse des jeweils größeren Gitters extrahiert. Die u15- und u05-Analysen werden für das gesamte Jahr berechnet, während die Analysen für hochauflöste Modellregionen zur detaillierten Evaluierung der Emissionskorrekturen für bestimmte Episoden dienen. Letztere berechnen die Korrekturen der Emissionen im urbanen Raum (Berlin-Brandenburg), in einer Metropolregion (Rhein-Ruhr-Region) sowie in einem ländlichen Raum (Niedersachsen). Um das Vorhaben effizient

durchführen zu können, wird die Analyse für jede Jahreszeit einzeln durchgeführt (der Dezember wird mit der Herbstsimulation analysiert).

Für die Ermittlung des Referenzjahres, für das die Analyse durchgeführt wird, werden die Jahre 2010 bis 2017 evaluiert. Hierbei werden unter anderem folgende Kriterien berücksichtigt. Das Analysejahr soll

- ▶ keine ausgeprägten meteorologischen Episoden (Hitzewelle, Dürreperiode oder Extremniederschlagsereignisse) beinhalten,
- ▶ von keinen unerwarteten Emissionereignissen wie Vulkanausbrüchen, extreme Saharastaubaufwirbelungen oder starken Waldbränden beeinflusst sein,
- ▶ keine ausgeprägten Ozon- oder Aerosolepisoden enthalten und
- ▶ eine gute Verfügbarkeit von Beobachtungsdaten ermöglichen.

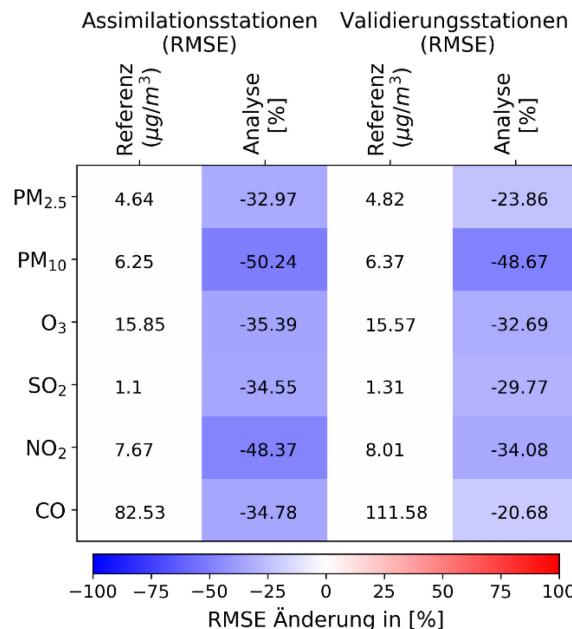
Unter Berücksichtigung der zur Verfügung stehenden Daten, u. a. in-situ Beobachtungen von Temperatur, Niederschlag, Ozon (O_3) und Feinstaub (PM_{10}) sowie statistischen Analysen des Deutschen Wetterdienstes (DWD), wird das Jahr 2016 als bestes Analysejahr identifiziert. Das Jahr 2016 liegt mit $9,5^{\circ}C$ Jahresdurchschnittstemperatur zwar $0,5^{\circ}C$ über dem klimatologischen Mittel von 1981-2010, jedoch entspricht dies dem generellen Trend der Temperaturentwicklung im letzten Jahrzehnt. Des Weiteren sind im Jahr 2016 weder ausgeprägte Ozon- noch PM_{10} -Episoden sowie keine langandauernden Hitzewellen zu verzeichnen.

Die Emissionen werden mit der Berichterstattung 2019 des Umweltbundesamts für Deutschland berechnet. Auf dem europäischen Gebiet werden diese durch die Emissionsdaten des CAMS-Projektes (Copernicus Atmospheric Monitoring Service), Version 3.1, ergänzt. Als Beobachtungsdaten dienen die in-situ Beobachtungen des Umweltbundesamtes, der Landesumweltämter sowie der EEA für CO, NO_2 , SO_2 , O_3 , PM_{10} , und $PM_{2,5}$, in-situ Messungen von CO und O_3 durch IAGOS an Bord von Passagierflugzeugen, Fernerkundungsdaten von NO_2 (Säulenwerte) der OMI und GOME-2 Instrumente (satellitengebunden) sowie CO-Säulenwerte des satellitengebundenen IASI Instruments. Die in-situ Beobachtungen sind in einen Assimilations- und Validierungsdatensatz unterteilt. Ferner liegen NH_3 -Beobachtungen des Wochen- bzw. Monatsmittelwerts vom Umweltbundesamt bzw. von den Landesumweltämtern zur Validierung vor.

Die Abbildung 1 zeigt den RMSE (Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers) zwischen Referenz (Modelllauf ohne optimierte Anfangswerte und Emissionen) und Beobachtung für alle assimilierten Spezies an den Assimilations- und Validierungsstationen in Deutschland zusammen mit der Änderung des RMSE durch die Analyse. Die Ergebnisse stammen aus den u05-Simulationen. Für alle Spezies ist eine Abnahme des RMSE in der Analyse zu erkennen, was die Anwendbarkeit der 4D-var Methode zur Verbesserung der Luftschatstoffanalyse belegt. Der RMSE des Referenzlaufs an den Assimilations- und Validierungsstationen ist vergleichbar. Einzig bei CO-Konzentrationen weist der RMSE an den Validierungsstationen mit $112 \mu\text{g}/\text{m}^3$ einen um 35 % höheren Fehler auf als an den Assimilationsstationen. Dies spiegelt eine verringerte Repräsentativität der Assimilationsstationen für CO wider, welche auch in anderen Regionen Europas erkennbar ist. Diese geringere Repräsentativität bedeutet in der Regel eine nicht optimale Nutzung der Beobachtungen in der Assimilation bzw. auch eine fehlende Verfügbarkeit gehaltvoller Beobachtungen für die Datenassimilation. Dennoch ist auch bei CO eine Verringerung des RMSE von über 20 % durch die Analyse zu sehen. Die RMSE Reduktion der

weiteren Spezies an den Validierungsstationen zeigt Werte zwischen 24 % für PM_{2,5} bis 49 % für PM₁₀.

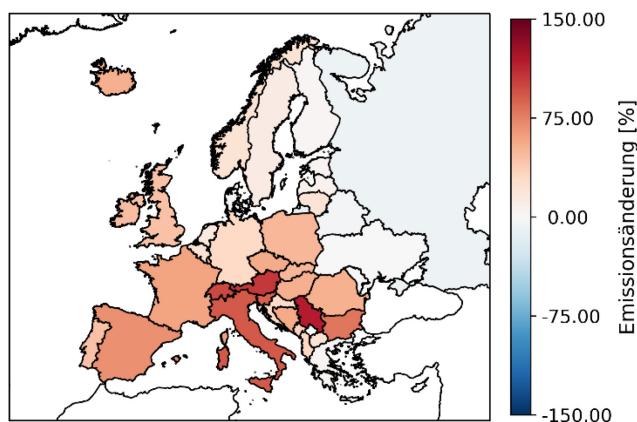
Abbildung 1: RMSE des Referenzlaufs und dessen Änderung in Deutschland



RMSE des Referenzlaufs sowie dessen relative Änderung durch die Analyse auf dem u05-Modellgitter für Deutschland im Jahr 2016 für alle Spezies. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die Abbildung 2 zeigt die analysierten relativen Änderungen beispielhaft für die NO_x-Emissionen in Europa für 2016 gegenüber den Basisemissionen der Emissionsinventare (mit dem 15 km-Modellgitter berechnet) für jedes Land zusammengefasst. Da die Emissionskorrekturen unter anderem von der Verteilung und Verfügbarkeit von Beobachtungsdaten abhängen, sind die Emissionskorrekturen in Nord- und Osteuropa niedriger. Im Allgemeinen sind die Emissionskorrekturen in Südeuropa stärker als in Mitteleuropa. Dies gilt insbesondere für CO-Emissionen. Auch bei den SO_x- und VOC-Emissionen ist ein Ost-West-Gefälle der Emissionskorrekturen mit stärkeren Korrekturen im Osten Europas zu sehen. Die NO_x-Emissionen für das Jahr 2016 sind in den Emissionsinventaren zum Teil deutlich unterschätzt worden. Dies liegt vor allem an den zu geringen Emissionen des Straßenverkehrssektors, bei denen in der Emissionsberichterstattung 2019 insbesondere zu geringe Dieselemissionen zu Grunde liegen. Dies ist eine mögliche Erklärung der starken Emissionskorrekturen in den Transitländern Schweiz (+99 %) und Österreich (+106 %), erklärt die starken Emissionskorrekturen jedoch nicht allein. Das Beispiel der NO_x-Emissionen zeigt, dass durch die Analyse im Allgemeinen realistische Emissionskorrekturen berechnet werden. Ähnlich wie die NO_x-Emissionen werden auch die CO-, SO_x- und VOC-Emissionen im Jahre 2016 systematisch in der Analyse erhöht, insbesondere in Südeuropa, die CO-Emissionen auch in Osteuropa. Ferner sind die Emissionskorrekturen im europäischen Vergleich in Zentraleuropa geringer. Dies spricht insbesondere in Deutschland für ein gutes nationales Emissionsinventar. Allerdings zeigt die Analyse gerade mit feinerer Modellauflösung, dass die Emissionskorrekturen räumlich zum Teil sehr heterogen sind, was Aufschluss über mögliche sektorale Ursachen in den Emissionskorrekturen liefern kann und was in einer detaillierteren Analyse noch näher beschrieben wird.

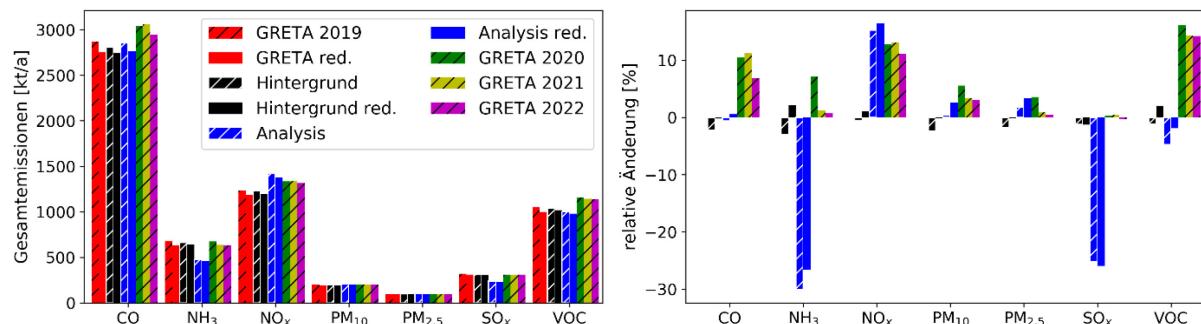
Abbildung 2: Relative NO_x-Emissionsänderungen je Land in Europa



Relative Emissionsänderung pro Land für NO_x-Emissionen im Jahr 2016 berechnet mit dem u15-Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die absoluten Emissionen des Jahres 2016 im Vergleich zu verschiedenen Berichterstattungen sind in Abbildung 3 dargestellt. Zudem werden die relativen Änderungen der Emissionen in Deutschland im Jahr 2016 gezeigt. Dabei beziehen sich die schraffierten Balken auf die Emissionen in Deutschland, während die gefüllten Balken die Emissionen der Gitterboxen, die auf der deutschen Grenze liegen, unberücksichtigt lassen. In der Analyse werden diese Grenzgitterzellen mit Emissionen des CAMS-Datensatzes ersetzt, was diese Unterscheidung notwendig macht und den Unterschied zwischen den GRETA-2019- und den Hintergrund-Emissionen erklärt.

Abbildung 3: Vergleich der Gesamtemissionen in Deutschland im Jahr 2016



Links: Vergleich der Gesamtemissionen im Jahr 2016 der Analyse mit den verschiedenen Emissionsberichterstattungen. Rechts: Relativer Unterschied der Gesamtemissionen des Jahres 2016 in Bezug auf die Emissionen der Berichterstattung 2019. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Im Jahr 2016 werden die NO_x-Emissionen am stärksten erhöht. Weitere Erhöhungen der Emissionen sind bei PM₁₀ und PM_{2.5} zu sehen, wobei die Emissionssteigerung bei den Aerosolen deutlich schwächer ausfällt. CO-Emissionen werden durch die Analyse nur leicht erhöht, was für realistische Abschätzungen der Gesamtemissionen von CO spricht. Die Emissionen der Spezies SO_x, VOC und NH₃ werden hingegen durch die Analyse verringert. Hierbei ist vor allem die starke Abnahme der NH₃-Emissionen von mehr als 25 % auffällig. Die Tabelle 1 fasst die Ergebnisse aus der Abbildung 4 zusammen.

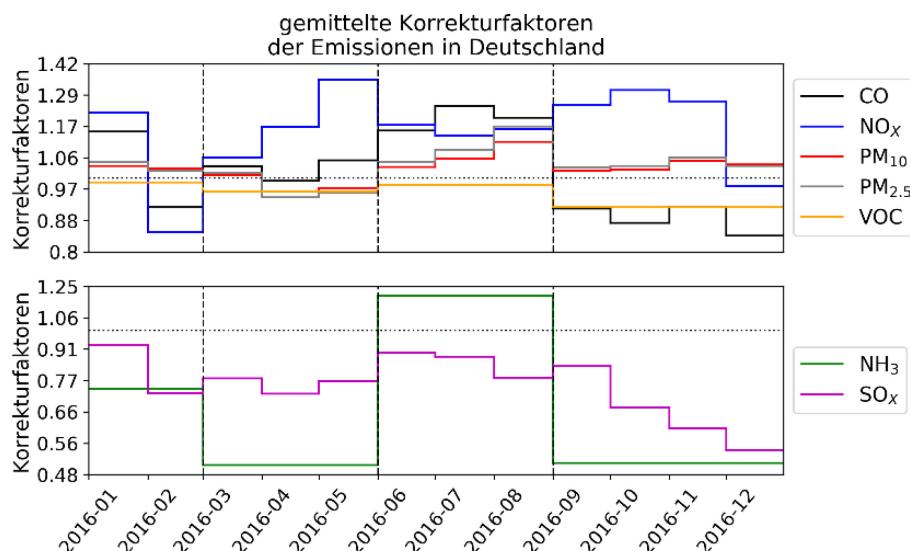
Tabelle 1: Vergleich der Gesamtemissionen in Deutschland im Jahr 2016

Vergleich der Gesamtemissionen in Deutschland im Jahr 2016 zwischen der Analyse und den verschiedenen Emissionsberichterstattungen.

	CO	NH ₃	NO _x	PM ₁₀	PM _{2,5}	SO _x	VOC
Berichterstattung 2019	2869 kt/a (100%)	682 kt/a (100 %)	1234 kt/a (100 %)	203 kt/a (100 %)	100 kt/a (100 %)	318 kt/a (100 %)	1050 kt/a (100 %)
Hintergrund	2806 kt/a (98 %)	661 kt/a (97 %)	1228 kt/a (99 %)	198 kt/a (98 %)	98 kt/a (98 %)	315 kt/a (99 %)	1038 kt/a (99 %)
Analyse	2852 kt/a (99 %)	477 kt/a (70 %)	1421 kt/a (120 %)	203 kt/a (100 %)	102 kt/a (102 %)	238 kt/a (75 %)	1001 kt/a (95 %)
Berichterstattung 2020	3038 kt/a (106 %)	675 kt/a (99 %)	1335 kt/a (113 %)	203 kt/a (100 %)	99 kt/a (99 %)	311 kt/a (98 %)	1160 kt/a (110 %)
Berichterstattung 2021	3060 kt/a (107 %)	638 kt/a (94 %)	1340 kt/a (113 %)	199 kt/a (98 %)	96 kt/a (96 %)	311 kt/a (98 %)	1141 kt/a (109 %)
Berichterstattung 2022	2941 kt/a (103 %)	635 kt/a (93 %)	1317 kt/a (111 %)	199 kt/a (98 %)	96 kt/a (96 %)	309 kt/a (97 %)	1140 kt/a (109 %)

Obwohl eine detaillierte Auswertung der zeitlichen Verteilung der Emissionskorrekturen über den Betrachtungshorizont des Vorhabens hinaus geht, kann eine Beurteilung der Emissionskorrekturen nicht ohne die zeitliche Verteilung adäquat durchgeführt werden. Die Abbildung 4 zeigt die Emissionskorrekturfaktoren aller anthropogener Spezies für Deutschland im Jahr 2016. Die Emissionskorrekturfaktoren sind hierbei über Deutschland gemittelt. Die Analyse berechnet tägliche Korrekturfaktoren, die aufgrund der derzeitigen Modellspezifikationen jedoch eine gewisse Trägheit bei der Einstellung auf den idealen Wert zeigen. Daher sind die Emissionskorrekturfaktoren in Abbildung 4 als Monatsmittel dargestellt. Im Falle der NH₃- und VOC-Emissionskorrekturfaktoren ist aufgrund von fehlenden Beobachtungen eine Mittelung auf die jeweiligen Jahreszeiten der Analyse angezeigt.

Abbildung 4: Gemittelter Jahresgang der Emissionskorrekturfaktoren für Deutschland



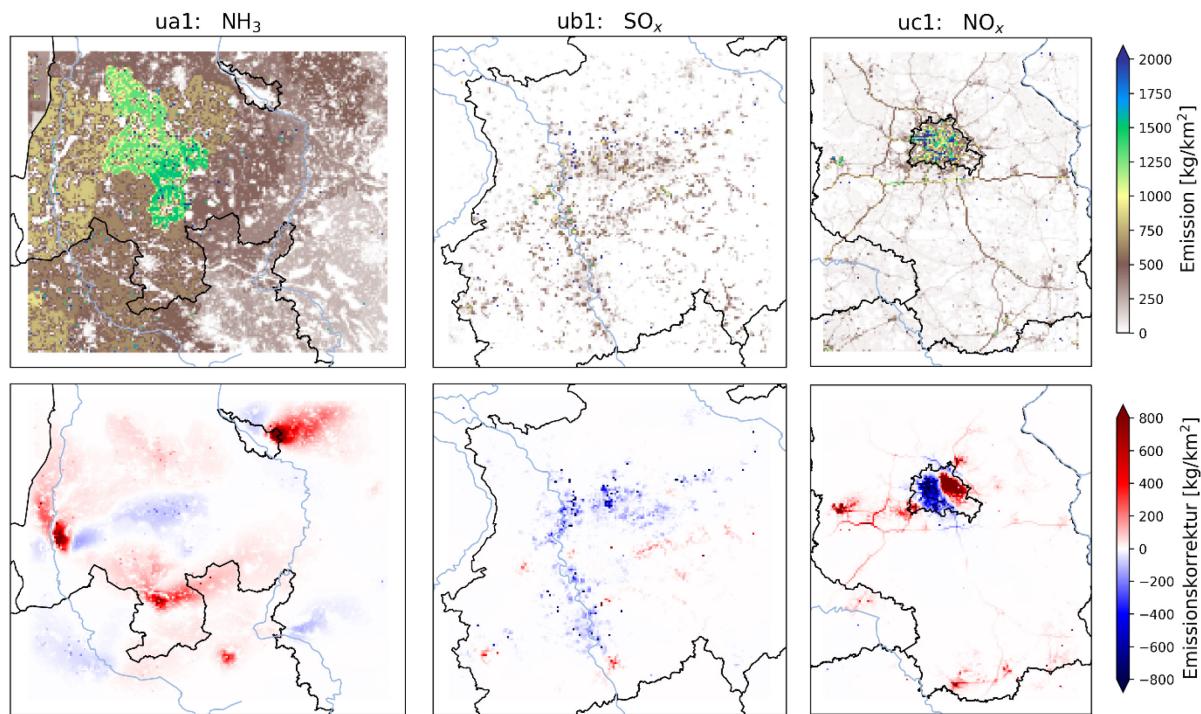
Räumlich gemittelte Emissionskorrekturfaktoren für Deutschland für das Jahr 2016. Die Korrekturfaktoren der beobachteten Spezies CO, NO_x, PM₁₀, PM_{2,5} und SO_x sind monatlich gemittelt. Die Emissionskorrekturfaktoren der

unbeobachteten Spezies VOC und NH₃ sind saisonal gemittelt. Die Emissionskorrekturfaktoren sind mit dem u05-Modellgitter berechnet. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Bei der Betrachtung der Korrekturfaktoren der verschiedenen emittierten Schadstoffe sind sowohl systematische Gemeinsamkeiten als auch Unterschiede zu erkennen. Bei allen Spezies fallen die Korrekturfaktoren der Emissionen im Februar und im Dezember zum Teil stark ab. Dies ist eine Reaktion des Analysesystems auf singuläre meteorologische Ereignisse (Frontalzonen, die das Modellgebiet passieren). Der genaue Zusammenhang zwischen den Emissionskorrekturen und den meteorologischen Ergebnissen muss im Detail noch genauer analysiert werden und geht über das Projektvorhaben hinaus. Diese Ereignisse haben jedoch zur Folge, dass der Monatsmittelwert von den starken Änderungen zu Zeiten der Frontpassagen dominiert wird. Ferner bedingt die Analysemethode, dass die Anpassung der Emissionskorrekturen sensibler auf Emissionssteigerungen reagieren als auf Emissionssenkungen. Während die NO_x-Emissionen außer in den beschriebenen Monaten erhöht werden, werden die Emissionen von NH₃, VOCs und SO_x überwiegend reduziert. Die Reduktion der SO_x-Emissionen geht dabei im Wesentlichen auf die starke Überschätzung der SO₂-Konzentrationen in Nordrhein-Westfalen zurück. Im Allgemeinen spiegelt auch die Verteilung der NH₃-Emissionskorrekturfaktoren die Fehler zwischen dem Referenzlauf und den NH₃-Beobachtungen wider. Da keine NH₃-Beobachtungen assimiliert werden, sind diese Ergebnisse ein weiteres Indiz dafür, dass die 4D-var Methode realistische und zuverlässige Analysen liefert. Aerosolemissionen werden in der Regel nur schwach korrigiert. Dennoch zeigt die zeitliche Verteilung der Emissionskorrekturen eine relativ konstante Zunahme um ca. 5 %. CO-Emissionen werden generell erhöht. Im Herbst werden die CO-Emissionen deutlich reduziert, was nicht mit dem Modellfehler aus dem Referenzlauf erklärbar ist. Die genaue Ursache muss noch erörtert werden, vermutlich liegt diese aber an der Überkompensation von Modell-Beobachtungsfehlern anderer Spezies und der regional fehlenden Beschränkung der CO-Konzentrationen durch Beobachtungen. Diese Aussage lässt sich aus dem Vergleich von regionalen Korrekturfaktoren in der Nähe von Beobachtungsstationen treffen, in denen die Abnahme des CO-Fehlers stark mit den lokalen Emissionskorrekturen korreliert.

Die hochaufgelösten Analysen (u01) dienen der Untersuchung, ob sich regional vorherrschende Emissionen in den analysierten Emissionskorrekturen charakteristisch wiederfinden. Entsprechend sind die gewählten hochaufgelösten Modellgebiete repräsentativ für individuell dominante Emissionsverursachergruppen gewählt. In Abbildung 5 sind jeweils für jede individuelle Modellregion charakteristische Luftschatstoffemissionen und die passenden analysierten Emissionskorrekturen dargestellt. Für das landwirtschaftlich geprägte Niedersachsen (ua1) zeigen die NH₃-Emissionskorrekturen eine Korrelation mit den Standorten der PM_{2,5}-Beobachtungen. Zudem lassen sich Einflüsse unterschiedlicher Windrichtungen in den dipolartigen Korrekturen um die Beobachtungsstationen herum feststellen, denn innerhalb des analysierten zweiwöchigen Zeitraums gab es zwei Phasen mit individuell dominierenden Windrichtungen aus ost-nordöstlicher bzw. nordwestlicher Richtung. Die SO_x-Emissionskorrekturfaktoren im dicht besiedelten und industriell geprägten nordrhein-westfälischen Modellgebiet (ub1) weisen die höchsten Korrekturen für Punktquellen auf, welche überwiegend Emissionsreduktionen beschreiben. Die NO_x-Emissionskorrekturen reflektieren besonders die Straßennetze mit regionalen Variationen, die lokale Emissionsreduktionen oder Emissionsanhebungen vorschlagen. Dies ist insbesondere im Bereich der Stadt Berlin zu erkennen (uc1-Modellgebiet), wo die Emissionskorrekturen eine dipolartige Struktur annehmen. Für eine detaillierte Analyse der Ursache von diesen stark voneinander abweichenden Emissionskorrekturen wird eine Untersuchung der Verteilung der lokalen Emissionsquellen und meteorologischer Effekte empfohlen.

Abbildung 5: Gesamtemissionen und zeitlich gemittelte Emissionskorrekturen für charakteristische Luftschatstoffe der hochauflösten Modellgebiete



Gesamtemissionen (oben) und zeitlich gemittelte Emissionskorrekturen (unten) für die hochauflösten Modellgebiete für die jeweils charakteristischen Luftschatstoffemissionen (NH₃ für ua1 links, SO_x für ub1 Mitte und NO_x für uc1 rechts).

Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die hochauflösten Analysen erlauben die Ableitung von besonders fein aufgelösten Emissionskorrekturfaktoren, welche die räumlich heterogene Variabilität der Unsicherheiten in den Emissionsdaten widerspiegeln. Die räumliche Heterogenität der Emissionskorrekturen ist deutlich stärker ausgeprägt als die zeitlichen Veränderungen. Dies bestärkt den Ansatz des Projektvorhabens, den Fokus auf die räumliche Verteilung der Emissionskorrekturen zu legen. Des Weiteren beleuchten die hochauflösten Analysen das Potenzial, gewisse Emissionskorrekturfaktoren auch spezifisch für einzelne GNFR-Sektoren zu bestimmen. Die Ausweitung des Analysezeitraums zur Verminderung beispielsweise von meteorologischen Einflüssen auf die Korrekturen sowie die Vergrößerung der 1 km-Modellgebiet zur Minimierung der Randeffekte sind unbedingt notwendig, um Rückschlüsse auf die hochauflösten Gesamtjahresemisionen ziehen zu können.

Die Evaluierung der Assimilationsergebnisse zeigt, dass die Modellsimulationen nach Anpassung an die Beobachtungsdaten realistischere Konzentrationen liefern als der Referenzlauf. Eine weitere Verbesserung der Analysegüte wird zum Großteil durch die eingeschränkte Verfügbarkeit von Beobachtungen oder deren Repräsentativität verhindert. Die Erweiterung des Beobachtungsdatensatzes zum Beispiel durch Satellitendaten ist möglich und jedoch nur bedingt ratsam. Zwar wäre eine bessere räumliche Abdeckung und eine Erweiterung auf zusätzlich beobachtete Spezies möglich, jedoch muss hierbei insbesondere auf den Informationsgehalt der ergänzenden Beobachtungsdaten für die Datenassimilation sowie die dadurch steigende mathematische Komplexität geachtet werden. Bei guter Beobachtungslage lassen sich valide Trends in den Korrekturen der Zeitreihen ableiten (etwa bei den SO₂-Konzentrationen in Nordrhein-Westfalen), welche Aufschluss über mögliche Unsicherheiten in den Emissionskatastern liefern. Daher ist es angeraten, die Aufteilung der Beobachtungsdaten in Assimilations- und Validierungsdatensatz hinsichtlich der Repräsentativität optimal

durchzuführen, was die Aussagekraft auch in Bezug auf die räumliche Verteilung der Emissionskorrekturen erhöht. Die Ergebnisse legen ferner eine genaue Analyse der Beobachtbarkeit nahe, gerade in Regionen, in denen die Beobachtungsdichte gering ist. Durch die schwache Abdeckung durch Beobachtungen basieren die dort berechneten Emissionskorrekturen teilweise auf den Analysen einzelner Tage bzw. Episoden, was deren Aussagekraft für den gesamten Zeitraum einschränkt. Die Studie kann somit auch zur Evaluierung und Optimierung des Beobachtungsnetzes herangezogen werden. Durch die hohe räumliche Auflösung von 5 km x 5 km sowie den unterstützenden Analysen mit 1 km x 1 km horizontaler Auflösung können in der Analyse räumlich heterogene Emissionskorrekturen abgeleitet werden. Diese lassen sich mit den Verursachergruppen oder den Emissionsberechnungen zu Grunde liegenden Hilfsdaten in Verbindung bringen. Somit lassen sich Rückschlüsse auf die Unsicherheiten in der Emissionsberechnung erzielen. Die Analyse zeigt zudem, dass in verschiedenen Regionen schadstoffübergreifend gleiche Emissionskorrekturtendenzen berechnet werden. So werden beispielsweise im Ruhrgebiet generell Emissionsreduktionen ermittelt.

Verschiedene Annahmen beeinflussen die Analyse und stellen potenzielle Unsicherheitsquellen dar. Darunter fallen insbesondere die zeitlichen und vertikalen Verteilungen der Emissionen, die in der Analyse als gegeben und richtig angenommen werden. Des Weiteren sind Ungenauigkeiten in den meteorologischen Daten sowie in der Repräsentation der physikalischen und chemischen Prozesse im EURAD-IM unberücksichtigt. Erweiterungen der Modelle zum Beispiel durch Nutzung von Nudging (Änderung der Modellkonzentrationen) der Meteorologie unter Berücksichtigung von Beobachtungen oder die explizite Repräsentierung von Modellfehlern in den Modell- und Analysegleichungen sind denkbar, jedoch mit erhöhtem Entwicklungs- und Rechenaufwand verbunden.

Als Fazit der 2016-Jahresanalyse zur Ermittlung der Emissionskorrekturen für Europa und mit einem besonderen Fokus auf Deutschland lassen sich die folgenden Punkte zusammenfassen:

- ▶ Die 4D-var Re-Analyse des Jahres 2016 ermöglicht eine erfolgreiche Evaluierung der Emissionen in Europa. Hierbei werden insbesondere die räumlichen Verteilungen der Emissionen optimiert.
- ▶ Die gesamt-europäischen Emissionskorrekturen deuten im Mittel auf zu geringe Emissionen besonders von CO, NO_x, SO_x und VOCs in Emissionsinventaren hin.
- ▶ Die Emissionskorrekturen für Deutschland zeigen, dass die nationalen Gesamtemissionen im Mittel nahe den analysierten Emissionen liegen. Regional gibt es hierbei Unterschiede, die auf Verbesserungspotentiale der räumlichen Verteilung der Emissionen durch GRETA hindeuten.

Hieraus ergeben sich folgende Schlüsse für die Anwendbarkeit der Ergebnisse:

- ▶ Die analysierten Emissionskorrekturen können als Rechengrundlage für weitere Analysen mit dem EURAD-IM genutzt werden.
- ▶ Die räumlich aufgelösten Emissionskorrekturen sollten als Monats- bzw. saisonales Mittel genutzt werden, um zeitlich begrenzte Effekte beispielsweise durch die Meteorologie zu reduzieren.
- ▶ Die Ergebnisse können für eine Überarbeitung / Verbesserung der zeitlichen Verteilung der Emissionen bezogen auf den Jahresgang für jede individuelle Gitterzelle verwendet werden.

- ▶ Die Emissionskorrekturen sind im Rahmen von Luftqualitätsanalysen mit dem EURAD-IM nutzbar. Da das EURAD-IM im Rahmen des europäischen CAMS-Projektes ständig mit anderen europäischen Regionalmodellen verglichen wird, ist generell jedoch eine Verallgemeinerung der Ergebnisse durchführbar.
- ▶ Die Ergebnisse können Rückschlüsse auf potenzielle Unsicherheiten / Unterschätzungen der Emissionen der Inventare geben.
- ▶ Die Ergebnisse sollten mit räumlichen Verteilparametern, die zur Verteilung der Emissionen genutzt werden, korreliert werden. Dies ermöglicht Rückschlüsse auf potenzielle Unsicherheiten der räumlichen Verteilung der Emissionsdaten.

Durch die der Datenassimilationsmethode zugrunde liegenden Annahmen beinhaltet die Analyse wenige Vereinfachungen, die jedoch potenziell Abweichungen in den Ergebnissen bedingen können. Dies resultiert in weiterführendem Forschungsbedarf und kann in Verbindung mit neuen Studien evaluiert werden. Beispiele hierfür sind:

- ▶ Eine Systematik in den berechneten Emissionskorrekturen kann ermittelt werden, indem Sensitivitätsberechnungen für verschiedene Jahre durchgeführt werden.
- ▶ Diese Sensitivitätsberechnungen können weitere Rückschlüsse auf die Unsicherheiten in der ursprünglichen Emissionsberechnung der Inventare liefern.
- ▶ Die Analyse lässt sich auf weitere Berichterstattungen oder andere Jahre anwenden. Hierbei empfiehlt sich jedoch die bereits erwähnten Erweiterungen des Beobachtungsdatensatzes und der Berechnung der meteorologischen Felder zu nutzen.
- ▶ Weitere Evaluierungen der Modell-Beobachtungsdiskrepanzen sind vor allem in Süd- und Osteuropa ratsam. Dies sollte auch unter Berücksichtigung anderer Chemie-Transport-Modelle erfolgen, um einen etwaigen modellspezifischen Einfluss zu reduzieren.

Summary

Anthropogenic emissions are a main driver of the chemical composition and pollution of the atmosphere. To analyse the specific effects of anthropogenic emissions, emission data are collected and composed in emission inventories. Chemistry-Transport-Models (CTM) use these emission data as basis for comprehensive simulations of air pollutant concentration distributions. Such simulations allow for the appraisal of air quality and its evolution as well as for the evaluation of scenario simulations to find pollution mitigation strategies. For that matter, total annual national emissions are spatio-temporally distributed with distribution functions. Basis for the spatial distribution functions are proxy data as for example the population density or the volume of traffic. These functions provide statistical distributions of emissions data. In a world that is becoming more flexible, the behavioural patterns of pollution emitters vary strongly. Thus, the statistical emission data are not anymore representative for real atmospheric trace gas and aerosol emissions. Weather conditions and decisions of individuals affect the composition and strength of anthropogenic emissions. The use of renewable energies, for example, has an impact on the emissions from the energy production sector that are emitted by gas- and coal-fired power plants. Also, alternative working models (e.g. home office and flexible working hours) change the emissions of the mobility sector.

This project conducts a complete analysis of anthropogenic gas phase and aerosol emissions for the first time, utilizing atmospheric-chemical observations. For this purpose, annual emission data spatially distributed by the Gridding Emission Tool for ArcGIS (GRETA, Schneider et al., 2016) are used as input for the chemistry transport model EURAD-IM (European Air pollution Dispersion – Inverse Model). These emissions are analysed using the four-dimensional variational data assimilation technique (4D-var).

The assimilation of trace gas and aerosol concentrations within chemistry transport models to optimise emission data became more and more popular due to the availability of diverse and numerous observation systems during the last decade. However, various analyses of pollution emissions yet only investigated single species. Other studies focus on the assimilation of multiple pollutants, but only in the framework of short periods or episodes during campaigns. The here presented analysis is the first regional and full year reanalysis of the total emissions of trace gases and aerosols. The aim of this project includes the following questions:

- ▶ Are simulated pollutant concentrations, which rely on national emissions that are distributed by the GRETA tool, consistent with observed pollutant concentrations?
- ▶ To what extend can the uncertainties of emission data be attributed to individual emission sectors?
- ▶ Does the seasonal distribution of emissions influence the model error?

EURAD-IM is a regional CTM, which has been successfully applied for air quality and emission analyses. The model includes the feature for sequential model grid refinement, the so-called nesting technique. Thus, a horizontal grid resolution of up to 1 km x 1 km can be achieved. This allows for conducting the analysis on different model resolutions taking different key aspects into account. In this project, the analyses cover the following research foci:

- ▶ For whole Europe, the 15 km x 15 km analysis (u15) provides the evaluation of the European emissions as well as the calculation of optimal boundary values for the finer Central European model domain.

- The Central European 5 km x 5 km analysis (u05) is used to assess the national emission data of Germany and provides boundary values for the high-resolved model analyses.
- The high-resolved 1 km x 1 km analyses (ua1, ub1, uc1) for three inner-German domains are individually characterised by different anthropogenic emitters. Each of these analysis highlights the detailed spatial distribution of the derived emission corrections as well as the assignment of emission contributions to individual source sectors.

In this project, the analyses are performed on both coarser model grids (u15 and u05) for the full year of 2016 (2019 emission report), while the analysis with high-resolved grid resolution (ua1, ub1, uc1) are realized for a two-weeks period each, due to the enormous computing time needed.

4D-var is a statistical method. It aims for the optimisation of the state vector by minimising a cost function. This cost function consists of three terms, which determine the difference between modelled pollution concentrations and modelled background values, the difference between modelled pollution concentrations and observations, and the difference between background emissions and modelled emissions. The background values describe the a priori knowledge (e.g. the concentrations and emissions resulting from a model forecast that was initialised from the analysed initial values and emissions of the previous day). The differences computed in the different terms of the cost function are normalised with the corresponding errors. Thus, the model state, which minimises the cost function, namely the analysis, is the weighted mean of the background knowledge (initial values and emissions) and the observations. Hence, the cost function ensures that from a statistical viewpoint, the analysis lies between the modelling result of the background and the observations.

One advantage of the 4D-var method is that observations within a wider time slot (the assimilation window) are used for the optimisation of the model state. This allows for the spatio-temporal assimilation of observations and generates an analysis, which is consistent with all physical and chemical processes implemented in the model. The cost function is iteratively minimised by calculating its gradient, which is determined with the adjoint model. The gradient describes a measure of the strength and direction of the model state vector adjustments. In this project, the state vector comprises the chemical initial values of the simulation (arrays of pollutant concentrations) and emission correction factors for every grid cell. The adjoint model projects the differences between simulated and observed pollution concentrations on the emissions and initial values. Hence, this technique is particularly able to even correct unobserved pollutants (i.e. NH₃), which are chemically coupled with observed species.

The development of the adjoint model is based on the tangent linear model approach. Thus, the analysis fulfils the BLUE theory (Best Linear Unbiased Estimate), which, amongst others, means that the model and the observations should not have any systematic errors. Due to the use of the tangent-linear approximation, the 4D-var method might have limits in modelling highly non-linear processes as e.g. chemical reactions within cloud droplets. For this reason, there is neither an adjoint cloud module nor an adjoint secondary organic aerosol module used within this project. However, the adjoint model includes the modules of advection, diffusion, chemical reactions, and secondary inorganic aerosols.

In the context of data assimilation, there are other assumptions made that enable the efficient processing of the analyses. By optimising initial values and emissions, it is implicitly assumed that these are the two most relevant sources of uncertainty in the model simulations. The uncertainties of the meteorological simulations and the corresponding boundary values play

thus a minor role for the difference between modelled and observed concentrations of pollutants. Further, only emission correction factors are derived to be applied to the emission data such that the errors of the diurnal course of emissions and the vertical distribution of emissions are implied to be smaller than the error of the amplitude of the emission data.

Despite these assumptions, 4D-var data assimilation is an optimisation method, which allows for the most validated analysis of emission data. This is supported using the adjoint model that maps the model-observation-discrepancy on the emissions in reasonable spatial and temporal distance. Moreover, the adjoint model enables the projection of the model-observation-increment on the chemical precursors. This facilitates the optimisation of unobserved trace gases. Here, the correction of emissions results from sensitivities of observed species to precursor pollutants in the adjoint model. Thus, a physically and chemically consistent analysis is obtained because the difference between model simulation and observations is attributed to the most probable source of uncertainty. In alternative data assimilation methods (e.g. the Ensemble Kalman Filter), this is not or just conditionally possible.

EURAD-IM, which is used for the analysis, considers all relevant physical and chemical processes in the atmosphere. These contain the transport (advection and diffusion), chemical transformation (including the chemistry in cloud droplets), aerosol dynamics, and the formation of secondary inorganic aerosols. The meteorological fields are computed by the Weather Research and Forecasting model (WRF). EURAD-IM and WRF are offline coupled and therefore, feedbacks for example from the aerosol budget on meteorological parameters (i.e. cloud formation) are not considered.

In the project, the emissions of a complete reference year are analysed. For this purpose, successive 4D-var analyses with an assimilation window of 24 hours are conducted. The analysis of each individual day uses the forecast of the previous day as background knowledge. The boundary values of the finer grids are extracted from the analysis on the corresponding coarser grid. The u15- and u05-analyses are executed for the entire year, while the analyses of the highly resolved model domains are used for a detailed evaluation of the emission corrections during selected episodes. The latter derive emission corrections for an urban region (Berlin-Brandenburg), a metropolitan area (Rhine-Ruhr-area), and a rural region (Lower Saxony). For an efficient project realisation, the analyses are performed for each season individually (December is analysed together with the autumn simulation).

For the determination of an analysis reference year, an evaluation of the years 2010 to 2017 is performed, considering the following criteria. The analysis year should

- ▶ not include any pronounced meteorological episodes (heat waves, droughts, or extreme precipitation events),
- ▶ not be influenced by any unexpected emission events such as volcanic eruptions, extreme Saharan uptake and transport, or intense wildfires,
- ▶ not contain any pronounced ozone or aerosol episodes, and
- ▶ offer a good availability of observational data.

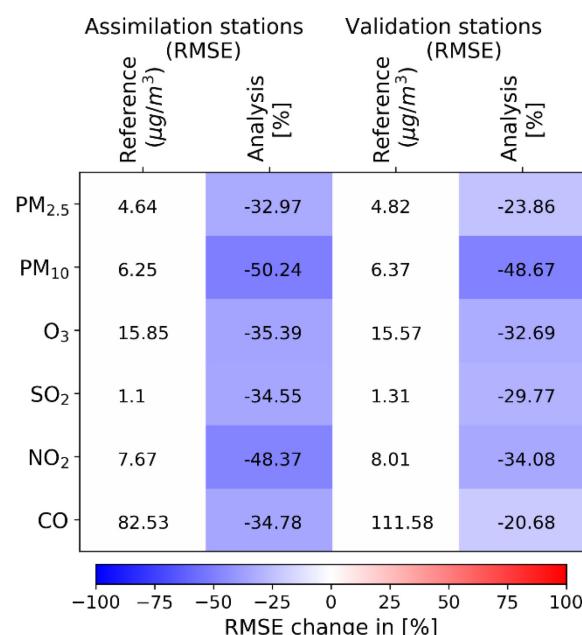
Considering the available data, including in-situ observations of temperature, precipitation, ozone (O_3), and particulate matter (PM_{10}), as well as statistical analysis of the German Weather Service (DWD), the year 2016 is identified as most representative analysis year. In 2016, the annual mean temperature of 9.5 °C lies 0.5 °C above the climatological mean of 1981-2010.

However, this matches the general trend of the temperature evolution during the last decade. In addition, there are neither distinct ozone and PM₁₀ episodes nor persistent heat waves in 2016.

In the analysis, the German emissions are calculated with the emission report 2019 of the German Environment Agency (Umweltbundesamt, UBA). For the remaining European area, these emissions are complemented with Version 3.1 emission data from the CAMS (Copernicus Atmospheric Monitoring Service) project. The observational data to be assimilated include in-situ ground-based observations from UBA, the environment agencies of the federal states, and the European Environment Agency (EEA) for CO, NO₂, SO₂, O₃, PM₁₀, and PM_{2.5}, in-situ observations of CO and O₃ from IAGOS measurements onboard passenger aircrafts, and remote sensing data of NO₂ (column values) from the OMI and GOME-2 instruments (spaceborne) as well as CO column values from the spaceborne IASI instrument. The ground-based in-situ observations are divided into an assimilation and a validation data set. Further, NH₃ observations of weekly and monthly mean concentrations from UBA and the federal environment agencies are available for validation of the simulation results.

Figure 1 shows the RMSE (root-mean-square error) of the reference (model run without any optimisation of initial values and emissions) for PM_{2.5}, PM₁₀, O₃, SO₂, NO₂, and CO aggregated for all observations taken for assimilation and validation, in Germany as well as the adjustment of the RMSE due to the analysis. These results are derived from the u05 simulations. A reduction of the RMSE can be recognised for all species. This confirms the applicability of the 4D-var method for improving air pollution analyses. In the reference run, the RMSE shows comparable values at the assimilation and validation stations. Only the CO concentrations show a RMSE of 112 µg/m³ at the validation stations, which is 35 % higher error compared to the RMSE at the assimilation stations. This reflects the decreased representativeness of the CO assimilation stations that is also noticed for other regions in Europe. In general, this low representativeness describes the suboptimal usage of observations in the assimilation or too sparse observations with significant information content. However, CO shows a reduction of the RMSE of more than 20 % in the analysis. At the validation stations, the RMSE decrease of all other species indicates values between 24 % for PM_{2.5} and 49 % for PM₁₀.

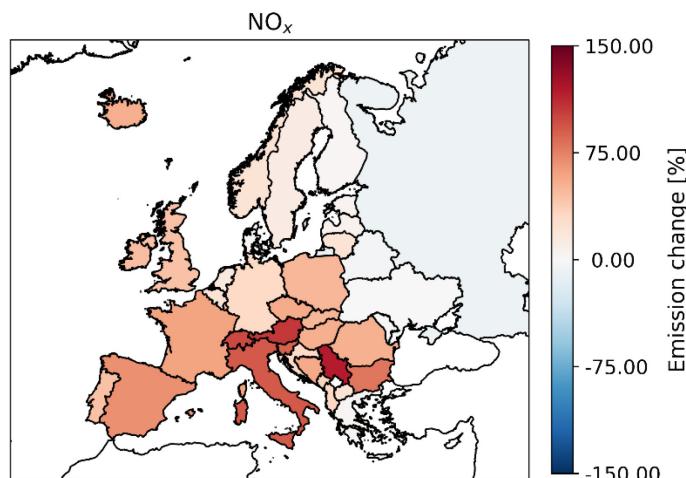
Figure 1: RMSE of the reference run and its change in Germany



RMSE of the reference run and its relative change due to the analysis using the u05 model grid for all species in Germany for the year 2016. Source: own diagram, Forschungszentrum Jülich.

For every European country, Figure 2 illustrates the relative change of the emissions in the analysis compared to the inventory emissions exemplarily for NO_x in 2016 (processed on the u15 grid). Since the emission corrections depend, among other things, on the distribution and availability of observational data, the emission corrections are less strong in Northern and Eastern Europe. In general, the emission corrections are more pronounced in Southern than in Central Europe. This is especially true for CO emissions. There is an East-West gradient of the emission corrections for SO_x and VOC, where strongest corrections are obtained in Eastern Europe. In 2016, the NO_x emissions are considerably underestimated in the emission inventories for certain parts of Europe. This is mainly correlated with the underestimated emissions of the road transport sector, for which too low diesel car emissions are integrated in the 2019 emission report. This might be a possible explanation for strong emission corrections in transit countries as Switzerland (+99 %) and Austria (+106 %), however, it does not fully explain the strong emission corrections. The NO_x emission example shows that the analysis produces realistic emission corrections in general. Similar to the NO_x emissions, also CO, SO_x, and VOC emissions are systematically increased in the analysis of the year 2016. This increase is particularly developed in Southern Europe and for CO emissions also in Eastern Europe. Moreover, in Central Europe, the emission corrections are much smaller compared to the rest of Europe. This indicates that, in particular Germany provides a good national emission inventory. However, the analysis using finer model resolution reveals spatially very heterogeneous emission corrections, which denotes that the emission corrections are possibly related to certain emission sectors. More information on that can be found in the description of the detailed analysis.

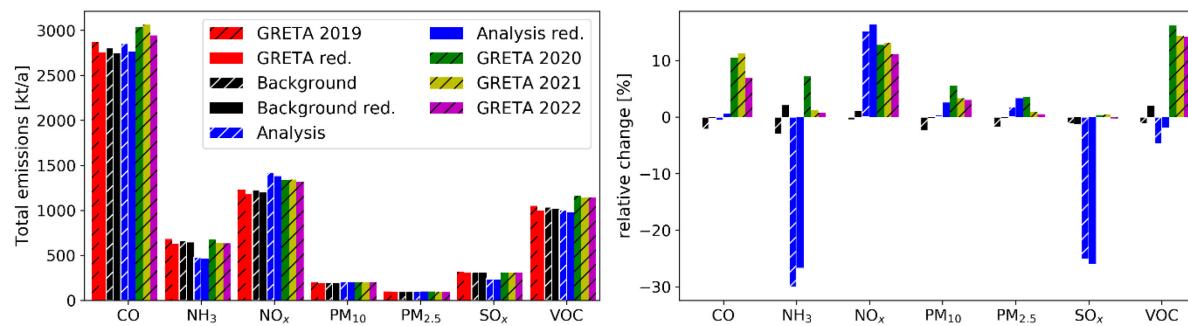
Figure 2: Relative NO_x emission change per country in Europe



Relative emission change of NO_x emission per country in 2016, processed on the u15 grid. Source: Own diagram, Forschungszentrum Jülich.

The total analysed German emissions of the year 2016 are displayed in Figure 3 in comparison to diverse emission reports. Further, the corresponding relative change of emissions is illustrated. Here, the hatched bars relate to the emissions in Germany, while the coloured bars account for the emissions of all German grid cells except for those being located on German boarders to other countries. For the analysis, the emissions of these grid cells are replaced with the CAMS emission data set. Thus, the differentiation of analysed emissions with and without these grid cells is necessary for the comparison with the GRETA-2019 emission inventory.

Figure 3: Comparison of the total emissions in Germany for the year 2016



Left panel: Comparison of the total analysed German emissions in 2016 with diverse emission reports. Right panel: Relative difference of the total German emissions in 2016 compared to the emission report 2019. Source: Own diagram, Forschungszentrum Jülich.

In the year 2016, the NO_x emissions increase the most in the analysis. Further increases of emissions are derived for PM₁₀ and PM_{2.5}. However, the raise in aerosol emissions is much lower compared to the NO_x emissions. The CO emissions are minimally increased in the analysis. This accounts for a realistic estimate of the total CO emissions in Germany. In contrast, the emissions of the species SO_x, VOC, and NH₃ are decreased in the analysis. Here, the strong decline of NH₃ emissions of more than 25 % is prominent. Table 1 summarizes the results of Figure 3.

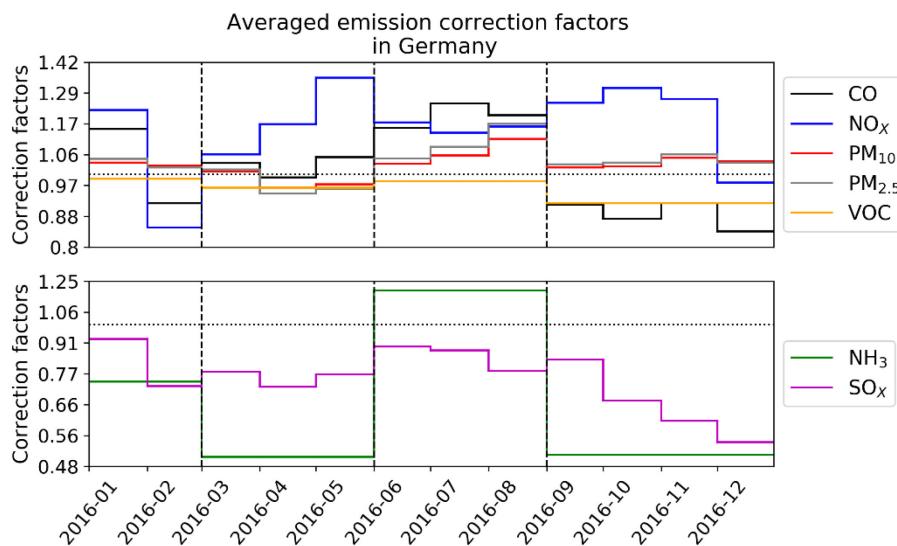
Table 1 Comparison of the total German emissions in 2016

Comparison of the total emissions of the analysis and diverse emission reports for Germany in 2016.

	CO	NH ₃	NO _x	PM ₁₀	PM _{2.5}	SO _x	VOC
Reporting 2019	2869 kt/a (100%)	682 kt/a (100 %)	1234 kt/a (100 %)	203 kt/a (100 %)	100 kt/a (100 %)	318 kt/a (100 %)	1050 kt/a (100 %)
Background	2806 kt/a (98 %)	661 kt/a (97 %)	1228 kt/a (99 %)	198 kt/a (98 %)	98 kt/a (98 %)	315 kt/a (99 %)	1038 kt/a (99 %)
Analysis	2852 kt/a (99 %)	477 kt/a (70 %)	1421 kt/a (120 %)	203 kt/a (100 %)	102 kt/a (102 %)	238 kt/a (75 %)	1001 kt/a (95 %)
Reporting 2020	3038 kt/a (106 %)	675 kt/a (99 %)	1335 kt/a (113 %)	203 kt/a (100 %)	99 kt/a (99 %)	311 kt/a (98 %)	1160 kt/a (110 %)
Reporting 2021	3060 kt/a (107 %)	638 kt/a (94 %)	1340 kt/a (113 %)	199 kt/a (98 %)	96 kt/a (96 %)	311 kt/a (98 %)	1141 kt/a (109 %)
Reporting 2022	2941 kt/a (103 %)	635 kt/a (93 %)	1317 kt/a (111 %)	199 kt/a (98 %)	96 kt/a (96 %)	309 kt/a (97 %)	1140 kt/a (109 %)

Even if a detailed evaluation of the temporal distribution of emission corrections is beyond the central objective of this project, the appraisal of emission corrections cannot be properly realised without the temporal evolution. Figure 4 shows the correction factors of the anthropogenic emissions for Germany in 2016. The emission correction factors are averaged over all German grid cells. The analysis determines daily emission correction factors, which are characterised by a certain inertia while adjusting to the ideal value due to the current model specification. Therefore, the emission correction factors are depicted as monthly means in Figure 4. In the case of the NH₃ and VOC emission correction factors, the respective seasonal analysis mean is shown because of higher uncertainties due to missing observations.

Figure 4: Averaged annual cycle of the emission correction factors in Germany



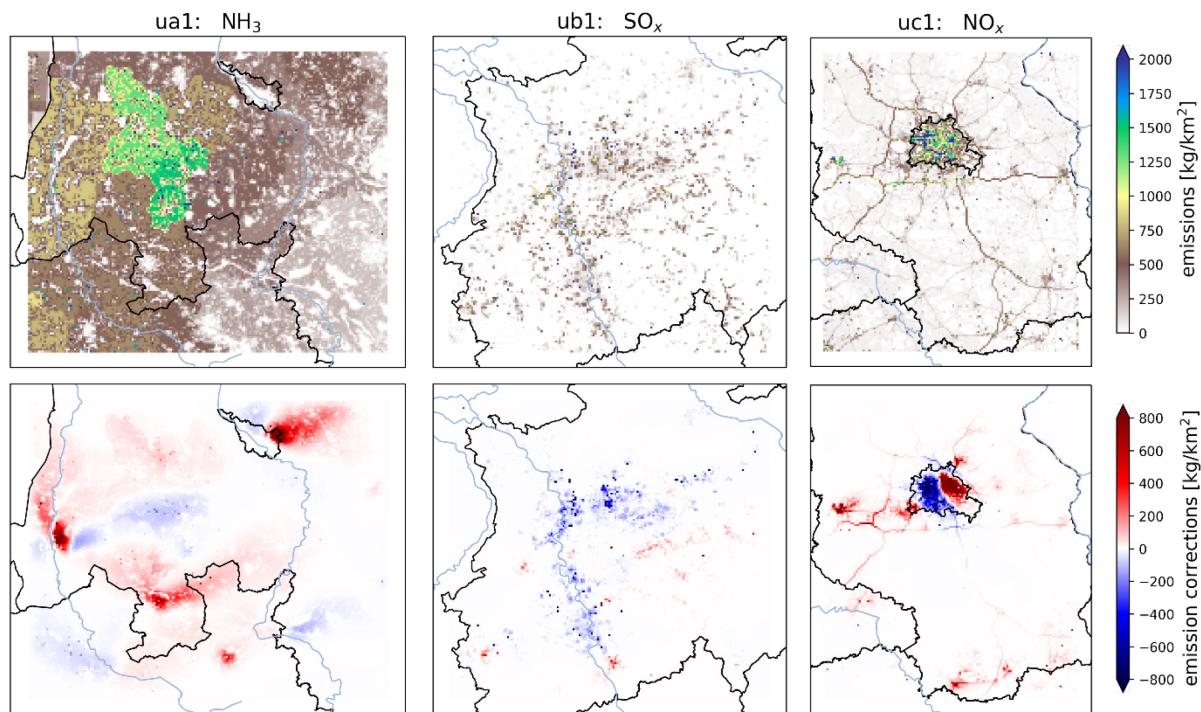
Spatially averaged emission correction factors for Germany in 2016. The correction factors of the species CO, NO_x, PM₁₀, PM_{2.5}, and SO_x, for which observations are available, are given as a monthly mean. The emission correction factors of the unobserved species VOC and NH₃ are given as seasonal mean. All illustrated emission corrections factors are derived from the analysis of the u05 model domain. Source: Own diagram, Forschungszentrum Jülich.

The examination of the emission correction factors of the different emitted pollutants reveals systematic common features as well as differences. In February and December, the emission correction factors of all species strongly decline. Here, the analysis system reacts to singular meteorological events (frontal systems passing through the model domain). The precise relation between emission corrections and meteorological events still needs to be analysed in detail at a later date since this investigation is beyond the project's objective. The meteorological events result in monthly averaged emission corrections, which are strongly influenced by the clear change of the corrections at times of passing frontal systems. In addition, the adjustment of emission corrections is much slower for emission increases than for emission decreases, using the selected analysis method. While the NO_x emissions mainly increase except for the indicated months, the emissions of NH₃, VOCs and SO_x are predominantly reduced. The SO_x emission reduction is primarily caused by the strong overprediction of SO₂ concentrations in North-Rhine Westphalia. In general, the distribution of the NH₃ emission correction factors reflects the error between reference run and NH₃ observations. Since there are no NH₃ observations assimilated in the analysis, these results are indicating that the 4D-var method provides realistic and reliable analyses even for unobserved species. The aerosol emissions are overall just slightly corrected. However, the temporal evolution of emission corrections shows a relatively constant increase of about 5 %. The CO emissions are generally enhanced except for autumn, in which the CO emissions decrease considerably. This cannot be explained by the model error of the reference run. The explicit source must still be investigated; however, it is presumably caused by overcompensation of model-observation-errors of other species and by missing constraints by the regionally sparse CO observations. This conclusion is based on the comparison of regional correction factors, which are analysed in the vicinity of observation stations, where the decline of the CO error is strongly correlated to local emission corrections.

The highly resolved analyses (ua1, ub1, uc1) are conducted to investigate if there is a characteristic relation between the regionally dominating emissions and the analysed emission corrections. The selected high resolution model domains are correspondingly representative for individual dominating polluter groups. For each individual model domain, Figure 5 presents the

horizontal emission distribution of one characteristic pollutant and the relevant analysed emission corrections. In Lower Saxony (ua1), where agricultural emissions are distinctive, the NH_3 emission corrections show a correlation with the location of $\text{PM}_{2.5}$ emissions. Moreover, influences of different wind directions on the emission corrections arise in dipole-like structures around the observation stations. Within the two weeks analysis period, there were two phases of individually prevailing wind directions from East-North-East and North-West, respectively. In the densely populated and industrially affected area of North-Rhine Westphalia (ub1), the SO_x emission correction factors indicate strongest corrections at the location of point sources. These mainly show emission reductions. NO_x emission corrections notably reflect the road networks with regional variability, which locally suggest emission reductions or emission increases. In the area around the city of Berlin (uc1), this network structure is well represented, and the emission corrections build a dipole-like structure in Berlin. For a detailed analysis of the origin of these strongly differing emission corrections, evaluations of the distribution of local emission sources and meteorological effects are required, which is beyond the scope of this investigation.

Figure 5: Total emissions and temporally averaged emission corrections for the characteristic pollutants of the high-resolution model domains



Total emissions (top) and temporally averaged emission corrections (bottom) of the individually characteristic pollutants for the highly resolved model domains (NH_3 in ua1 left, SO_x in ub1 middle und NO_x in uc1 right). Source: Own diagram, Forschungszentrum Jülich.

The high-resolution analyses allow for the derivation of particularly fine resolved emission correction factors. It reflects the spatially heterogeneous variability of the uncertainties in the emission data, which exceeds the temporal variability of the emission correction. This supports the approach of this project to place the focus on the horizontal distribution of emission corrections. The high-resolution analyses further highlight the potential to determine certain emission correction factors specifically for individual GNFR sectors. The expansion of the analysis period for example to minimize meteorological impacts on the corrections or the enlargement of the 1 km model domains to minimize boundary effects are essential to draw a conclusion towards the highly resolved total annual emissions.

The evaluation of the assimilation results shows that the model simulations provide more realistic pollutant concentrations after the adjustments of initial values and emission correction factors using the observational data. Another improvement of the analysis quality is prevented by the often limited availability of observations and their restricted representativeness. The extension of the observation dataset, for example, by satellite data is feasible but requires caution. In fact, the increased spatial coverage, and the extension by additionally observed species would be possible, however, the information content by the added observation data for the assimilation and the thereby increasing mathematical complexity must be considered and evaluated. In the case of a good observational situation, it is possible to determine valid trends of corrections from time series (e.g. for the SO₂ concentrations in North-Rhine Westphalia) that provide information about possible uncertainties in the emission inventories. Hence, the split of observation data in assimilation and validation data sets is essential with regard to the optimal representativeness. Thus, the value relating to the spatial distribution of emission corrections increases. The results also suggest performing a detailed analysis of the observability, in particular for regions where the observation density is low. Due to the limited coverage of observations in these regions, the derived emission corrections partially base on analyses of single days or periods, such that the significance with respect to the complete analysis year is limited. Consequently, the analysis can also support the evaluation and optimisation of the observational network. Spatially heterogeneous emission corrections can be derived, because the analyses are performed in high resolution of 5 km x 5 km and supportively also of 1 km x 1 km. These can be connected to polluter groups or to the proxy data, which are underlying the emission data from inventories. Thus, conclusion about the uncertainties of the emission accounting can be drawn. Further, the analysis shows that in diverse regions, equal tendencies of emission corrections are found for multiple pollutants. One example is the Rhine-Ruhr area, where emissions are generally reduced.

Different assumptions influence the analyses and describe potential sources of uncertainty. Those specifically include the temporal and vertical distribution of emissions, which are assumed to be correct in the analysis. Other inaccuracies as in the meteorological data or the representation of physical and chemical processes in EURAD-IM remain unconsidered. Extensions of the model for example by using nudging (adjustment of model variables) of the meteorology taking observations into account or the explicit representation of model errors for the model and analysis equations are suggested but significantly increase the model development investment and computational costs.

As a conclusion of the 2016 analysis to determine emission corrections for Europe and placing a special focus on Germany, the key findings can be summarized as follows:

- ▶ The 4D-var re-analysis of the year 2016 has been successful such that it allows for the evaluation of European emissions. In particular, the spatial distribution of emissions is optimized.
- ▶ The emission corrections for the entire European continent indicate that the emissions of CO, NO_x, SO_x, and VOCs are too low on average in the inventories.
- ▶ In Germany, total emissions in the analysis are close to the reported emission data. However, the analysis shows regional variations, which indicate potentials for improving the spatial emission distribution within GRETA.

The performed analysis allows for the following applications:

- ▶ The analysed emission corrections can be used as computational basis for further analyses with EURAD-IM.
- ▶ The spatially resolved emission corrections should be used as monthly or seasonal mean to reduce temporary effects for example due to meteorological phenomena.
- ▶ The results can be utilized for the revision / improvement of temporal emission distributions regarding the annual cycle of each individual grid cell and for individually emitted species.
- ▶ The emission corrections can be applied in the framework of air quality analyses with EURAD-IM. Since EURAD-IM is operationally compared to different European regional air quality models in the CAMS project, the analysis results can potentially be generalized to a certain extent.
- ▶ The results can give hints to potential uncertainties / underestimations of the emissions in the inventories.
- ▶ The analysis results should be correlated with parameters used for the spatial distribution of the emissions. This allows for drawing conclusions on potential uncertainties of the spatial distribution of emission data.

Due to the assumptions on which the 4D-var data assimilation rests on, the analysis includes a few simplifications. Those might potentially introduce variations in the results. Thus, there is a need for further research, which leads to new studies to evaluate these variations. Examples are:

- ▶ By performing sensitivity simulations for different years, common features of the analysed emission corrections can be investigated.
- ▶ These sensitivity studies potentially allow for conclusions regarding the uncertainties of the emission inventory data.
- ▶ The analysis can be applied on different emission reports or for other years. Therefore, it is recommended to include the mentioned extensions of the observational data and the meteorological fields.
- ▶ Further evaluation of the model-observation-discrepancy are especially advisable in South and East Europe. This should be realized taking also other chemistry transport models into account to reduce possible influences of certain model specific characteristics.

1 Problemstellung und Zielsetzung

1.1 Einleitung

Zu den jährlichen Aufgaben des Umweltbundesamtes gehört im Rahmen nationaler, europäischer und internationaler Vereinbarungen (Göteborg-Protokoll der Genfer Luftreinhaltekongvention (CLRTAP)) möglichst genaue Abschätzungen von Luftschatstoffemissionen zu berichten. Des Weiteren werden diese als wesentliche Eingangsdaten für Chemie-Transportmodelle (CTM) benötigt. Mit diesen Eingangsdaten werden einerseits jährlich die flächendeckenden Luftschatstoffkonzentrationen in Deutschland ermittelt und andererseits Szenarien für Strategien und Maßnahmen zur Minderung der Schadstoffbelastung berechnet. Letztere werden benötigt, um den Beitrag einzelner Maßnahmen zur Einhaltung von Immissionsgrenzwerten beurteilen zu können. Sie sind außerdem eine Grundlage für die Erstellung des nationalen Luftreinhalteprogramms, wie es die NEC-Richtlinie 2016/2284/EU (National Emission Ceilings Directive) vorsieht. Die Qualität der Modellergebnisse, insbesondere für Szenarienrechnungen, wird maßgeblich von der Qualität der eingehenden Emissionsdaten – im Wesentlichen der Emissionsmenge sowie der räumlichen Verteilung – bestimmt. Zur räumlichen Verteilung der Emissionsdaten wurde das „Gridding Emission Tool for ArcGIS“ (GRETA, Schneider et al., 2016) entwickelt, das die sektoralen Emissionen des Zentralen Systems Emissionen (ZSE) über Verteilparameter räumlich verteilt.

Anthropogene Spurengasemissionen und primäre Aerosole werden nach verschiedenen Methoden (üblicherweise mit den Strategien „top-down“ mit makroskopischen Schließungsbedingungen oder „bottom-up“ mit mikroskopischen Einzelverbrauchsprozessen) ermittelt. Die Nutzung von Beobachtungen von reaktiven Spurengasen und Aerosolen zur Verbesserung der Emissionskataster findet dabei, im Gegensatz zu Flussberechnungen der nichtreaktiven Treibhausgase, noch nicht statt (z.B. Kuenen et al., 2014). Eine derartige Ergänzung der Informationsbasis wäre durch Kombination von zeitlich und räumlich ausreichend aufgelösten Messdaten mit Modellsimulationen grundsätzlich geeignet, den zeitlichen Verlauf, die räumliche Verteilung, und episodenbedingte Variation der Emissionen genauer zu erfassen. Wesentlich ist jedoch eine den Anforderungen entsprechende Beobachtungsbasis.

Betrachtet man Beobachtungen und Modellergebnisse als zwei unabhängige, notwendigerweise immer fehlerbehaftete Informationsquellen und sucht man aus beiden eine nach vorgegebenen Kriterien optimale und konsistente Synthese, so liegt ein Inversionsproblem vor. Seine Lösung liefert nicht nur eine Zustandsbeschreibung des betrachteten Systems, sondern auch seiner der Optimierung unterworfenen Parameter. Diese sind im vorliegenden Fall die Emissionsmengen.

Eine Möglichkeit, das Inversionsproblem vollumfänglich zu lösen ist die Datenassimilation. Datenassimilation beschreibt die optimale Kombination von Modellsimulationen und Messungen unter Berücksichtigung der jeweiligen Fehler. Diese Kombination ist in vielerlei Hinsicht hilfreich. Zum einen liefert die Analyse, also das Ergebnis der Datenassimilation, eine bzgl. der Fehler genauere Schätzung des tatsächlichen atmosphärischen Zustands gegenüber dem Modell und auch den Beobachtungen alleine. Zum anderen werden die Vorteile der zeitlich kontinuierlichen und räumlich hochauflösten Modellsimulationen und der punktuellen, aber präzisen Beobachtungen bei der Datenassimilation kombiniert.

Es gibt verschiedene Datenassimilationstechniken, die sich grundlegend in zwei Klassen einteilen lassen: sequenzielle Methoden und variationelle Methoden. Bei den sequenziellen Methoden (vor allem Kalman Filter und Erweiterungen hiervon) wird die Modellgleichung erweitert. Diese Erweiterung ermöglicht es durch Hinzufügen eines künstlichen

(unphysikalischen) Terms, den Modellzustand in Richtung der Beobachtungen, unter Berücksichtigung der jeweiligen Fehler, zu verbessern. Bei den variationellen Methoden, drei- bzw. vierdimensionale variationelle (3D-var, 4D-var) Datenassimilation, wird der Modellzustand unter Benutzung der Beobachtungen und der jeweiligen Fehler durch die iterative Minimierung einer Kostenfunktion optimiert. Während bei 3D-var Beobachtungen zur Verbesserung des aktuellen Modellzustandes genutzt werden, werden bei der vierdimensionalen Methode die Beobachtungen innerhalb eines Zeitfensters (Assimilationsfenster) berücksichtigt, um die komplette Zeitreihe der Modellkonzentrationen zu optimieren. Dies liefert insbesondere eine physikalisch konsistente Zeitreihe der Modellkonzentrationen. Räumlich beschränkte Datenassimilationsverfahren können hierbei die bekannten physikalischen und chemischen Gesetzmäßigkeiten zu ihrer Dynamik nicht ausnutzen. Im Gegensatz dazu erlaubt die Fähigkeit, Beobachtungen eines Zeitintervalls zu nutzen, nicht nur die verfügbaren Beobachtungsdatensätze für einen Assimilationsprozess zu vergrößern, sondern auch die chemische Konsistenz im Rahmen des gewählten Chimiemechanismus sicherzustellen. Somit sind aus theoretischer Sicht nur raumzeitliche Datenassimilations- oder Inversionstechniken Kandidaten für eine Lösung, die in der Lage ist, Modellinformationen mit Beobachtungsdaten konsistent zu kombinieren und gleichzeitig eine beste lineare systemfehlerfreie Schätzung (BLUE, Best Linear Unbiased Estimator) zu ermitteln. Wenn alle geforderten Annahmen erfüllt sind, wird diese Eigenschaft von der vierdimensionalen variationellen Datenassimilationstechnik und dem Kalman-Filter, einschließlich geeigneter Varianten, gewährleistet.

Im Gegensatz zur inversen Modellierung für Quellenstärkeschätzungen von Schadstoffen, verfolgt die Datenassimilation das Problem der optimalen luftchemischen Konzentrationsschätzung. Da aber emittierte reaktive Spurenstoffe im gleichen Zeitskalenbereich wie die allgemeine troposphärische Luftchemie reagieren, sollten beide Probleme gekoppelt gelöst werden. Insgesamt gilt die Regel, dass jene Parameter durch Inverse Modellierung optimiert werden müssen, die nicht genau genug bekannt sind, und gleichzeitig einen bedeutenden Einfluss auf die Simulationsqualität haben. Dies trifft auf Emissionsraten und Anfangskonzentrationen zu, könnte aber zumindest auch noch auf Depositionsraten erweitert werden. Andererseits führt eine ungeeignete Wahl der Optimierungsparameter zu erkennbaren Verschlechterungen des Simulationsergebnisses und kann dadurch diagnostiziert werden. Damit liegt ein typisches, aber extrem hochdimensionales „schlecht-gestelltes“ Inversionsproblem vor.

In den letzten Jahrzehnten etablierten sich die Quellenstärkeschätzungen als Forschungsthema, sowohl auf globaler als auch auf regionaler Ebene. Hierbei wurde die Inversion üblicherweise mittels quasi-passiver Tracer/Indikatoren realisiert. Newsam und Enting (1988) sowie Enting und Newsam (1990) behandelten die Verteilung der Quellen und Senken von Kohlenstoffdioxid (CO_2) auf globaler Skala durch Inversion einer Diffusionsgleichung, die formal durch zugehörige Legendre-Funktionen gelöst werden konnte. Eine Vielzahl weiterer Studien beruht auf einer sehr limitierten Anzahl von Kanistermessungen, bei denen die Außenluft mittels Überdruckes in einem Kanister zur weiteren Analyse gesammelt wird (Bousquet et al., 1999a, b; Enting et al., 1995; Fan et al., 1998; Gloor et al., 1999; Gurney, 2002). Auf der Grundlage des oben genannten Potentials der 4D-var Datenassimilation wurde die Erweiterung des EURAD-IM (EUROpean Air pollution Dispersion – Inverse Model) am Rheinischen Institut für Umweltforschung an der Universität Köln und am Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK-8) des Forschungszentrums Jülich erstmals erfolgreich für atmosphärenchemische Modelle entwickelt und konnte im Rahmen von identischen Zwillingsexperimenten (Elbern und Schmidt, 1999) und darüber hinaus für eine Ozonfallstudie (Elbern und Schmidt, 2001) Leistungsnachweise liefern. Weitere Anwendungen der 4D-var-Technik wurden sowohl für die Troposphäre (z.B. Chai et al.,

2006) als auch für die Stratosphäre (Errera und Fonteyn, 2001; Elbern et al., 2010) vorgestellt. Des Weiteren wurde der Variationsansatz zur Abschätzung von Quellen und Senken genutzt, die auf eine verbesserte Spezifizierung des Treibhausgasbudgets abzielt (Kaminski et al., 1999a, b; Houweling et al., 1999).

Erdbeobachtungssatelliten im sonnensynchronen polaren Orbit wie ENVISAT oder der A-train (Afternoon train, eine Sequenz von Erdbeobachtungssatelliten, die in kurzem Abstand zueinander nachmittags lokaler Zeit die Erde beobachtet) haben eine starke Motivation zur Weiterentwicklung der atmosphärenchemischen Datenassimilation geliefert. Angesichts der Vielfalt der Informationsquellen, die diese Fernerkundungsbeobachtungen liefern, mit all ihrer Heterogenität in Bezug auf Genauigkeit, räumliche Repräsentativität und Beobachtungsdichte, zeitliche Frequenz, und bei verschiedenen Retrieval-Techniken, ist die Verbindung mit Modellen mittels fortgeschrittenerer, gleichzeitig rechnerisch aufwendiger Datenassimilations- und Inversionstechniken geboten. Satellitenbasierte Fernerkundungsdaten aus Erdbeobachtungsprogrammen sind meist in Raum und Zeit verstreut und liefern nur sehr wenig Informationen exakt gleichzeitig. Voraussetzung für eine synergetische Nutzung dieser Sensoren ist daher eine Anwendung von numerischen Modellen zur raumzeitlichen Interpolation mittels Datenassimilation. Ein Beispiel, bei dem die Einschränkungen von CO₂-in-situ-Beobachtungen überwunden wurden, liefert Engelen et al. (2004), indem von AIRS (Atmospheric Infrared Sounder) aufgenommene Satellitendaten im Modell des Europäischen Zentrums für Mittelfristige Wettervorhersagen (European Centre for medium-range weather forecasts, ECMWF) unter Verwendung der 4D-var Technik assimiliert wurden.

Im Forschungsbereich der Quellstärkenabschätzung von zufällig freigesetzten Substanzen werden meist mesoskalige Modellgebiete gewählt. Robertson und Langner (1992) setzten Datenassimilation zur Quellstärkenabschätzung im Rahmen des ETEX-Experiments ein. Eine gründliche Bewertung der Unsicherheiten und Empfindlichkeiten der Ozonvorhersage aufgrund von Unsicherheiten verschiedener Eingangsparameter wurde von verschiedenen Studien bereitgestellt, z. B. Hanna et al. (1998, 2001) oder Schmidt und Martin (2003). Während Parameter wie Photolyseraten und meteorologische Bedingungen von Bedeutung sind, so spielen Emissionen nach wie vor eine entscheidende Rolle als Kontrollparameter. Im Rahmen eines identischen Zwillingsexperiments wurde eine erste Implementierung der 4D-var Technik zur Emissionsoptimierung einschließlich reaktiver Chemie in Elbern et al. (2000) vorgenommen. Eine erste reale Anwendung mit dem EURAD-Modell wird in Elbern und Schmidt (2002) beschrieben. Durch die Einbeziehung aller emittierten Spezies an jedem numerischen Oberflächengitterpunkt für jede der seinerzeit 19 emittierten Konstituenten wird der typische hochdimensionale Optimierungsraum von ca. 10⁷ Anfangswerten der chemischen Bestandteile der simulierten Atmosphäre durch skalierte Emissionsraten ergänzt. Alternativ wendete Issartel (2003) im Kontext der „Illumination“ ein adjungiertes Modell mit Zuhilfenahme des Konzepts der Retroplume (rückwärts integrierte Abgasfahne) an. Ein ähnlicher Ansatz wurde von Hourdin und Talagrand (2006) sowie von Hourdin et al. (2006) zur Emissionsstärkenabschätzung gewählt. Hingegen setzte Bocquet (2005a, b) das Maximum-Entropie-Prinzip zur Schätzung der Position, Zeit und Stärke von Emissionsquellen ein. Dieses Verfahren erlaubt eine Abweichung von der allgemein üblichen Minimierung des mittleren quadratischen Abstandes zwischen Modell und Beobachtungen. Es bietet damit die Möglichkeit, sich von der Annahme normalverteilter Fehlercharakteristik zu befreien. Eine praktische Anwendung im mikroskaligen Bereich wurde von Quélo et al. (2005) für Emissionen von Stickoxiden (NO_x) und deren Tagesprofil mit dem Polair3D-Modell präsentiert. Bei Verwendung der 4D-var Technik auf der globalen Skala, assimilierten Muller und Stavrakou (2005) aus Satellitendaten troposphärische Säulenwerte von Kohlenstoffmonoxid (CO) und Stickstoffdioxid (NO₂), um ihre Emissionsraten mit kontinentaler Auflösung abzuschätzen.

Neben der Variationstechnik sind Kalman-Filterimplementierungen mit komplexen Komplexitätsreduktionstechniken, wie etwa von van Loon et al. (2000) anwendbar, wo etwa ein Quadratwurzelansatz mit reduziertem Rang ausgewählt wurde, um Kovarianzmatrizen durch einige Hauptkomponenten zu faktorisieren (Verlaan und Heemink, 1995). Weiterentwicklungen dieser Technik durch Kombination mit einer Ensemble-Kalman-Filtermethode, bei der die Hintergrundmodellfehler durch die Ensemblestreuung generiert wird, führte zu zusätzlichen Parametern (Hanea et al., 2004). Zu den Optimierungsparametern gehören Emissionsraten, Photolyseraten und Depositionsraten, deren Korrekturmengen formal als "Rausch"-Parameter in der Kalman-Filterformulierung eingeführt werden.

Bislang konzentrierten sich alle oben genannten Studien zur Emissionsoptimierung auf Quellen- oder Senkenschätzungen eines einzelnen passiven Tracers, ohne dabei reaktive Chemie zu modellieren. Es wurden nur wenige Versuche unternommen, die allgemeine Machbarkeit im reaktiven Fall zu prüfen, etwa wobei Messungen von nicht-emittierten Reaktionsprodukten herangezogen werden, um die Emissionsraten von Vorläufersubstanzen zu ermitteln. Als Schritt zu einer umfassenderen Systeminversion mit reaktiver Chemie haben Elbern et al. (2007) die Flexibilität der 4D-var Technik erweitert und erstmals Emissionsraten zusammen mit chemischer Konzentrationsoptimierung geschätzt.

Da die Emissionsraten nicht direkt beobachtbar sind, kann der Inversionserfolg am besten durch den statistischen Nachweis verbesserter Vorhersagequalität bestätigt werden. Emissions-optimierungsstudien haben verstärkte Aktivitäten erfahren. Diese umfassen auch Emissionen durch besondere Ereignisse, wie etwa Waldbrände, Mineralstaubaufwirbelungen und Vulkanausbrüche.

1.2 Ziele des Vorhabens

Durch die Kombination von Schadstoffkonzentrationssimulationen aus Chemie-Transportmodellen und Messungen, in Verbindung mit geeigneten Methoden wie z. B. der inversen Modellierung soll eine Rückführung des Modellfehlers auf die Emissionszahlen (Stärke der Spurenstoffflüsse und räumliche Verteilung) erfolgen. Im Rahmen des Vorhabens soll daher untersucht werden,

- ▶ ob simulierte Konzentrationsfelder, die auf national-berichteten Emissionen und deren Verteilung durch GRETA beruhen, mit den beobachteten Konzentrationen von Luftschatstoffen konsistent sind.
- ▶ inwieweit diese Unsicherheit in den Emissionszahlen einzelnen Quellsektoren zugeschrieben werden kann.
- ▶ in welchem Maße die jahreszeitliche Verteilung der Emissionen Einfluss auf Modellfehler hat.

Die Methode zur Abschätzung der Emissionskorrekturfaktoren basiert auf festen Emissionsprofilen. Das bedeutet, dass die im Modell gewählten zeitlichen Verteilfunktionen hinsichtlich des Jahres-, Wochen- und Tagesgangs sowie hinsichtlich der Vertikalverteilung weder durch die Optimierung noch durch meteorologische Effekte oder gesellschaftliche Verhaltensweisen verändert werden. Es werden lediglich räumlich aufgelöste Emissionskorrekturfaktoren für die Assimilationsfenster von 24 Stunden bestimmt, die schlussendlich auf die Tagesgänge zu multiplizieren sind. Die Analyse der zeitlichen Verteilung von Emissionskorrekturfaktoren steht jedoch nicht im Zentrum des Forschungsvorhabens und wird nur im Rahmen von räumlich gemittelten Zeitreihen bzw. in Abschätzungen von monatsweisen Emissionskorrekturfaktoren diskutiert.

2 Methodik

2.1 Modelle

2.1.1 EURAD-IM

Das EURopean Air pollution Dispersion – Inverse Model (EURAD-IM) ist ein Eulersches, mesoskaliges Chemie-Transportmodell (CTM) mit Fokus auf Europa, welches alle wesentlichen atmosphärischen Prozesse (Advektion, Diffusion, chemische Transformation, nasse und trockene Deposition und Sedimentation) von Spurengasen und Aerosolen beinhaltet (Hass et al., 1995; Memmesheimer et al., 2004). Das EURAD-IM ermöglicht Datenassimilationsanalysen mittels 3D-var und 4D-var Datenassimilation (vergleiche Kapitel 2.2; Elbern et al., 2007). Durch offline-Nesting können Analysen und Vorhersagen in einer horizontalen Auflösung von bis zu 1 km² berechnet werden. Das EURAD-IM ist offline mit dem Weather Research and Forecasting Model (WRF Version 3.7; Skamarock et al., 2008) als meteorologischen Treiber gekoppelt. Mit dem EURAD-IM wurden bereits diverse Luftqualitätsanalysen durchgeführt, die die Einsatzfähigkeit des Modells für das Vorhaben belegen (z. B. Duarte et al., 2021; Vogel et al., 2020; Gama et al., 2019; Zyryanov et al., 2012; Monteiro et al., 2012; Elbern et al., 2011; Kanakidou et al., 2011).

Das EURAD-IM Datenassimilationssystem beinhaltet

- ▶ das EURAD-IM CTM und dessen adjungierte,
- ▶ eine Formulierung der Fehlerkovarianzmatrix für die Anfangswerte und die Korrekturfaktoren der Emissionen (siehe Kapitel 2.2 für mehr Details zur Fehlerkovarianzmatrix) sowie deren Einsatz zur Prädiktionskonditionierung des der Datenassimilation zugrunde liegenden Minimierungsproblems,
- ▶ ein Beobachtungsmodul zum Online-Vergleich der Modellkonzentrationen mit den Beobachtungen inkl. Berücksichtigung der Beobachtungsfehler und
- ▶ das Minimierungsprozedere inklusive der Prädiktionskonditionierung.

Als Minimierungsverfahren wird das quasi-Newton Verfahren "limited-memory Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno" (L-BFGS) Verfahren angewandt (Nocedal, 1980; Liu und Nocedal, 1989). Nach Weaver und Courtier (2001) werden die Fehlerkovarianzmatrizen mittels der Diffusion berechnet, welches eine hohe Flexibilität für die Nutzung von anisotropen, heterogenen Einflussradien bietet.

Die Advektion wird über das monotone, positiv definite Schema nach Walcek (2000) berechnet. Der vertikale, sub-skalige turbulente Transport wird über einen Eddy-Diffusions-Ansatz parametrisiert, wobei die Berechnung der vertikalen Eddy-Diffusionskoeffizienten von der modellierten turbulenten Schichtung der planetaren Grenzschicht, also von der Grenzschichthöhe und der Monin-Obukhov Länge, abhängt (Holtslag und Nieuwstadt, 1986). Die Diffusion wird mittels eines semi-impliziten (Crank-Nicholson) Schemas gelöst.

Die Gasphasenchemie im EURAD-IM ist durch den Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM, Stockwell et al., 1997) und dessen Erweiterung durch den Mainz Isoprene Mechanism (MIM, Geiger et al., 2003) repräsentiert. Das steife System gewöhnlicher Differentialgleichungen wird mit der zwei-stufigen Rosenbrock Methode gelöst (Sandu et al., 2003; Sandu und Sander, 2006). Photolysefrequenzen werden über das FTUV Modell (Fast Tropospheric Ultraviolet-Visible model; Tie et al., 2003) berechnet. Das zugrunde liegende Strahlungstransportmodell

basiert auf dem Tropospheric Ultraviolet-Visible Model (TUV) nach Madronich und Weller (1990). Die Teilchengrößenverteilung und chemische Transformation von Aerosolen wird im Modal Aerosol Dynamics model MADE (Ackermann et al., 1998) berechnet. Die Konzentrationen sekundär anorganischer Aerosole und der damit verbundenen Gasphasenspezies werden in einem FEOM (fully equivalent operational model) Modell unter Nutzung der HDMR (high dimensional model representation) Technik (Rabitz und Alis, 1999; Nieradzik, 2005) berechnet. Dabei basiert das Modell auf dem thermodynamischen Modell nach Friese und Ebel (2010).

Die trockene Deposition der Gasphase erfolgt nach Zhang et al. (2003). Die trockene Deposition der Aerosole wird für jede Mode der Teilchengrößen separat mittels eines Widerstandsmodells nach Petroff und Zhang (2010) berechnet. Nasse Deposition der Gasphase und Aerosolen basiert auf dem Wolkenmodul des EPA Model-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modellsystem (Roselle und Binkowski, 1999).

Die adjungierte Version der EURAD-IM beinhaltet die adjungierten Codes der Transportmechanismen (Advektion, horizontale und vertikale Diffusion), des Lösers der chemischen Gleichungssysteme sowie des FEOM Modells für die sekundär anorganischen Aerosole. Aufgrund ihres starken nicht-linearen Verhaltens sind in der aktuellen Version des EURAD-IM chemische Prozesse innerhalb von Wolken sowie von sekundär organischen Aerosolen nicht enthalten.

Da das EURAD-IM ein mesoskaliges Chemie-Transportmodell ist, ist es auf Randwerte aus einem Globalmodell für Chemietransport angewiesen. Die Randwerte für die Simulationen im Rahmen dieses Vorhabens werden von der Analyse des globalen IFS (Integrated Forecasting System) Modell des ECMWF genutzt.

Als wesentliche Bestandteile der Modellsimulationen werden die Emissionsdaten und deren Berechnung separat in Kapitel 2.2.4 diskutiert. Die Einrichtung der Modellkette ist Bestandteil des Abschnitts 3.4.

2.1.2 WRF

Das Weather Research and Forecasting (WRF) Modell (Skamarock et al., 2008) ist ein in den USA entwickeltes und weltweit genutztes mesoskaliges Wettervorhersage und -analyse Modell. Das WRF Modell bietet eine Vielzahl an Modulen und Paketen von Lösern der komplexen meteorologischen Gleichungen. Das EURAD-IM ist mit dem Advanced Research WRF (ARW) gekoppelt, welches eine große Flexibilität der Anwendungsmöglichkeiten bereitstellt. Das WRF Modell berechnet über einen Präprozessor die geophysikalischen Informationen des jeweiligen Modellgebietes und bietet verschiedene Parametrisierungen für die Mikrophysik, Kumulusparametrisierungen, Erdbodenphysik, Grenzschichtphysik, sowie für die Physik der atmosphärischen Strahlung. Tabelle 1 fasst die für das Vorhaben genutzten Parametrisierungen des WRF-Modells zusammen.

Tabelle 1: Genutzte Parametrisierungen des WRF Modells Version 3.7

Prozess	Parametrisierung	Referenz
Mikrophysik	Thompson Graupel Schema	Thompson et al. (2004)
Kumulus-Parametrisierung	Grell-Devenyi Ensemble Schema	Grell und Dèvènyi (2002)
Physik des Erdbodens	Noah Land-Surface Model	Skamarock et al. (2001)

Prozess	Parametrisierung	Referenz
Grenzschichtphysik	MYNN 2.5 Level TKE Schema	Nakanishi und Niino (2009)
Physik der atmosphärischen Strahlung	RRTMG Schema	Mlawer et al. (1997)

2.2 Datenassimilation

Datenassimilationsalgorithmen nutzen Beobachtungen um Modellsimulationen im Sinne des Bayes' Theorems

$$p(x|y) = \frac{p(y|x)p(x)}{p(y)} \quad (1)$$

zu verbessern. Hierbei sind $p(\cdot)$ die Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung (PDF), x der Modellzustandsvektor und y der Beobachtungsvektor. Der grundlegende Vorteil ist die Nutzung aller zur Verfügung stehenden Daten (Modell und Beobachtungen) um eine optimale Analyse des wahren atmosphärischen Zustandes unter Berücksichtigung aller Unsicherheiten/Fehler zu erhalten. Es gibt verschiedene Arten von Datenassimilationsalgorithmen, vor allem unterteilt in sequenzielle und variationelle sowie in stochastische und deterministische Methoden. Im Folgenden wird die im EURAD-IM implementierte 4D-var Technik im Detail erläutert.

2.2.1 Vierdimensionale variationelle Datenassimilation

Die vier-dimensionale variationelle Datenassimilation (4D-var) ist eine deterministische Datenassimilationsmethode. Bei 4D-var wird die Kostenfunktion

$$\begin{aligned} J(x_0, e) &= J_b + J_{obs} + J_e \\ &= \frac{1}{2} \left[(x_0 - x_b)^T \mathbf{B}^{-1} (x_0 - x_b) + \sum_{j=0}^N (H_j M(x_0) - y_j)^T \mathbf{R}_j^{-1} (H_j M(x_0) - y_j) \right. \\ &\quad \left. + (e - e_b)^T \mathbf{K}^{-1} (e - e_b) \right] \end{aligned} \quad (2)$$

unter Nutzung des Gradienten

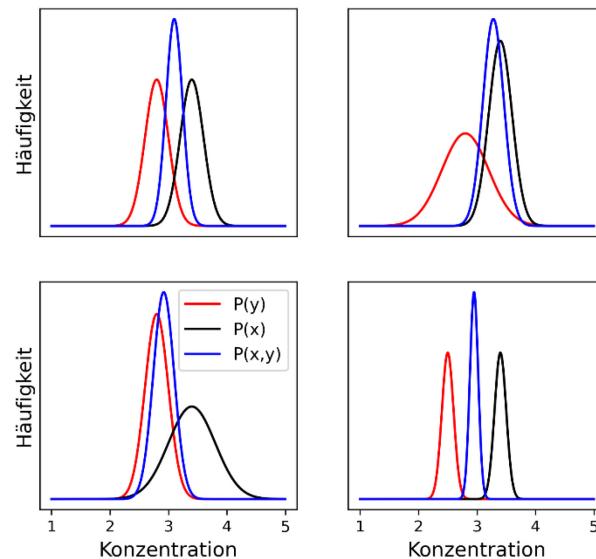
$$\nabla_{x_0, e} J(x_0, e) = \mathbf{B}^{-1} (x_0 - x_b) + \sum_{j=0}^N \mathbf{M}^T \mathbf{H}_j^T \mathbf{R}_j^{-1} (H_j M(x_0) - y_j) + \mathbf{K}^{-1} (e - e_b) \quad (3)$$

bzgl. der Anfangswerte des Modells x_0 sowie der Emissionskorrekturfaktoren e minimiert. Hierbei stellen \mathbf{M} und \mathbf{H} die linearisierten Modell- (M) bzw. Beobachtungsoperatoren (H) dar, y die Beobachtungen zum Zeitpunkt j , \mathbf{R} , \mathbf{B} und \mathbf{K} die Fehlerkovarianzmatrizen der Beobachtungen, Anfangswerte des Modells und Emissionen, sowie x_b und e_b den Modellzustand bzw. den Emissionsvektor des Hintergrund-Modelllaufs. Im EURAD-IM wird zur Minimierung der quasi-Newton Algorithmus L-BFGS (Liu und Nocedal, 1989) genutzt. Wie bei allen operationell genutzten Datenassimilationsalgorithmen werden auch bei der 4D-var Methode die Annahmen gemacht, dass das Modell linear ist, es keinen statischen Fehler zwischen den Beobachtungen und dem Modellzustand gibt („unbiased“) und alle Fehler normalverteilt sind („BLUE“: best linear unbiased estimate). Derzeit wird aber an der Anwendbarkeit von Datenassimilationsalgorithmen geforscht, denen diese Annahmen nicht zugrunde liegen. Diese

Methoden, zum Beispiel „particle filtering“, benötigen jedoch extrem viel Rechenzeit, da sie ensemblebasiert sind und mit zunehmender Komplexität des Modells größere Ensemble nutzen müssen („Curse of dimensionality“; Snyder et al., 2008). Durch die iterative Annäherung an den optimalen Modellzustand eignet sich die 4D-var Methode dennoch auch für nicht-lineare Probleme. Jedoch kann nicht ausgeschlossen werden, dass ggf. in ein lokales Minimum optimiert wird.

Trotz der Annahmen, die bei dieser Methode nötig sind, ist die 4D-var Datenassimilation die Methode, die die valideste Analyse der Emissionsdaten ermöglicht. Dies wird zum einen dadurch gestützt, dass die Nutzung des adjungierten Modells die Projektion der Modell-Beobachtungsdiskrepanz auf die Emissionen in räumlicher und zeitlicher Distanz realisiert. Zum anderen dient das adjungierte Modell zur Rückführung der Modell-Beobachtungsdiskrepanz auf die Vorläuferspezies, was unter anderem die Optimierung von Spurengasen ermöglicht, die nicht beobachtet werden. Die Korrekturen der Emissionen erfolgt hierbei über die im adjungierten Modell berechneten Sensitivitäten der beobachteten Spezies gegenüber Vorläuferstoffen. Vereinfacht dargestellt wird somit eine chemisch und physikalisch konsistente Analyse erzielt, in der die Unterschiede zwischen Modellsimulationen und Beobachtungen auf die wahrscheinlichste Ursache zurückgeführt werden kann. Dies ist in alternativen Methoden der Datenassimilation (z. B. beim Ensemble Kalman Filter) wenn überhaupt nur bedingt möglich.

Abbildung 1: Veranschaulichung des 4D-var Prinzips

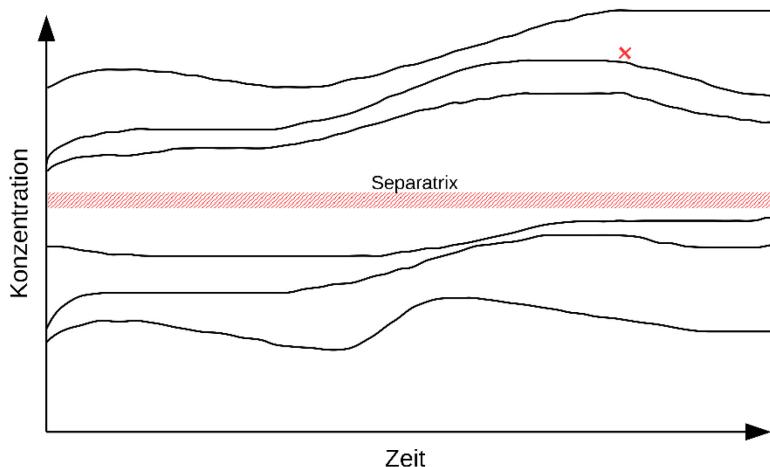


Veranschaulichung des 4D-var Prinzips anhand einfacher eindimensionaler Wahrscheinlichkeitsdichteverteilungen entsprechend dem Bayes Theorem (rot: $p(y/x)$, schwarz: $p(x)$, blau: $p(x/y)$). Dargestellt sind Normalverteilungen mit Mittelwert μ und Standardabweichung σ . Oben links: $[\mu_y=2.8, \sigma_y=0.2, \mu_x=3.4, \sigma_x=0.2]$; Oben rechts: $[\mu_y=2.8, \sigma_y=0.4, \mu_x=3.4, \sigma_x=0.2]$; Unten links: $[\mu_y=2.8, \sigma_y=0.2, \mu_x=3.4, \sigma_x=0.4]$; Unten rechts: $[\mu_y=2.5, \sigma_y=0.1, \mu_x=3.4, \sigma_x=0.1]$. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abhängig von den Fehlern, die in den verschiedenen Fehlervarianzmatrizen zusammengefasst sind, werden die Modellvariablen und/oder Emissionen stärker oder weniger stark korrigiert. Hierbei gilt generell: Je größer der Fehler ist, desto weniger Gewicht erhält die zugehörige Variable, d. h. der Abstand zur Analyse ist in diesem Falle größer. In Abbildung 1 wird dies anhand eines einfachen Beispiels veranschaulicht. Hierbei werden eindimensionale PDFs des Modellzustandes ($p(x)$), der Beobachtungen unter gegebenen Modellwerten ($p(y/x)$), und der Analyse ($p(x/y)$) mit verschiedenen Mittelwerten und Standardabweichungen gezeigt. In den

Grafiken in Abbildung 1 ist der Einfluss der Unsicherheiten der Beobachtungen und des Modellzustandes deutlich zu erkennen. Haben beide PDFs die gleiche Unsicherheit (Varianz), liegt die Analyse exakt in der Mitte zwischen beiden PDFs (Abbildung 1 oben links). Überwiegt hingegen die Unsicherheit der Beobachtungen/des Modellzustandes, liegt die Analyse deutlich näher beim Modellzustand/den Beobachtungen (Abbildung 1, oben rechts bzw. unten links). Ein besonderer Fall ist in Abbildung 1 unten rechts gezeigt, in dem $p(x)$ und $p(y/x)$ die BLUE-Annahme nicht mehr erfüllen. Für den einfachen eindimensionalen Fall lässt sich hier, wie abgebildet, zwar eine Lösung berechnen, im Allgemeinen ist diese Lösung mittels eines Optimierungsverfahrens allerdings nur noch lokal möglich. Das bedeutet, dass in dem Fall, dass die BLUE-Voraussetzungen verletzt werden, in der Regel nur lokale Minima gefunden werden können. Ein solcher Sonderfall ist auch in Abbildung 2 verdeutlicht, in der verschiedene Modelltrajektorien und eine dazugehörige Beobachtung dargestellt werden. Die Modelltrajektorien sind hierbei durch eine nicht zu überwindende Separatrix voneinander getrennt. Der Minimierungsalgorithmus sucht nach einem optimalen Anfangszustand, um den Abstand zwischen Modellzustand und Beobachtungen zu minimieren, kann die Separatrix jedoch nicht überwinden. Nur im Falle von Anfangswerten, die bereits über der Separatrix liegen, bzw. wenn der entsprechende Prozess im Modell berücksichtigt wird, kann der Modellzustand entsprechend den BLUE-Annahmen optimiert werden. Dies ist zum Beispiel bei Emissionsepisoden wie etwas Waldbränden oder Saharastaubtransport der Fall. Hier sind die Beobachtungen deutlich höher als die simulierten Konzentrationen, sofern das Emissionereignis nicht bei den Modellsimulationen berücksichtigt wurde (die Modellsimulation liegt unterhalb der Separatrix). Werden die zusätzlichen Emissionen im Modell berücksichtigt (die Modellsimulation liegt über der Separatrix), kann der Modellzustand entsprechend den BLUE-Annahmen optimiert werden.

Abbildung 2: Modelltrajektorien unter Berücksichtigung einer Separatrix



Modelltrajektorien für verschiedene Anfangsbedingungen unter Berücksichtigung einer Separatrix (rot gestreift). Die Modelltrajektorien sind in schwarz dargestellt. Die Beobachtung ist durch ein rotes Kreuz gekennzeichnet. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

2.2.2 Inkrementaler Ansatz für 4D-var

Die oben beschriebene Kostenfunktion und deren Gradient bieten im Wesentlichen drei Probleme:

1. Die Fehlerkovarianzmatrizen sind durch ihre Komplexität ($O(10^{12})$) weder darstellbar noch speicherbar,
2. die Ergebnisse der Analyse hängen stark von der Prädiktionsierung des Problems ab,
3. die inverse Matrix kann im Allgemeinen nicht berechnet werden.

In Anlehnung an Courtier et al. (1994), wird im EURAD-IM eine inkrementale Formulierung des variationellen Datenassimilationsproblems verwendet, welche vor allem Lösungen für den zweiten und dritten Punkt bietet. Dieser Ansatz wird im Folgenden kurz beschrieben.

Zunächst wird nicht der Anfangswert selbst, sondern die Änderung des Modellanfangszustandes gegenüber dem Anfangszustand des Hintergrund-Modelllaufs betrachtet:

$$\delta x = x_0 - x_b \quad (4)$$

Dadurch ergibt sich die folgende geänderte Kostenfunktion

$$J(\delta x) = \frac{1}{2} \left[\delta x^T \mathbf{B}^{-1} \delta x + \sum_{j=0}^N (H_j M \delta x - d_j)^T \mathbf{R}_j^{-1} (H_j M \delta x - d_j) \right] \quad (5)$$

mit $d_j = y_j - H_j M(x_b)$, dem sogenannten Innovationsvektor. Hierbei ist der Term bzgl. der Korrekturfaktoren der Emissionen zur Vereinfachung vernachlässigt worden. Ferner wird eine Variablentransformation eingeführt

$$v = \mathbf{B}^{-\frac{1}{2}} \delta x \quad (6)$$

wobei $\mathbf{B} = \mathbf{B}^{1/2} \mathbf{B}^{T/2}$ gilt. Durch diese Variablentransformation ergibt sich nun eine vereinfachte Form der Kostenfunktion und ihres Gradienten

$$J(v) = \frac{1}{2} \left[v^T v + \sum_{j=0}^N (H_j M \delta x - d_j)^T \mathbf{R}_j^{-1} (H_j M \delta x - d_j) \right] \quad (7)$$

mit $\delta x = \mathbf{B}^{1/2} v$, sowie

$$\nabla_v J(v) = v + \mathbf{B}^{T/2} \sum_{j=0}^N \mathbf{M}^T \mathbf{H}_j^T \mathbf{R}_j^{-1} (H_j \delta x - d_j). \quad (8)$$

Hierbei ist zu beachten, dass in der ersten Iteration des 4D-var Datenassimilationsalgorithmus $x=x_b$, und somit $v \approx \delta x = 0$ gilt. In der Formulierung der transformierten Kostenfunktion und ihres Gradienten ist nun der Vorteil der Transformation ersichtlich. Die Berechnung der inversen Fehlerkovarianzmatrix \mathbf{B}^{-1} wird durch die Berechnung von v und $\mathbf{B}^{1/2}$ ersetzt. Es konnte gezeigt werden, dass diese Prädiktionsierung der Kostenfunktion eine effizientere Minimierung ermöglicht (z. B. Haben, 2011). Die Konditionierung des Datenassimilationsproblems ist insbesondere von der Konditionierung von \mathbf{B} abhängig. Nach Haben (2011) gilt im Allgemeinen, dass sich die Konditionszahl des Datenassimilationsproblems verringert, wenn

- die Beobachtungen einen größeren Abstand voneinander haben,
- weniger Beobachtungen gewählt werden,
- die Beobachtungen ungenauer sind, d. h. größere Fehler besitzen.

Es ist somit bei der Analyse mittels Datenassimilation darauf zu achten, dass die Anzahl der Beobachtungen eine kritische Menge nicht überschreitet, welche allerdings nicht allgemein gültig ermittelt werden kann.

2.2.3 Besonderheiten bei der Optimierung von Emissionskorrekturfaktoren

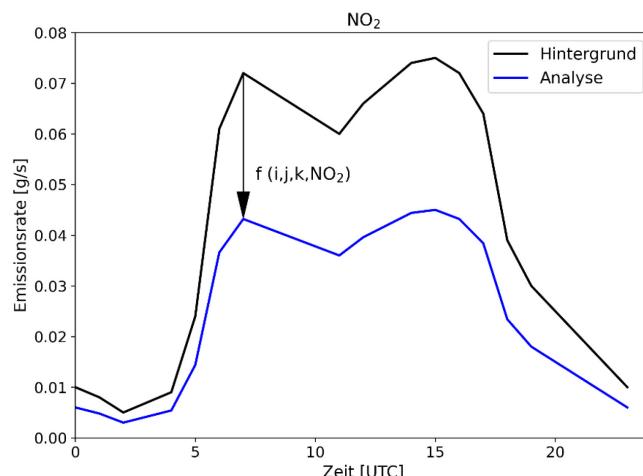
Die anthropogenen Emissionen werden von Jahressummen für jede Gitterbox durch vordefinierte Zeit- und Höhenprofile zeitlich und räumlich verteilt. Um die Komplexität des mathematischen Problems der Optimierung nicht übermäßig zu erhöhen, wird im Folgenden davon ausgegangen, dass die zeitlichen und vertikalen Verteilungen der anthropogenen Emissionen besser bekannt sind als die horizontale Verteilung. Hierbei bezieht sich die zeitliche Verteilung auf den Tagesgang der Emissionen. Daher werden nicht die Emissionen $e(i,j,k,t,l)$, sondern sogenannte Emissionskorrekturfaktoren $f(i,j,l)$ optimiert:

$$e_a(i,j,k,t,l) = e_b(i,j,k,t,l)f(i,j,l), \quad (9)$$

dabei sind $e_a(i,j,k,t,l)$ und $e_b(i,j,k,t,l)$ die Emissionen der Analyse bzw. des Hintergrundes für die Gitterbox (i,j,k) , den Zeitschritt (t) und die Spezies (l) . Die Korrekturfaktoren der Emissionen hängen somit nur von der geographischen Lage (i,j) und der Spezies (l) ab, jedoch weder von der Höhe (k) noch von der Zeit (t) . Abbildung 3 zeigt exemplarisch einen Tagesgang von NO_2 -Emissionen, dessen Amplitude durch einen Korrekturfaktor angepasst wird. Ferner ist zu beachten, dass das Tagesprofil der Emissionen zwar fest gewählt ist, die Emissionen jedoch tagesindividuelle Emissionskorrekturfaktoren erhalten können, sodass sowohl die wöchentliche als auch die jahreszeitliche Verteilung der Emissionen variabel ist. Die Korrektur der Emissionen für jede Stunde ist nicht möglich. Zum einen ist das Minimierungsproblem bei stündlichen Korrekturfaktoren für Emissionen um ein 24-faches größer, was sich negativ auf die Effizienz der Minimierung auswirkt. Zum anderen ist durch die diffusive Natur der Atmosphäre eine exakte stündliche Zuordnung der Emissionen nicht zwingend möglich. Zur Erfüllung der Voraussetzung, dass die Korrekturfaktoren der Emissionen positiv definit sind, d. h. nicht negativ werden können, wird im Algorithmus der natürliche Logarithmus der Korrekturfaktoren betrachtet

$$u = \ln(f). \quad (10)$$

Abbildung 3: Exemplarischer Tagesgang von NO_2 -Emissionen



Exemplarischer Tagesgang von NO_2 -Emissionen für den Hintergrund und die Analyse innerhalb einer Gitterzelle. Der Emissionskorrekturfaktor $f(i,j,k,\text{NO}_2)$ ist hier höhenabhängig dargestellt. Im Vorhaben wird an den vordefinierten

Emissionsprofile festgehalten, da der Fokus primär auf der horizontalen Verteilung der Emissionen liegt, nicht auf deren vertikaler Verteilung. Quelle: eigene Darstellung nach einer Vorlage in Strunk (2006).

Dementsprechend wird die Fehlerkovarianzmatrix der Emissionen \mathbf{K} auch bzgl. der Transformation u definiert. Durch diese Substitution ergeben sich mathematische Unterschiede in der Optimierung für Emissionskorrekturfaktoren. Zunächst ist zu berücksichtigen, dass der Modellzustand $x(t)$ auch von den Emissionen und dementsprechend von den Korrekturfaktoren abhängt, welche Auswirkungen auf die Kostenfunktion hat (hier wird der Term bzgl. der Anfangswerte vernachlässigt)

$$J(u) = \frac{1}{2} \left[(u - u_b)^T \mathbf{K}^{-1} (u - u_b) + \sum_{j=0}^N (H_j M_{ef}(x_0) - y_j)^T \mathbf{R}_j^{-1} (H_j M_{ef}(x_0) - y_j) \right]. \quad (11)$$

Hierbei sind die Emissionen e im Modelloperator $M_{ef}=M(e)$ berücksichtigt, der den Modellzustand vom Anfangszustand x_0 zum Modellzustand x am entsprechenden Zeitpunkt integriert. Für die Korrekturfaktoren der Emissionen gilt nun

$$e = f e_b = \exp(u) e_b. \quad (12)$$

Es ist zu beachten, dass der Gradient bzgl. der transformierten Korrekturfaktoren berechnet werden muss, d. h.

$$\nabla_u J = \nabla_u (J_e + J_{obs}). \quad (13)$$

In der Implementierung im EURAD-IM wird zunächst der Term $\nabla_f J_{obs}$ berechnet, welcher hinterher mittels $\nabla_u J_{obs} = f \nabla_f J_{obs}$ transformiert wird. Durch diese Umformung darf der Minimierungsalgorithmus keine zu kleinen Korrekturfaktoren produzieren, da diese den Gradienten künstlich klein halten. In diesem Fall ist ein Neustart mit reduzierten Emissionen (nicht Emissionskorrekturfaktoren) ratsam.

2.2.4 Berechnung der Fehlerkovarianzmatrizen des Hintergrundes und der Korrekturfaktoren der Emissionen

Die Fehlerkovarianzmatrix der Anfangswerte wird statistisch berechnet. Hierfür gibt es verschiedene Ansätze. Im EURAD-IM wird die Fehlerkovarianzmatrix \mathbf{B} über folgende Formel definiert

$$\mathbf{B} = \Sigma \mathbf{C} \Sigma = \Sigma^{1/2} \mathbf{C}^{T/2} \Sigma = \mathbf{B}^{1/2} \mathbf{B}^{T/2}, \quad (14)$$

Wobei Σ eine Diagonalmatrix mit der Standardabweichung auf der Diagonalen ist. Die Korrelationsmatrix lässt sich über folgende Formel definieren

$$\mathbf{C} = \Lambda \mathbf{L}^{1/2} \mathbf{W}^{-1/2} \mathbf{W}^{-1/2} \mathbf{L}^{T/2} \Lambda, \quad (15)$$

mit Λ einer Normierungsmatrix, $\mathbf{L} = \{\mathbf{I} + \kappa \Delta t \mathbf{D}\}^M$ der Diffusionsmatrix mit dem diskretisierten Diffusionsoperator \mathbf{D} , der Einheitsmatrix \mathbf{I} , sowie dem Zeitschritt Δt und der Integrationszeit M .

Die Matrix \mathbf{W} ist projektionsabhängig und skaliert die Korrelationsmatrix entsprechend den Projektionsfaktoren. Die Einträge der Matrix $\Sigma_{i,j,k}$ für die Spezies i , Gitterbox j in Modelllevel k mit der Höhe z_k für die Hintergrundfehler werden über die Konzentration der Modellvariablen $x_{i,j,k}$ zum Anfangszeitpunkt der Simulation abgeschätzt

$$\Sigma_{i,j,k} = \max(\delta e x_{i,j,k}, \bar{x}_{i,k}, \delta e x_{i,k,max}), \quad \delta e = 1,5 \left(\frac{k_{max} - k}{k_{max} - 1} \right)^2. \quad (16)$$

Hierbei bezeichnet $\bar{x}_{i,k}$ den Mittelwert der Modellkonzentration am Anfangszeitpunkt der Simulation und $x_{i,k,max}$ den Maximalwert. Für die Aerosole wird $\Sigma_{i,j,k}$ definiert über

$$\Sigma_{i,j,k} = \max \left(x_{i,j,k} \sigma_{rel}, \sigma_i \exp \left(\frac{z_k}{H_{scale}} \right), 0,1 \right), \quad (17)$$

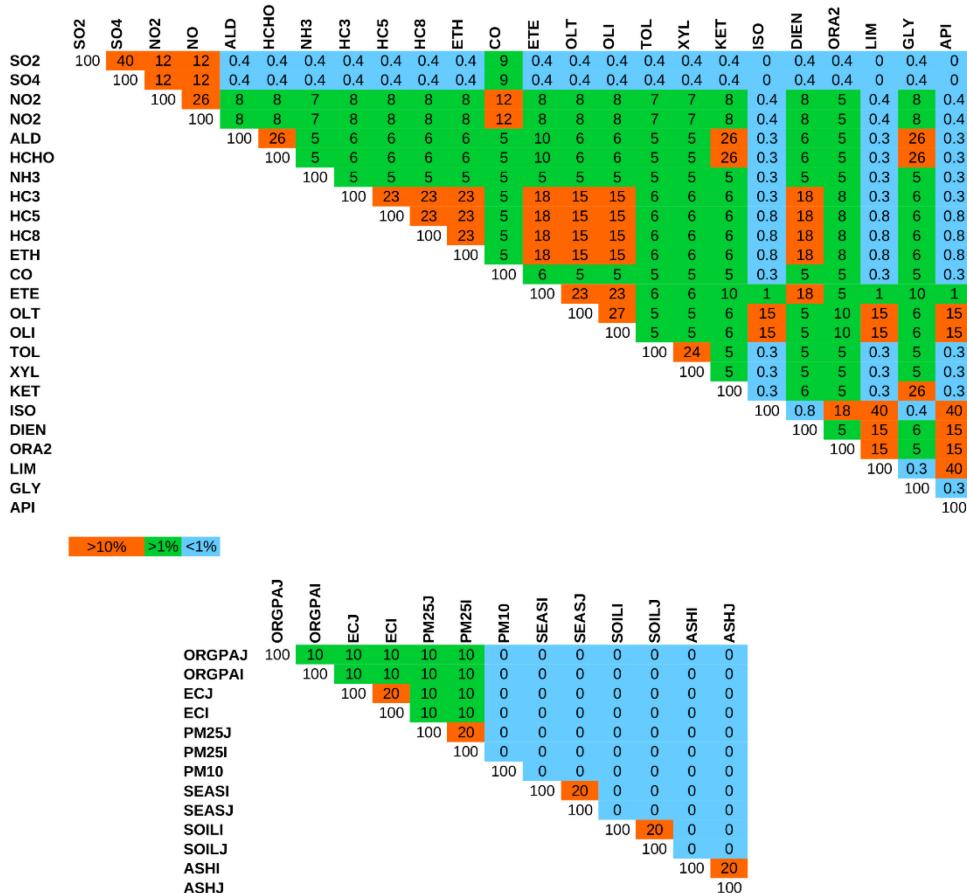
mit $\sigma_{rel} = 200\%$ außer für Sulfat, für welches $\sigma_{rel} = 150\%$ gilt. Die Skalenhöhe beträgt für die meisten Spezies $H_{scale} = 730m$ nur für besondere Aerosole wie Seesalz, Mineralstaub und Vulkanasche ist die Skalenhöhe deutlich größer. Der absolute Fehler σ_i ist Tabelle 2 zu entnehmen.

Tabelle 2: Absoluter Fehler der Aerosole zur Berechnung der Hintergrundfehler-kovarianzmatrix im EURAD-IM

	Sulfat	Ammonium	Nitrat	Element. Kohlenstoff	Prim. Organ. Aerosol	PM _{2,5}	PM ₁₀	Seesalz	Mineralstaub	Vulkanasche
$\sigma_i [\mu\text{g m}^{-3}]$	15	15	15	5	8	10	20	30	100	200

Die Matrix \mathbf{K} ist über Abbildung 4 definiert, in der die prozentualen Korrelationen der emittierten Spezies eingetragen sind. Die Korrelationen richten sich nach der chemischen Kopplung der Spezies sowie danach, ob sie von gleichen Quellen emittiert werden. Der absolute Fehler beträgt $\sigma_i = \log(2)$. Lediglich bei SO₂, NH₃, NO, Seesalz, Mineralstaub und Vulkanasche werden andere Fehler angenommen: $\sigma_{SO_2} = \sigma_{NH_3} = \log(1.7)$; $\sigma_{NO} = \log(1.3)$; $\sigma_{SEAS} = \sigma_{DUST} = \sigma_{ASH} = \log(3.5)$.

Abbildung 4: Korrelationsmatrizen der Korrekturfaktoren der Emissionen



Fehlerkovarianzmatrizen der Emissionskorrekturfaktoren für die Gasphase (oben) und Aerosole (unten). Die Farben zeigen verschiedene Grade der Korrelation an. Die Korrelation basieren auf Annahmen und berücksichtigen die Sektorenkoppelung unter den verschiedenen Spezies. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

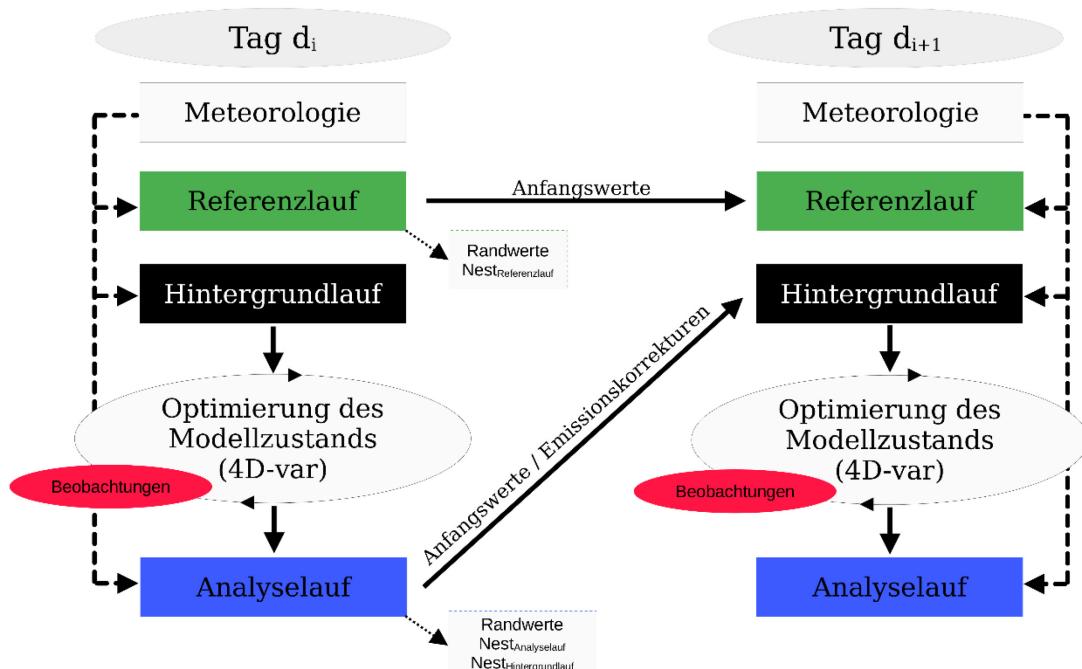
2.3 Begriffserklärung

In der Datenassimilation werden im Wesentlichen drei Modellläufe voneinander unterschieden:

- Der Referenzlauf: Modellsimulation mit den standardmäßigen Emissionsdaten und Anfangswerten („normale Vorhersage“);
- Der Hintergrundlauf: Modellsimulation die sich an die Analyse des Vortages anschließt. Hierbei werden bereits die korrigierten Emissionen der Analyse berücksichtigt. Der Hintergrundlauf wird mit den Simulationsergebnissen der Analyse des Vortages initialisiert („Vorhersage basierend auf der Analyse“);
- Die Analyse: Das Ergebnis der Assimilation. Hierbei werden die optimierten Anfangswerte und Emissionskorrekturen berücksichtigt.
- Die Emissionskorrekturfaktoren: Die in Abbildung 3 beschriebenen Faktoren, um die Amplitude des Emissionstagesgangs anzupassen.
- Die Assimilation: Sammelbegriff für mathematische Methoden, die Beobachtungen und Modellläufe miteinander vereinen, um bessere Analysen zu erzielen. Im vorliegenden Fall wird die vier dimensionale variationelle Datenassimilation genutzt.

Der Hintergrundlauf kann somit als Maß dafür betrachtet werden, inwieweit die Analyse die Vorhersage des Folgetages beeinflusst. In der Hintergrundsimulation sind die Emissionskorrekturen stärker repräsentiert als die Korrekturen der Anfangswerte. Der Begriff „Vorhersage“ bezieht sich dabei auf die operationelle Nutzung der 4D-var Methode (wie etwa in der Meteorologie üblich). Im Kontext dieser Studie ist der Begriff „Vorhersage“ gleichbedeutend mit einer Vorwärtssimulation. Abbildung 5 zeigt schematisch, wie die verschiedenen Modellläufe zusammenhängen. Tägliche Simulationen der Meteorologie dienen als Eingabe für die atmosphärischen Simulationen. Die Referenzläufe werden parallel zu den Hintergrundläufen und der Analyse ausgeführt und stellen die Anfangswerte für den Referenzlauf des Folgetages bereit. Der tägliche Assimilationszyklus wird mit einem Hintergrundlauf initialisiert. Die simulierten Konzentrationen des Hintergrundlaufs werden mit Beobachtungen verglichen. Iterativ werden optimierte Anfangswerte und Emissionskorrekturfaktoren berechnet. Dies dienen der Initialisierung der Analyse. Die Analyse stellt die Anfangswerte und Emissionskorrekturfaktoren für den Hintergrundlauf des Folgetages bereit, wodurch ein neuer Assimilationszyklus begonnen wird. Randwerte für die höher aufgelösten Modellgebiete werden für den jeweiligen Tag vom Referenzlauf sowie der Analyse extrahiert.

Abbildung 5: Schematische Darstellung der verschiedene Modellläufe und deren Zusammenhänge



Schema des Ablaufs der Modellsimulationen. Die Farben sind entsprechend den Farben in den Zeitreihenvergleichen in der Auswertung der Ergebnisse zugeordnet. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

2.4 Emissionen

Für die Ziele des Vorhabens ist es essenziell konsistente Emissionsdaten zur Verfügung zu haben. Dies betrifft vor allem die anthropogenen Emissionen, aber auch biogene Emissionen müssen sinnvoll in das Modell eingepflegt werden. Im Folgenden wird die Verarbeitung anthropogener Emissionen diskutiert. Anschließend wird eine kurze Beschreibung der Module für biogene Emissionen gegeben.

2.4.1 Anthropogene Emissionen

2.4.1.1 Nationale Emissionen

Für Deutschland werden die mit dem GRETA-Tool räumlich verteilten anthropogenen Emissionsdaten des Jahres 2016 (siehe Kapitel 3.2 für die Auswahl des Referenzjahres 2016) aus der Berichterstattung 2019 verwendet. Grundlage bilden hierbei die offiziell für Deutschland berichteten Emissionen des Zentralen Systems Emissionen (ZSE).

2.4.1.2 Europäische Emissionen

Da das Modellgebiet über Deutschland hinausragt, ist eine Verschneidung der mit GRETA verteilten Emissionen mit einem europäischen Emissionskataster notwendig. Für das Vorhaben wurden Emissionsdaten aus dem CAMS-Projekt verwendet, welche von der TNO für Europa räumlich verteilt werden. Im Vorhaben werden speziell die Emissionen für 2016 der TNO-Daten Version 3.1¹ verwendet. Die europäischen Emissionen werden in einer Auflösung von $1/10^\circ \times 1/20^\circ$ (ca. 6 km x 6 km in Zentraleuropa) von der TNO bereitgestellt. Sowohl GRETA- als auch TNO-Emissionsdaten werden auf GNFR Basis verteilt. Dies machte eine Anpassung des EURAD-IM notwendig, sodass GNFR-Emissionsdaten direkt verarbeitet werden konnten. Die GNFR-Sektoren sind in Tabelle 3 zusammengefasst.

Der EEM-Präprozessor (EURAD-Emission-Module; Memmesheimer et al., 1991), welcher im EURAD-IM genutzt wird, nutzt Landbedeckungs- und Landnutzungsdaten aus CORINE Land Cover (CLC) und Open Street Map für die verschiedenen Sektoren um die TNO-Emissionsdaten auf das Modellgitter des EURAD-IM zu projizieren (Tabelle 3). Hierbei werden die TNO-Emissionen zunächst z.B. auf die CLC-Polygone projiziert. Abhängig vom Umfang der Landnutzungsdaten werden bis zu 100 % der Emissionen auf die Landnutzungsfläche projiziert. Im Regelfall wird aber davon ausgegangen, dass die Landnutzungsdaten nicht vollständig alle Verursacher eines Sektors darstellen, sodass ein gewisser Prozentteil der Emissionen nicht auf die Landnutzungsdaten projiziert wird, sondern als "Hintergrundemissionen" in der verbleibenden Gitterbox enthalten bleiben (Abbildung 6). Diese verteilten Emissionen werden anschließend mit dem EURAD-IM Gitter verschnitten.

Im EEM-Präprozessor werden die TNO-Emissionen des Emissionskatasters zunächst auf die Landnutzungsflächen verteilt und anschließend mit der Fläche skaliert. Nach dem Verschneiden mit dem EURAD-IM Gitter werden die skalierten Emissionswerte wieder zurückskaliert, jedoch auf die Fläche des EURAD-IM Gitters. Dieses Vorgehen bietet für gröbere Gitter (Auflösung größer als die des Emissionsinventars) den Vorteil, dass Glättungen der Emissionsdaten, die durch die unterschiedlichen Gitter entstehen, weitestgehend vermieden werden können. Für feine Gitter können deutlich feinere Emissionsstrukturen repräsentiert werden als es beim reinen Projizieren der Fall wäre (siehe Abbildung 6).

Die angegebenen CLC-Kategorien (siehe Tabelle 3) weichen zum Teil von denen des Umweltbundesamtes bereitgestellten Zuordnungen (siehe Schneider et al., 2016) ab. Dies wurde vorgenommen, um die Landnutzungsdaten bestmöglich mit den von TNO gelieferten Emissionen in Übereinstimmung zu bringen. Des Weiteren wurden bei Straßenemissionen nur die Hauptstraßen, im Wesentlichen also Autobahnen, Bundes- und Landstraßen berücksichtigt. Es wird davon ausgegangen, dass der Großteil der Emissionen der Straßenverkehrsemissionen von diesem Straßennetz ausgeht. Für die Schifffahrtsemissionen auf Flüssen konnte kein passender Datensatz gefunden werden, der mit den TNO Emissionsdaten gut übereinstimmt. Daher wurden die Flüsse, auf denen Schiffsemissionen im TNO-Datensatz enthalten sind, manuell

¹ https://atmosphere.copernicus.eu/sites/default/files/2019-11/03_CAMS81_2017SC1_D81.1.1-1_M18_201902_v1_APPROVED_Ver2.pdf

hinzugefügt. Hierbei ist aufgefallen, dass die Emissionsdaten regional zum Teil stark von tatsächlichen Flussverläufen abweichen. Dies ist beispielhaft für die Donau und den Main-Donau-Kanal in Abbildung 7 gezeigt. An den Stellen, an denen die Emissionsdaten und Landnutzungsdaten voneinander abweichen, können keine Verfeinerungen der Emissionsdaten mit dem EEM-Präprozessor erzielt werden. Es wird davon ausgegangen, dass die Abweichungen von den Landnutzungsdaten nur geringen Einfluss auf die Schadstoffkonzentrationen in Deutschland haben werden, zumal der TNO-Datensatz innerhalb Deutschlands durch den GRETA-Datensatz ersetzt wird.

Bei der Verschneidung der GRETA-Emissionen mit den TNO-Emissionen muss generell darauf geachtet werden, dass die Gitterzellen aus den GRETA-Daten, die über die Deutsche Landesgrenze hinausragen, nur Emissionen aus Deutschland enthalten. Die entsprechenden Gitterzellen aus dem TNO-Datensatz enthalten jedoch sowohl die deutschen als auch Emissionen aus den angrenzenden Staaten. Daher wurden alle Gitterzellen, die auf der deutschen Grenze liegen, mit TNO-Emissionen versehen. Nur Gitterzellen, die vollständig in Deutschland liegen, wurden aus dem GRETA-Emissionskataster gewählt. Dies ermöglicht ein homogenes Verbinden der GRETA- und TNO-Datensätze, führt jedoch dazu, dass die Gesamtsumme der deutschen Emissionen nicht exakt reproduziert werden kann. Dies wird in Kapitel 4.2.6 diskutiert, in dem die analysierten Emissionsdaten mit den vom Umweltbundesamt berechneten Berichterstattungen verglichen werden.

Tabelle 3: GNFR-Sektoren

Beschreibung der GNFR-Sektoren auf die die Emissionsdaten verteilt werden. Die Beschreibung ist der TNO-Dokumentation¹ entnommen.

GNFR Sektor	Beschreibung	Quelle der Landnutzungs- und Landbedeckungsdaten
A	Energieerzeugung	121 ^t
B	Industrie	121 ^t , 123 ^t
C	Hausbrand	111 ^t , 112 ^t
D	Flüchtige Emissionen	121 ^t
E	Lösungsmittel	111 ^t , 112 ^t , 121 ^t
F	Straßenverkehr	5113 ^l , 5114 ^l
G	Schiffverkehr	522 ^t , ocean*, eigene Aufzeichnungen
H	Luftverkehr	124 ^t
I	Transport (Offroad)	6101 ^l
J	Abfallwirtschaft	121 ^t
K	Viehwirtschaft	231 ^t , 242 ^t
L	Sonstige Landwirtschaft	211 ^t , 212 ^t , 213 ^t , 221 ^t , 222 ^t , 223 ^t , 241 ^t , 242 ^t , 243 ^t , 244 ^t

^t CORINE Land Cover Kategorie

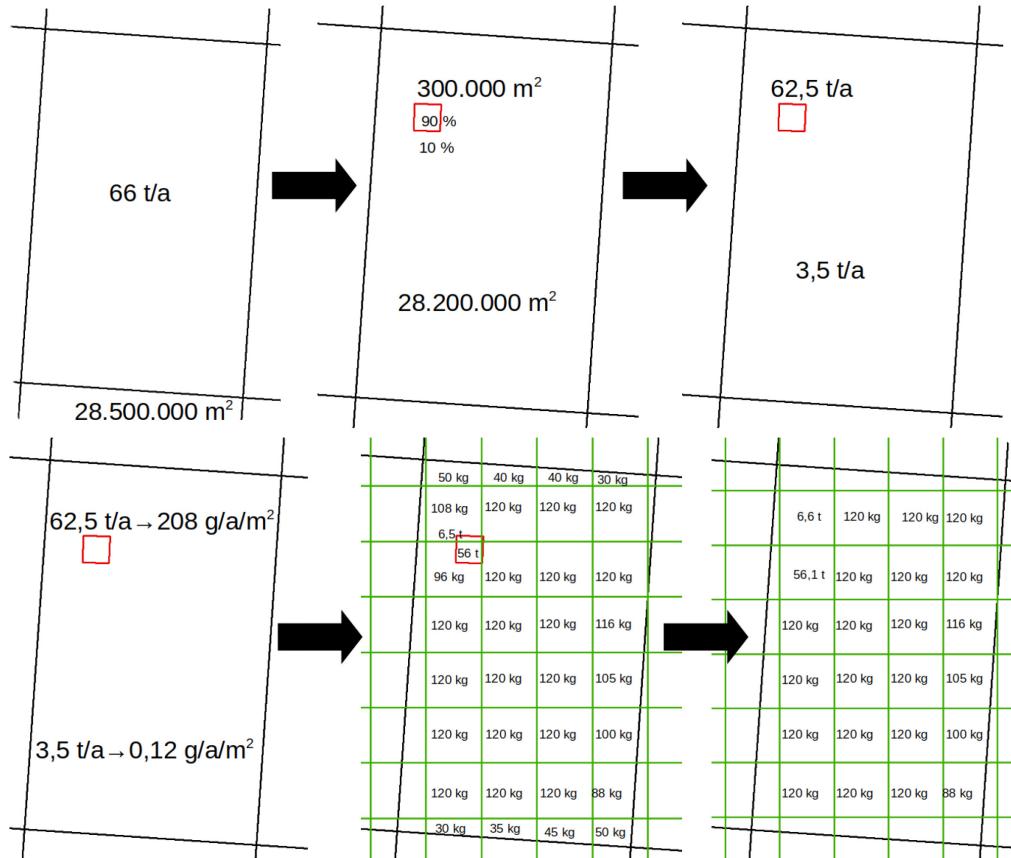
^l Open Street Map Kategorie

* Natural Earth Data Datensatz

Neben den Gitterboxen, die auf der deutschen Grenze liegen, wurden die GRETA-Emissionen im Nord-Ostsee-Kanal, am Oberrhein und an den Häfen an Nord- und Ostsee durch TNO-Daten

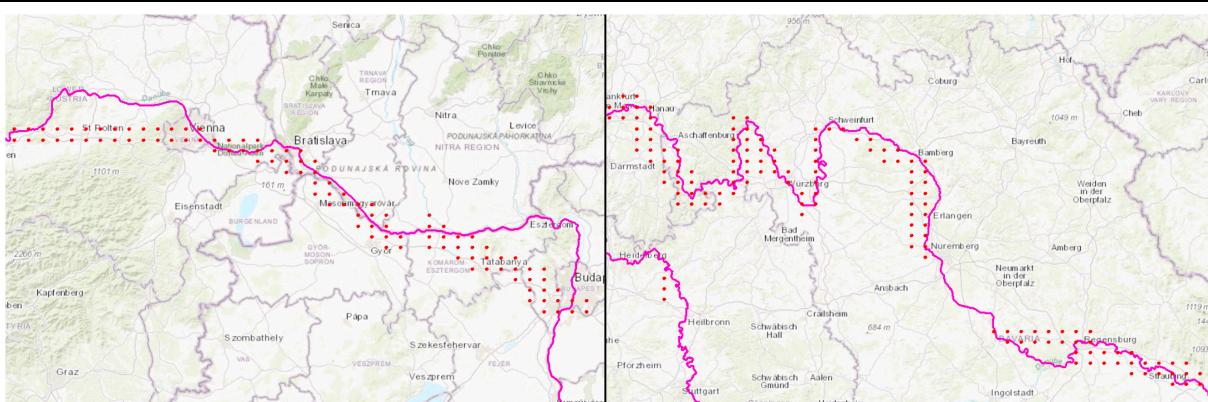
ersetzt. Dies ermöglicht die Repräsentation der internationalen Schiffsemissionen, die nicht im GRETA-Datensatz enthalten sind. Die betroffenen Häfen sind Hamburg, Bremen, Kiel, Lübeck und Rostock.

Abbildung 6: Schematische Darstellung des EEM-Präprozessors



Dargestellt sind schematisch die Gitterbox des TNO-Emissionskatasters (schwarz), der Landnutzungsdaten (rot) und des EURAD-IM (grün). Die angegebenen Flächen- und Emissionswerte sind fiktiv und dienen der besseren Anschaulichkeit.
Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 7: Vergleich der TNO-Schiffsemissionen mit den Landnutzungsdaten



Die pinken durchgezogenen Linien zeigen die Landnutzungsdaten, die dem Verlauf der Flüsse und Kanäle (links: Donau; Rechts: Main-Donau-Kanal) folgen. Die Punkte repräsentieren die Gitterboxen der TNO-Emissionsdaten, in denen Schiffsemissionen enthalten sind. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

2.4.2 Verteilung anthropogener Emissionen auf Modellvariablen

Im EEM werden die Jahresemissionen von NO_x, SO_x, VOCs und Feinstaub (PM) entsprechend der GNFR-Sektoren unterschiedlich auf die Modellvariablen aufgeteilt. Sowohl für Feinstaub als auch für VOCs gibt es für die Emissionen länderspezifische Aufteilungstabellen. Tabelle 4 zeigt diese anthropogenen Emissionsaufteilungen am Beispiel Deutschlands.

Tabelle 4: Aufteilung der Jahresemissionen von NO_x, SO_x, VOCs und PM auf die einzelnen Modellvariablen für alle GNFR-Sektoren.

Die Verteilwerte sind aus dem CAMS-Projekt (Denier van der Gon et al., 2011) entnommen, an das EURAD-IM angepasst worden und in % angegeben. Für VOC- und PM-Emissionen ist die Verteilung am Beispiel Deutschland (DE) dargestellt, da es für diese Emissionen länderspezifische Aufteilungstabellen gibt. Bei den Aerosolvariablen steht der Zusatz i für Aerosole in der Aitkenmode und j für Aerosole in der Akkumulationsmode.

GNFR-Sektor		A	B	C	D	E	F1	F2	F3	F4	G	H	I	J	K	L
Emissionen	Varianten															
NO _x	NO	95	95	95	95	95	80	80	80	95	95	90	90	95	95	
	NO ₂	5	5	5	5	5	20	20	20	5	5	10	10	5	5	
SO _x	SO ₂	96	96	96	96	96	96	96	96	96	96	96	96	96	96	
	H ₂ SO ₄	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	
VOC (DE)	V01 (Alkohole)	3.801	11.365	11.6286	0.1367	11.9157	0	0	0	0	0	0.2655	0	6.1045	0	6.2658
	V02 (Ethan)	2.0954	5.0463	5.7898	8.5982	0	1.6886	1	2.997	0	1	0.9733	1.2917	5.0641	0	5.0842
	V03 (Propan)	6.214	10.9075	1.9042	7.5511	0	0.7495	1	43.956	1	1	0.1991	2.5073	4.1506	0	4.0808
	V04 (Butan)	12.8811	11.5382	0.9797	29.8425	0	6.2484	2	0	32	2	0	3.0591	7.737	0	7.539
	V05 (Pentan)	21.7485	13.7986	1.7371	29.5308	0	9.1421	2	0	40	2	0.2323	4.1089	6.9428	0	6.7829
	V06 (Hexan und höhere Alkane)	4.6043	17.0922	1.1830	16.2643	26.4854	22.9443	30	0	15	30	5.8179	25.0315	12.6318	0	12.3135
	V07 (Ethen)	3.7426	6.3283	11.4576	0.0071	0	7.0557	12	14.985	0	12	19.2788	9.7368	7.3701	0	7.4776
	V08 (Propen)	1.7707	1.4778	5.1965	0.0048	0	2.8619	3	9.99	0	3	5.6963	3.7186	2.933	0	3.0006
	V09 (Acetylen)	1.4266	0.7394	4.2403	0.0043	0	4.5	4	0	0	4	4.6123	4.0679	2.4148	0	2.4664
	V12 (andere Alkene)	2.458	1.6618	5.748	5.8885	0	5.6733	5	21.978	9.5	5	8.926	6.7235	4.0176	0	4.0691
	V13 (Benzol)	7.6145	2.5096	6.7762	0.6691	0	3.7784	2	0	1	2	2.1458	3.1591	3.6234	0	3.7103
	V14 (Toluol)	4.5103	2.8378	2.9807	0.6633	8.5732	8.3919	1.5	0	1	1.5	0.5752	6.682	3.8259	0	3.8033
	V15 (Xylool)	1.7848	2.0397	0.8858	0.3852	8.5732	6.5846	2	0	0.5	2	0.5309	4.9597	2.4916	0	2.448
	V16 (Trimethylbenzole)	0.0395	0.108	0.0160	0.0098	0	6.137	0	0	0	0	0	1.9501	0.5082	0	0.4943
	V17 (andere Aromaten)	0.9362	0.8527	0.675	0.0299	1.7146	11.0278	20.5	0.0999	0	20.5	2.2674	14.8692	2.2758	0	2.2326
	V18 (Ester)	0.0978	1.2129	0	0	13.0285	0	0	0	0	0	0	0	1.2861	0	1.2509
	V19 (Ester)	1.5694	1.0377	4.7114	0.0019	4.9007	0	0	0	0	0	0	0	2.4224	0	2.493
	V20 (chlorhaltige Hydrogencarbonate)	0.0906	0.2208	0	0	9.201	0	0	0	0	0	0	0	1.1923	0	1.1597
	V21 (Formaldehyd)	11.458	0.6953	2.2448	0.1338	0	1.267	6	3.996	0	6	16.6021	3.7582	1.1715	0	1.1942
	V22 (andere Alkane)	1.9873	1.436	6.3518	0.0355	0	1.2	6.5	1.998	0	6.5	15.8611	3.6444	2.778	0	2.8771
	V23 (Ketone)	0.3429	1.0435	0.9144	0.0333	10.6341	0.7495	1.5	0	0	1.5	2.7099	0.7315	1.5542	0	1.5335
	V24 (Säuren)	8.3257	3.5046	24.4177	0.1635	0	0	0	0	0	0	0	0.0009	10.9806	0	11.3780
	V25 (andere)	0.5005	2.5462	0.1606	0.0461	4.9736	0	0	0	0	0	13.3061	0	6.5236	0	6.3451

GNFR-Sektor		A	B	C	D	E	F1	F2	F3	F4	G	H	I	J	K	L
PM _{coarse} (DE)	EC _{coarse} → ANTHA	8.3106	0.8755	10	55.148	0	20.379	67.1679	25.1196	4.8	44.5	0	42.7596	20	0	0.0556
	OC _{coarse} → ANTHA	0	2.3388	1	5.3039	0	0	0	0	15.7597	0	0	0	0	69.2308	16.4534
	SO _{4-coarse} → ANTHA	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	Na _{coarse} → SEAS	1.5	1.4976	1	0.5	0	1	1	1	1	2	2	2	0	0	0
	Other Min _{coarse} → ANTHA	90.1894	95.2881	88	39.0481	100	78.621	31.8321	73.8804	78.4402	53.5	98	55.2404	80	30.7692	83.491
PM _{fine} (DE)	EC _{fine} → 5% ECi, 95% ECj	9.8861	2.041	7	58.804	0	27.8796	68.035	30	1.1842	44.5	0	45.1547	20.078	0	1.5095
	OC _{fine} → 5% ORGPAi, 95% ORGPAj	24.0576	5.5449	70	16.1519	0	54.5903	23.9738	53	27.846	31	18	31.3995	48.5876	69.2308	17.1982
	SO _{4-fine} → 5% SO4Ai, 95% SO4Aj	0.0187	0	0	0	0.1	1	0.8049	0	5	1	4.5061	0	0	0	0
	Na _{fine} → SEASAJ	1.5	1.4675	1	0.3898	0	1	1	1	1	2	2	2	0	0	0
	Other Min _{fine} → 5% P25Ai, 95% P25Aj	64.5376	90.9466	22	24.6542	100	16.4301	5.9913	15.1951	69.9697	17.5	79	16.9398	31.3344	30.7692	81.2923

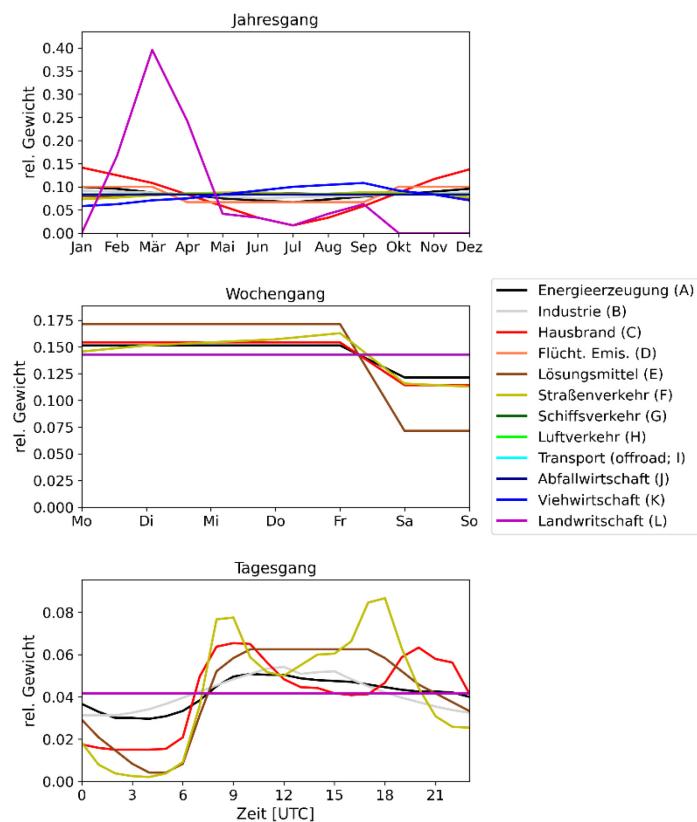
2.4.3 Zeitliche Verteilung anthropogener Emissionen

Die anthropogenen Emissionen werden pro Gitterzelle als Gesamtemissionen für das ganze Jahr geliefert. Diese Gesamtemissionen werden durch Verteilfunktionen für den Jahres-, Wochen- und Tagesgang zeitlich verteilt. Die Verteilfunktionen werden im Rahmen des CAMS-Projekts (Denier van der Gon et al., 2011) von TNO bereitgestellt. Die Verteilfunktionen sind für alle GNFR-Sektoren in Abbildung 8 dargestellt. Deutliche Signale sind für verschiedene GNFR-Sektoren zu erkennen. Diese sind unter anderem

- ▶ Sektor L (Landwirtschaft) im Frühling: Düngzeitraum,
- ▶ Abnahme der Emissionen in den meisten Sektoren am Wochenende,
- ▶ Sektoren F1-F4 (Straßenverkehr): zwei deutliche Signale zu den Hauptverkehrszeiten am Morgen und Nachmittag,
- ▶ geringere Emissionen in den Nachtstunden für die meisten Sektoren.

Es ist zu bemerken, dass die Analyse der Emissionen keinen Einfluss auf den Tagesgang nimmt, da die Korrekturfaktoren für die Emissionen nur die Amplitude ändern, nicht aber den zeitlichen Verlauf. Durch die sequenzielle Durchführung der Analyse für aufeinanderfolgende Tage wird in der Analyse jedoch die Möglichkeit evaluiert, Aussagen über den Jahresgang der Emissionen treffen zu können.

Abbildung 8: Zeitliche Verteilfunktionen für anthropogene Emissionen im EURAD-IM

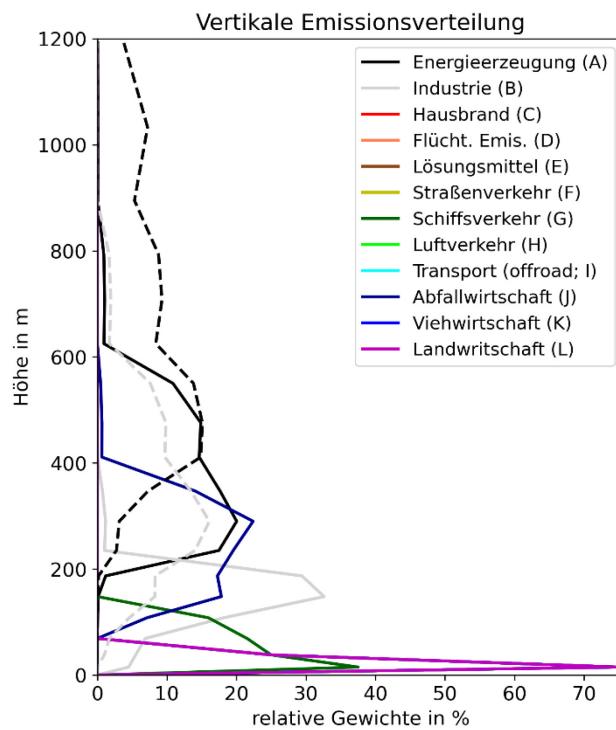


Zeitliche Verteilungsfunktionen für den Jahresgang (oben), Wochengang (Mitte) und Tagesgang (unten) für alle GNFR-Sektoren. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

2.4.4 Vertikale Verteilung anthropogener Emissionen

Die Emissionen werden mittels festen Verteilfunktionen vertikal auf die verschiedenen Modellschichten projiziert. Diese sind dem CAMS-Projekt (Denier van der Gon et al., 2011) entnommen. Die Verteilfunktionen für die verschiedenen GNFR-Sektoren sind in Abbildung 9 dargestellt.

Abbildung 9: Vertikale Verteilfunktionen für anthropogene Emissionen im EURAD-IM



Vertikale Verteilfunktionen für alle Flächenquellen der GNFR-Sektoren. Die Verteilfunktionen sind bereits auf die mittlere Schichthöhe des EURAD-IM projiziert. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die in Abbildung 9 nicht dargestellten GNFR-Sektoren emittieren alle in die unterste Schicht und werden von der Verteilfunktion für Sektor L überdeckt. Lediglich die Emissionen der Sektoren A, B, I und J (siehe auch Tabelle 3) werden in höhere Modellschichten vertikal verteilt.

2.4.5 Biogene Emissionen im EURAD-IM

Neben den anthropogenen Emissionen stellen die biogenen Emissionen eine weitere große Unsicherheit in den Modellsimulationen dar. Die biogenen Emissionen werden innerhalb des EURAD-IM mit dem „Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature“ (MEGAN; Guenther et al., 2012) berechnet. MEGAN berücksichtigt Emissionen aus Pflanzenaktivitäten und natürliche NO_x-Emissionen aus dem Boden. Eine weitere NO_x-Quelle stellt Stickstoff dar, der durch Düngung in den Boden eingebracht und in Form von Stickoxiden teilweise wieder freigesetzt wird. Diese erhöhten NO_x-Emissionen sind in dieser Studie nicht berücksichtigt. Diese Unterschätzung der NO_x-Emissionen wird in Studien mit einem Faktor von 5-7 relativ zu den biogenen NO_x-Emissionen quantifiziert (Visser et al. 2019). Des Weiteren sind NO_x-Emissionen von Gewitteraktivitäten unberücksichtigt, da diese in Europa, vor allem für die Bodenkonzentrationen, von geringer Bedeutung sind (Menut et al. 2020).

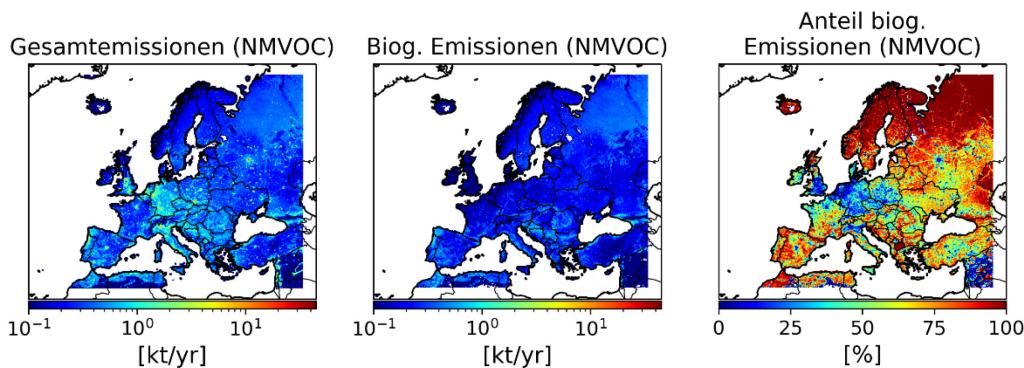
Neben den pflanzlichen Emissionen stellen vor allem die Emissionen aus Waldbränden gerade in Südeuropa eine signifikante Quelle von Aerosol- und Gasemissionen dar. Im EURAD-IM werden diese aus dem GFAS-Produkt Version 1.1 (Kaiser et al., 2012) extrahiert, welches in einer Auflösung 0.1°x0.1° tägliche Feueremissionen liefert.

Für nähere Informationen zu den einzelnen Modulen für biogene Emissionen wird an dieser Stelle auf die Originalreferenzen verwiesen.

2.5 Vergleich anthropogener und biogener Emissionen

Im Rahmen des Vorhabens werden die Emissionen von Spurengasen und Aerosolen analysiert und unter Nutzung von atmosphären-chemischen Beobachtungen korrigiert. An dieser Stelle wird darauf hingewiesen, dass die Beobachtungen keine Unterscheidung zwischen biogenen und anthropogenen Emissionen in der Analyse ermöglichen. Allerdings ist gerade in Zentraleuropa der Anteil biogener Emissionen in der Regel deutlich geringer als der anthropogene Anteil was im Folgenden diskutiert wird.

Abbildung 10: Vergleich biogener und anthropogener VOC-Emissionen für das Jahr 2016

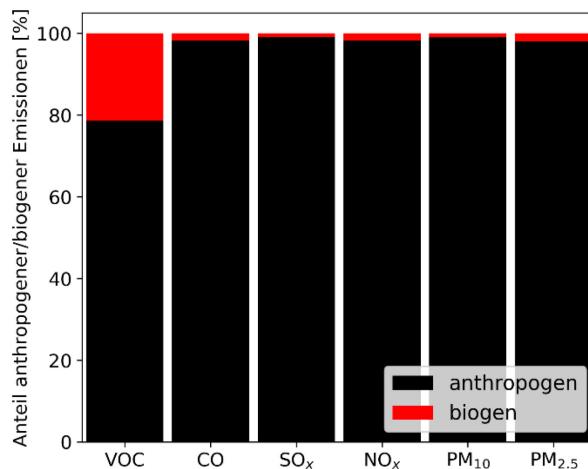


Links: VOC-Gesamtemissionen für 2016; Mitte: biogene VOC-Emissionen für 2016, berechnet mit dem EURAD-IM Emissionsmodul (siehe Kapitel 2.4.1); Rechts: Relativer Anteil biogener VOC-Emissionen an den Gesamtemissionen für 2016. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 10 zeigt das Verhältnis der biogenen VOC-Emissionen zu den Gesamtemissionen. In Zentraleuropa und vor allem in dicht besiedelten Gebieten ist der biogene Anteil der Emissionen mit unter 10 % sehr gering. In weniger dicht besiedelten Gebieten in Süd-, Ost- und Nordeuropa zeigen die biogenen Emissionen einen höheren Anteil von 50 % und mehr. Somit lässt sich ableiten, dass Emissionskorrekturen von VOC-Emissionen außerhalb von Ballungsgebieten auch maßgeblich den biogenen Anteil der Emissionen betrifft und die Aussagen für den anthropogenen Anteil der Emissionen, zumindest in diesen Regionen, mit größeren Unsicherheiten behaftet sind. In Abbildung 92 in Anhang B.1 werden die biogenen Anteile der CO-, SO_x-, und NO_x-Emissionen analog zu Abbildung 10 gezeigt, auf die aber wegen ihrer sehr niedrigen Anteile an den Gesamtemissionen hier nicht weiter eingegangen wird. Ferner wird in Anhang A eine Erweiterung des EURAD-IM vorgestellt, die die Möglichkeit erhöht zwischen Korrekturen des biogenen und anthropogenen Emissionsanteils (aber auch innerhalb des anthropogenen Anteils zwischen den Sektoren) zu unterscheiden.

Aerosolemissionen sind im EURAD-IM hauptsächlich anthropogen verursacht. Das EURAD-IM beinhaltet Emissionsmodule für Seesalz- und Staub-, sowie Waldbrand-Emissionen, allerdings sind diese Hauptquellen außerhalb der Domain (Staub), über dem Meer (Seesalz) oder nur punktuell und zeitlich sehr begrenzt (Waldbrand). Daher werden die biogenen Anteile der Aerosolemissionen nicht näher diskutiert.

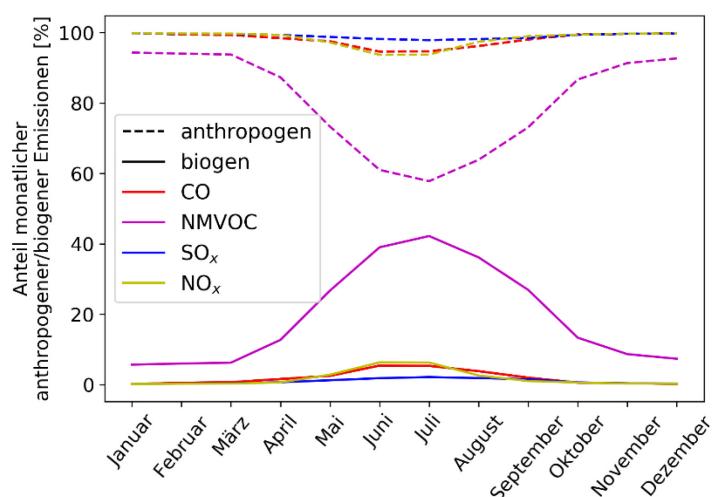
Abbildung 11: Vergleich biogener und anthropogener Gesamtemissionen im Jahr 2016



Vergleich der anthropogenen und biogenen Emissionen innerhalb Deutschlands für das ganze Jahr 2016. Vor allem bei den biogenen Emissionen gibt es eine große zeitliche Variabilität die maßgeblich mit der pflanzlichen Aktivität zusammen hängt. Bei den PM-Emissionen fehlen die Emissionen aus Seesalz und Staub. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

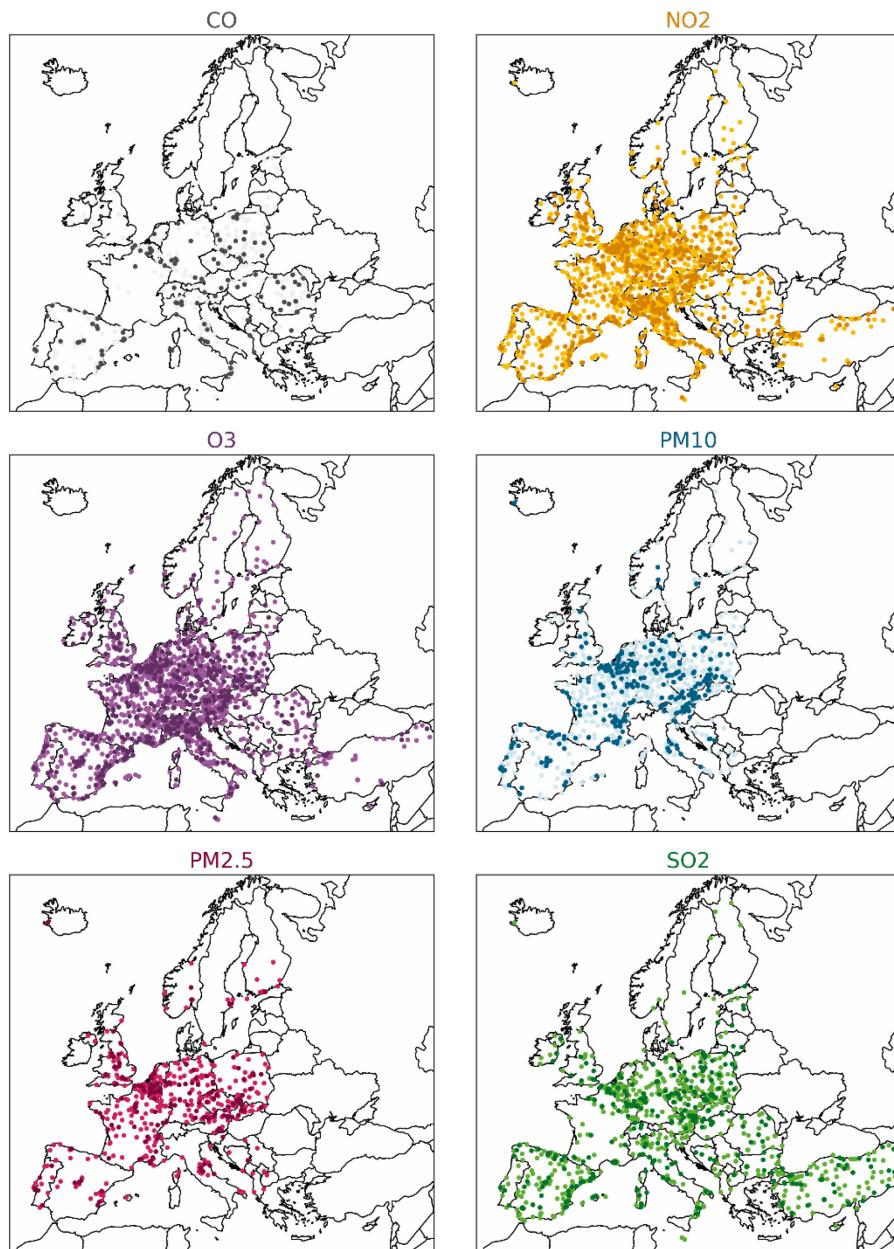
Abbildung 11 zeigt den Anteil an biogenen und anthropogenen Emissionen innerhalb Deutschlands für das Jahr 2016. Vor allem bei den VOC-Emissionen ist der biogene Anteil mit über 20 % relevant. Bei CO-, SO_x- und NO_x- sowie bei Aerosol-Emissionen liegt der biogene Anteil bei wenigen Prozent. Es ist generell darauf hinzuweisen, dass vor allem pflanzliche Emissionen deutliche zeitliche Variabilität zeigen, was vor allem bei den VOC-Emissionen relevant ist. Abbildung 12 zeigt den Jahresgang der Anteile anthropogener und biogener Emissionen. Während die biogenen Emissionen von CO, SO_x und NO_x im Sommer Höchstwerte von unter 10 % erreichen, wächst der biogene Anteil der VOC-Emissionen im August auf bis zu 40 % der Gesamtemissionen an. Daher ist vor allem im Sommer, genauer von Mai bis Oktober, der Anteil biogener Emissionen an den VOC-Emissionen signifikant und bedarf einer weiteren Berücksichtigung bei der Interpretation der Korrekturfaktoren für VOC-Emissionen.

Abbildung 12: Jahresgang der Anteile biogener und anthropogener Emissionen im Jahr 2016



Jahresgang (Monatssummen) der Anteile der anthropogenen und biogenen Emissionen an den Gesamtemissionen in Deutschland. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 13: Europäische Luftqualitäts-Beobachtungsstationen



Lage der europäischen Beobachtungsstationen für O_3 -, NO_2 -, PM_{10} -, $PM_{2.5}$ -, CO- und SO_2 -Konzentrationen (hellere Kreise beschreiben Stationen, deren Daten in CAMS-50 assimiliert werden, dunklere Kreise visualisieren die Stationen, deren Daten zur Validierung der Analysen zurückgehalten werden). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

2.6 Beobachtungsdaten

Für die Analyse des Referenzjahres 2016 und die Inversion zur Bestimmung der Emissionskorrekturfaktoren werden unterschiedlichste Beobachtungsdatensätze herangezogen. Dabei bilden die bedeutendsten Datenquellen für Deutschland die operationellen Messungen der Landesumweltämter, die vom UBA zentral bereitgestellt werden, und für Europa die validierten CAMS-50-in-situ-Beobachtungsdatensätze. Der Fokus liegt dabei auf den Messungen von O_3 -, NO_2 -, PM_{10} -, $PM_{2.5}$ -, CO- und SO_2 -Konzentrationen. Die Beobachtungsdaten beinhalten validierte stündliche Messwerte. Abbildung 13 zeigt die Verteilung der Beobachtungsstationen in Europa für die unterschiedlichen Konzentrationsmessungen. Es wird deutlich, dass Zentraleuropa eine gute Beobachtungsabdeckung aufweist, während besonders in Nord- und Osteuropa deutlich

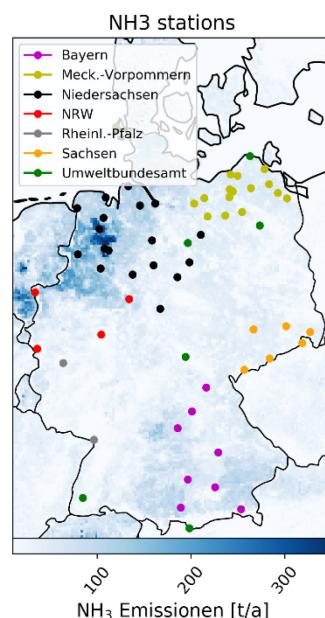
weniger Messstationen vorhanden sind. Die Beobachtungsdaten sind in zwei Datensätze aufgeteilt, wobei der eine Datensatz zur Assimilation genutzt wird und der andere Datensatz als unabhängige Beobachtungen zur Validierung genutzt wird. Die Unterteilung wurde analog zur Einteilung für die CAMS-Re-Analyse für das Jahr 2016 durchgeführt.

Zusätzliche Profilmessungen von O₃ und CO liefern die Flugzeugbeobachtungen von IAGOS (In-Service Aircraft for a Global Observing System), die bei Start und Landung aufgezeichnet werden. Im Jahr 2016 wurden an fünf europäischen Flughäfen insgesamt 736 Profile aufgezeichnet, wobei am Flughafen Frankfurt mit Abstand die meisten Profilmessungen stattfanden (578 Profile).

Zu den bereits erwähnten in-situ-Beobachtungen wurden verschiedene Fernerkundungsdaten für die Assimilation genutzt. Diese verwenden das elektromagnetische Spektrum, um Informationen über die Atmosphärenzusammensetzung zu erlangen und beschreiben zumeist Flächen-, Säulen- oder Profilbeobachtungen. Im Gegensatz dazu geben die in-situ-Messungen meistens Punktbeobachtungen wieder. Im Vorhaben werden ausschließlich NO₂-Säulenprofile von OMI und GOME-2 sowie CO-Säulen von IASI assimiliert.

Für die Validierung der NH₃-Konzentrationen in der Analyse werden in-situ Beobachtungen von NH₃-Wochen- bzw. Monatsmittelwerten genutzt, die in Deutschland eine gute Abdeckung haben. Die Stationen der NH₃-Beobachtungen sind in Abbildung 14 mit der Verteilung der NH₃-Emissionen dargestellt.

Abbildung 14: Verteilung der NH₃-Beobachtungen



Übersicht der NH₃-Beobachtungsstationen mit Wochen- oder Monatsmittels (aus Passivsammlern), die zur Evaluierung der simulierten NH₃-Konzentrationen genutzt werden. Zum Vergleich gibt die Farbskala die Verteilung der jährlichen NH₃-Emissionen an, wie sie für das u05-Gitter genutzt werden. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die Tabelle 5 fasst die für die Assimilation und Validierung genutzten Beobachtungsdaten zusammen. Von der Verwendung von O₃-Satellitenbeobachtungen wird in diesem Projekt abgesehen, da durch die dominierenden Ozonkonzentrationen in der Stratosphäre die Satellitensensitivität für die Troposphäre nicht mehr ausreichend gegeben ist.

Tabelle 5: Beobachtungsdaten, die im Vorhaben genutzt werden

Instrument	Produkt	Beobachtung	Nutzung
GOME-2	KNMI-NO ₂	NO ₂ -Säulen	Assimilation
OMI	KNMI-NO ₂	NO ₂ -Säulen	Assimilation
IASI	FORLI	CO-Säulen	Assimilation
IAGOS	IAGOS-CORE	CO, O ₃	Assimilation
UBA / EEA	In-situ	NO ₂ , O ₃ , CO, SO ₂ , PM ₁₀ , PM _{2,5}	Assimilation, Validierung
UBA	In-situ	NH ₃	Validierung

Damit die Beobachtungen mit dem EURAD-IM verarbeitet werden können, müssen die Beobachtungsdaten mit einem Präprozessor (kurz: PREP) umformatiert werden. Während die Beobachtungen meist von heterogenen Quellen in unterschiedlichsten Dateitypen und Formatierungen bereitgestellt werden, konvertiert PREP die Daten in je eine speziell formatierte und standardisierte Datei für jedes Assimilationsfenster der Analyse. Dabei werden zudem Datenmengen reduziert, unter anderem durch Auswahl der Beobachtungen, die tatsächlich im gewählten Modellgitter liegen, und durch eine gewisse Qualitätssicherung der Daten.

Für den Vergleich der Beobachtungen mit dem Modellzustand wird der sogenannte Beobachtungsoperator H (siehe Gleichung(2)) benötigt, der den Modellzustand aus dem Modellraum in den Beobachtungsraum abbildet. Dieser Beobachtungsoperator H muss für jede Messgröße individuell in das Modell implementiert werden. Es wird dabei grundsätzlich zwischen bodengebundenen Beobachtungen, Flugzeugbeobachtungen, Satelliten-Säulenmessungen und Satelliten-Profildaten unterschieden. Beobachtungsoperatoren interpolieren einerseits im Falle von direkten Beobachtungen (z. B. Konzentrationsmessungen) die Information des Modellzustands vom Modellgitter zur Stelle der Beobachtung, andererseits können Beobachtungsoperatoren zusätzlich komplexe Transformationen der Modellvariablen leisten – beispielsweise bei satellitengestützten Strahlungsbeobachtungen. Hierbei müssen die Modellvariablen (zum Beispiel die Schadstoffkonzentration) in die Einheit der Beobachtungen (zum Beispiel Strahlungstemperatur) transformiert werden, damit beide Größen miteinander vergleichbar sind.

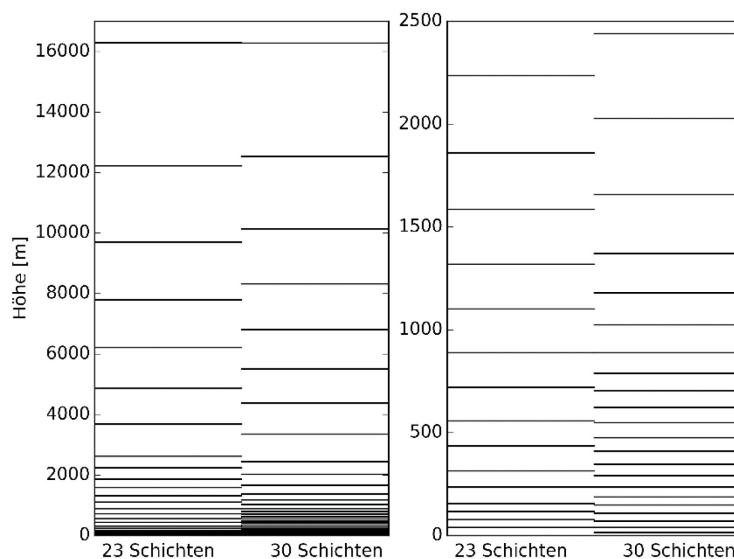
3 Durchführung der Analyse der Jahresemissionen

3.1 Beschreibung der Modellgebiete

Für die Analyse im Projektvorhaben sollen die Emissionskorrekturfaktoren auf unterschiedlichen Modellgittern und damit einhergehend unterschiedlichen horizontalen Auflösungen abgeleitet werden. Für die regionalen Simulationen mit dem EURAD-IM werden globale Randwerte in sehr grober horizontaler Auflösung verwendet. Um detaillierte, fein aufgelöste Informationen über Emissionskorrekturen ableiten zu können, wird daher das Nesting-Verfahren verwendet. Das bedeutet, dass zunächst ein Modellgebiet für ganz Europa mit 15 km x 15 km horizontaler Auflösung unter Verwendung der globalen Randwerte genutzt wird. Aus diesen Simulationen werden dann Randwerte für ein feineres zentraleuropäisches Modellgebiet extrahiert, so dass dort Simulationen mit 5 km x 5 km horizontaler Auflösung möglich sind. Der Fokus des Vorhabens liegt auf der Optimierung des deutschen Emissionsinventars. Dementsprechend liegt Deutschland ungefähr im Zentrum der beiden Modellgitter. Das gesamteuropäische, grob aufgelöste Modellgebiet bekommt in allen Simulationen und Auswertungen die Kennung „u15“, während das zentraleuropäische Gitter mit 5-km Auflösung mit „u05“ bezeichnet wird.

Um auch über die vertikale Verteilung der Luftschatdstoffe möglichst detaillierte Informationen zu erhalten, wurde beschlossen, die vertikale Auflösung des Modells von 23 auf 30 Schichten auszuweiten. Hierbei wurde insbesondere darauf Wert gelegt, die vertikale Auflösung innerhalb der Grenzschicht zu verfeinern. Abbildung 15 zeigt den Vergleich der vertikalen Auflösung des EURAD-IM mit 23 und 30 Schichten. Zusätzlich sind in Tabelle 6 die entsprechenden σ -Level, welche die vertikale Auflösung definieren, sowie die jeweiligen Höhen der Modellschichten zusammengefasst. Alle Höheninformationen resultieren hier aus einem Mittel über einen Tag und über das gesamte u05-Modellgitter.

Abbildung 15: Vergleich der vertikalen Auflösung des EURAD-IM mit 23 und 30 Schichten



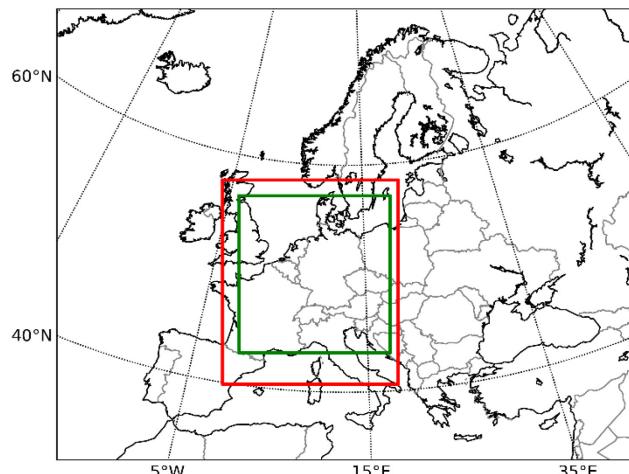
Vergleich der vertikalen Auflösung des EURAD-IM mit 23 und 30 Schichten für die gesamte vertikale Ausdehnung des Modells (links) und unterhalb einer Höhe von 2,5 km (rechts). Gezeigt ist jeweils der Mittelwert über das 5 km-Modellgitter (u05) für einen Tag. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Tabelle 6: Vergleich der σ -Level und Schichtgrenzen für das EURAD-IM mit geringer und hoher vertikaler Auflösung.

Level	23 Schichten		30 Schichten	
	σ - Wert	Obere Schichtgrenze	σ - Wert	Obere Schichtgrenze
1	0,995	39 m	0,998	15 m
2	0,99	78 m	0,995	39 m
3	0,985	117 m	0,991	70 m
4	0,98	156 m	0,986	109 m
5	0,97	235 m	0,981	148 m
6	0,96	315 m	0,976	188 m
7	0,945	435 m	0,97	235 m
8	0,93	557 m	0,963	291 m
9	0,91	722 m	0,956	347 m
10	0,89	889 m	0,948	411 m
11	0,865	1.102 m	0,94	476 m
12	0,84	1.319 m	0,931	549 m
13	0,81	1.586 m	0,922	623 m
14	0,78	1.859 m	0,912	705 m
15	0,74	2.236 m	0,902	788 m
16	0,70	2.628 m	0,89	889 m
17	0,60	3.682 m	0,874	1.025 m
18	0,50	4.865 m	0,856	1.179 m
19	0,40	6.215 m	0,834	1.372 m
20	0,30	7.790 m	0,802	1.658 m
21	0,20	9.698 m	0,762	2.027 m
22	0,10	12.225 m	0,719	2.440 m
23	0,0	16.284 m	0,63	3.354 m
24			0,54	4.374 m
25			0,45	5.516 m
26			0,36	6.815 m
27			0,27	8.322 m
28			0,18	10.140 m
29			0,09	12.531 m
30			0,00	16.281 m

Durch die erhöhte vertikale Auflösung ist der Rechenbedarf des Modells deutlich gestiegen. Daher wurde das sehr rechenintensive 5 km-Modellgitter etwas verkleinert, sodass der Rechenaufwand dem originalen 5 km-Modellgitter mit 23 Modellschichten entspricht. Die Modelldomain des alten und neuen 5 km-Gitters sind in Abbildung 16 zu sehen.

Abbildung 16: Vergleich der 5 km-Modellgitter



Vergleich des alten 5 km Modellgitters mit 23 vertikalen Schichten (rot) und des neuen 30-schichtigen 5 km Modellgitters (grün). Der gesamte Kartenausschnitt entspricht dem 15 km-Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Neben den Ganzjahresanalysen auf 15 km und 5 km horizontaler Auflösung wurden auf drei hochauflösenden Modellgebieten mit 1 km x 1 km horizontaler Auflösung jeweils eine Episode gerechnet. Mehr Details zur Position sowie zur Analyseperiode der hochauflösten Modellgebiete sind in Abschnitt 3.3 ausgeführt.

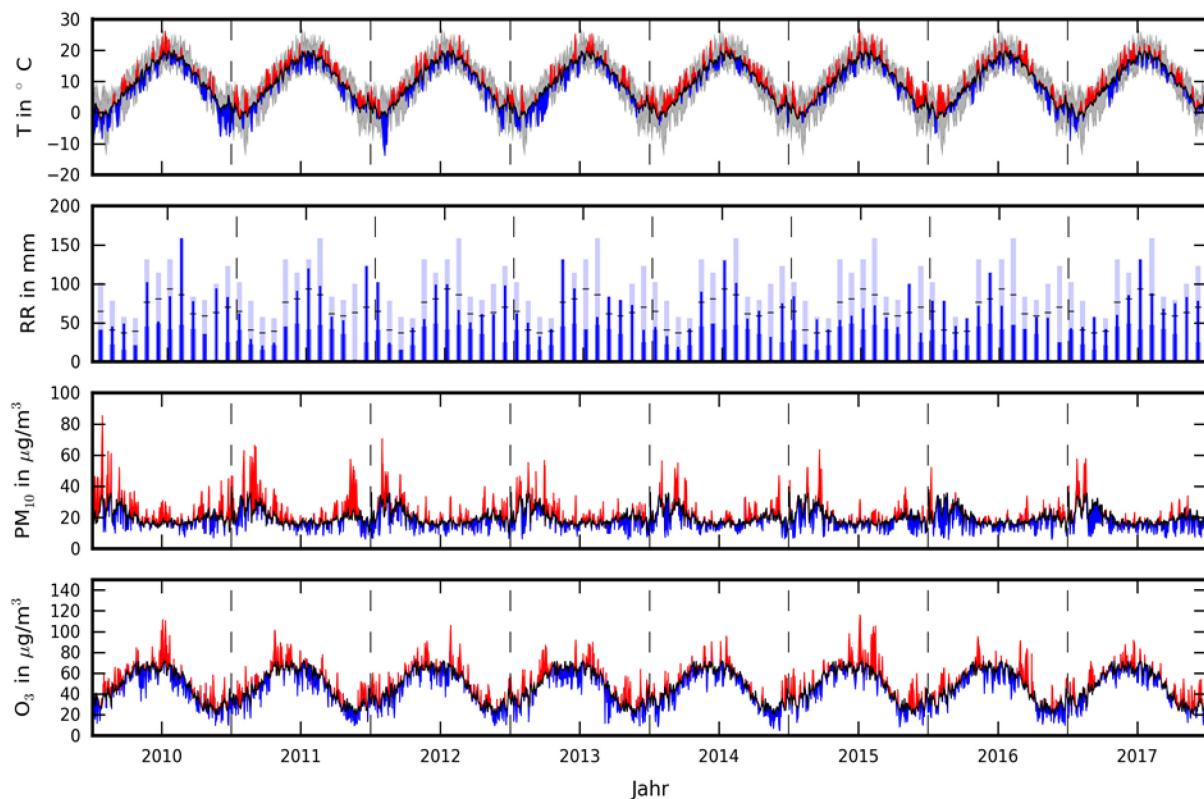
3.2 Auswahl des Referenzjahres

Das Ziel des Forschungsvorhabens, jährliche, nationale Emissionsdaten zu bewerten und mögliche Abweichungen bzgl. ihrer Verursachergruppe zu analysieren, sollte mit Modellanalysen eines Referenzjahres auf unterschiedlichen Modellgebieten erfolgen. Um diese Bewertung möglichst unbeeinflusst durch Sonderereignisse durchführen zu können, wurden folgende Kriterien für die Auswahl des Referenzjahres berücksichtigt:

- ▶ geringe Temperatur- und Niederschlagsanomalien,
- ▶ Verfügbarkeit von Zusatzdaten zur Verifikation (z. B. Messkampagnendaten),
- ▶ kein Auftreten von besonders langen und stark ausgeprägten Ozon- und Feinstaubepisoden,
- ▶ geringer Einfluss von ausgeprägten Sonderereignissen wie Ferntransporte von Emissionen in Folge von Waldbränden, Saharastaub oder vulkanischer Aktivität.

Damit die Ergebnisse des Forschungsvorhabens für zukünftige Jahre ihre Relevanz behalten, wurde die Suche nach einem Referenzjahr auf den Zeitraum 2010-2017 beschränkt. Folgende Quellen bzw. Daten wurden bei der Auswahl des Referenzjahres berücksichtigt:

Abbildung 17: Temperatur-, Niederschlag-, Ozon- und Feinstaubzeitreihen für Deutschland von 2010-2017 zur Ermittlung des Analysejahres



Tagesmitteltemperatur (oben), Monatsniederschlag (zweite Teilabbildung von oben), Tagesmittel der PM_{10} - (dritte Teilabbildung von oben) und O_3 - (unten) Konzentration für den Zeitraum 2010-2017, gemittelt über alle Bodenmessstationen des Deutschen Wetterdienstes bzw. des Umweltbundesamtes und der Landesumweltämter. Die schwarze Linie beschreibt die Tages- bzw. Monatswerte gemittelt über alle Jahre. Für die Temperatur zeigt der grau-schattierte Bereich die Spanne zwischen dem täglichen Minimum und Maximum der Tagesmitteltemperatur. Für den Niederschlag markiert der hellblaue Bereich die Spanne zwischen dem Minimum und Maximum des Monatsmittelwertes im Zeitraum 2010-2017. In den Zeitreihen der Tagesmitteltemperatur und der Tagesmittel der O_3 - und PM_{10} -Konzentration bedeuten rote (blaue) Flächen positive (negative) Abweichungen gegenüber dem Mittel des Zeitraums 2010-2017. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

- ▶ Luftqualitätsberichte des Umweltbundesamtes²,
- ▶ „Near-real-time“ O_3 -und PM_{10} -Messwerte des Umweltbundesamtes und der Landesumweltämter (Daten aus der operationellen Vorhersage verfügbar),
- ▶ Temperatur- und Niederschlagmessungen des Deutschen Wetterdienstes (DWD)³,
- ▶ Monatsberichte des DWD für Deutschland⁴,
- ▶ Klimakarten des DWD für Deutschland⁵,

² <https://www.umweltbundesamt.de/themen/luft/daten-karten/beurteilung-der-luftqualitaet>

³ ftp://ftp-cdc.dwd.de/pub/CDC/observations_germany/climate/hourly/ (aktuell: https://opendata.dwd.de/climate_environment/CDC/observations_germany/climate/hourly/)

⁴

https://www.dwd.de/DE/leistungen/klimakartendeutschland/klimakartendeutschland_monatsbericht.html

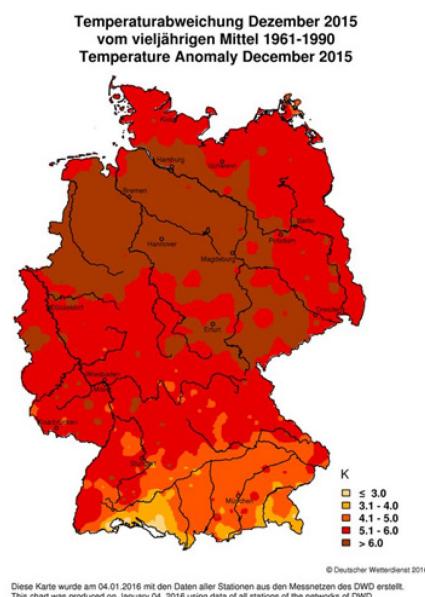
⁵ <https://www.dwd.de/DE/leistungen/klimakartendeutschland/klimakartendeutschland.html?nn=16102>

- Besondere Meteorologische Ereignisse, Berichte des DWD⁶,
- Statistiken bzgl. Waldbränden⁷,
- Bericht über Saharastaub des DWD⁸.

Abbildung 17 zeigt die Tagesmitteltemperatur, den akkumulierten Monatsniederschlag, sowie die Tagesmittel der O₃- und PM₁₀-Konzentration für die Jahre 2010-2017. Die Werte wurden aus den stündlichen Messungen des DWD bzw. des Umweltbundesamtes und der Landesumweltämter berechnet. Die Mittelwerte wurden wiederum über alle acht Jahre gemittelt, sodass die Abweichungen vom Durchschnitt in den einzelnen Jahren sichtbar werden. Des Weiteren ist für die Tagesmitteltemperatur und den Monatsniederschlag das Minimum und Maximum des Zeitraums 2010-2017 dargestellt. Die Messwerte des DWD umfassen alle Stationen aus dem haupt- und nebenamtlichen Messnetz, automatische Stationen sowie ehrenamtliche Messungen des Niederschlags, unabhängig von ihrer geographischen Lage. Die Messdaten der Landesumweltämter und des Umweltbundesamtes umfassen ebenfalls alle Stationen unabhängig von ihrer räumlichen Verteilung (d.h. keine Unterscheidung zwischen den Stationskategorien städtisch, verkehrsnah und ländlich).

Die Analyse der vorhandenen Daten und Berichte führte zu dem Schluss, dass im Zeitraum 2010-2017 kein perfektes Jahr für die Analyse der Emissionen liegt. Viel mehr gibt es besser und schlechter geeignete Jahre als Referenzjahr. Je nach Gewichtung einzelner Ereignisse können hierbei unterschiedliche Schlussfolgerungen für die Wahl des Referenzjahres abgeleitet werden.

Abbildung 18: Temperaturanomalie im Dezember 2015



Temperaturanomalie im Dezember 2015 im Vergleich zum Referenzzeitraum 1961-1990. Quelle: Klimakarten des DWD⁵.

Zu den am wenigsten geeigneten Jahren für die Analyse der nationalen Emissionen gehören die Jahre 2014 und 2015, die mit einer Durchschnittstemperatur von 10,3 °C (+1,4 °C im Vergleich zum Zeitraum 1981-2010) bzw. 9,9 °C (+1,0 °C im Vergleich zum Zeitraum 1981-2010) die

⁶ <https://www.dwd.de/DE/leistungen/besondereereignisse/besondereereignisse.html>

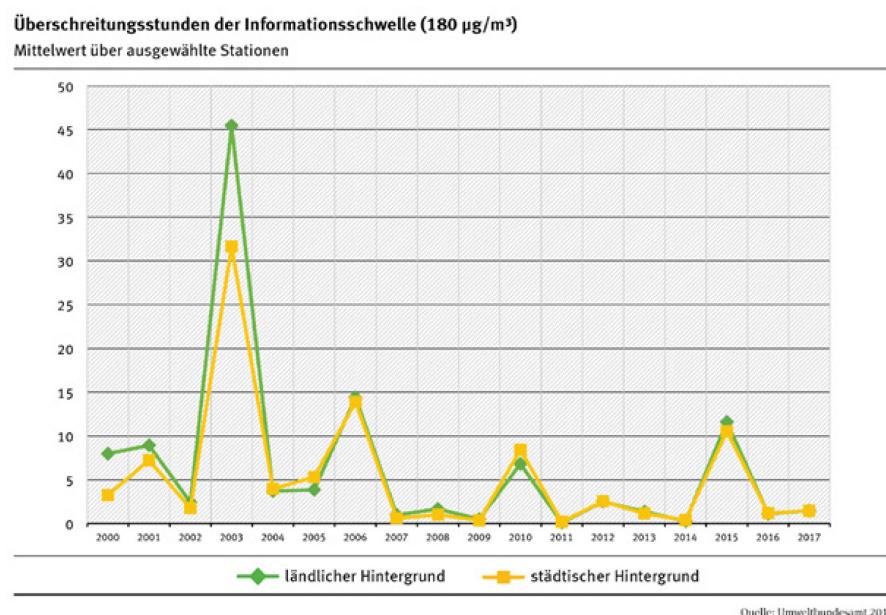
⁷ <https://de.statista.com/themen/4332/waldbraende-und-buschfeuer/>

⁸

https://www.dwd.de/DE/forschung/atmosphaerenbeob/zusammensetzung_atmosphaere/aerosol/inh_nav/saharastaub_node.html

beiden wärmsten Jahre in Deutschland seit Beginn der Wetteraufzeichnung markierten. Des Weiteren ist der Sommer des Jahres 2015 der drittwärmste jemals in Deutschland gemessene Sommer gewesen. Auch das Jahresende 2015 war durch eine deutlich positive Temperaturanomalie gekennzeichnet, was in Abbildung 18 für die Temperaturanomalie im Dezember 2015 gezeigt wird. Der sehr warme Sommer führte im Jahr 2015 auch zu einer deutlich erhöhten Anzahl an Überschreitungsstunden der O₃-Informationsschwelle von 180 µg/m³ (siehe Abbildung 19).

Abbildung 19: Überschreitungsstunden der O₃-Informationsschwelle von 2000-2017



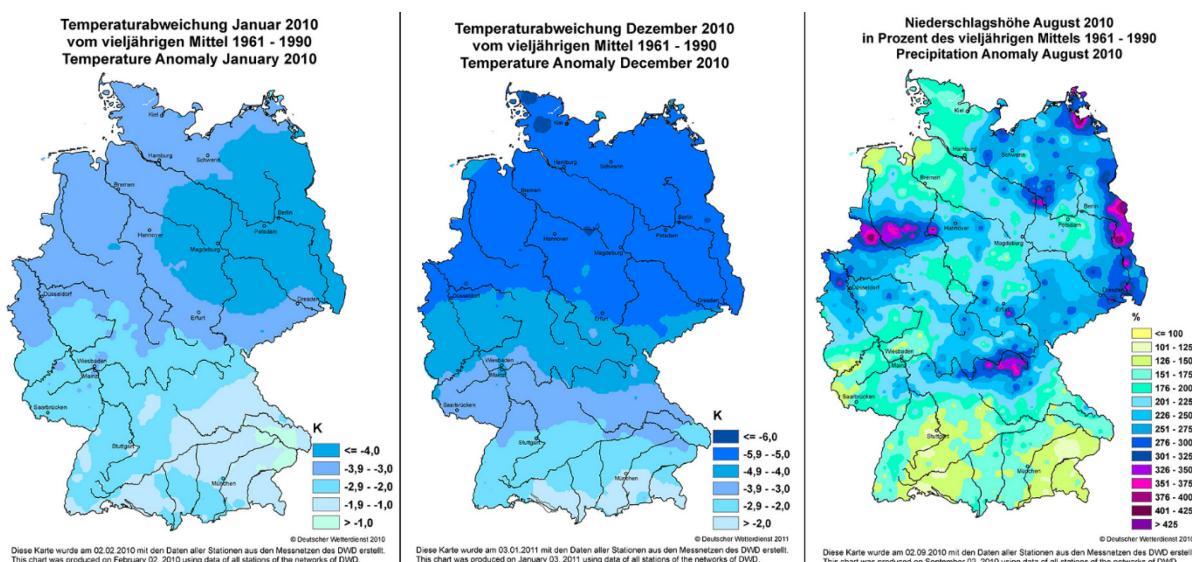
Jährlich gemittelte Überschreitungsstunden der O₃-Informationsschwelle als Mittel über ausgewählte ländliche und städtische Stationen in Deutschland für den Zeitraum von 2000 bis 2017. Quelle: Umweltbundesamt 2018.

Für das Jahr 2014 fiel der Sommer im Vergleich zum Jahr 2015 eher durchschnittlich aus, was zu einem Ausbleiben einer O₃-Episode führte. Dies ist auch ersichtlich an der sehr geringen Zahl der Überschreitungsstunden der O₃-Informationsschwelle (Abbildung 19). Des Weiteren lag im Jahr 2014 keine PM₁₀-Episode vor, da die hierfür günstige Witterung (kaltes Hochdruckwetter im Winter mit geringen Windgeschwindigkeiten) ausblieb.

In den Jahren 2010 und 2011 brachen zwei Vulkane auf Island aus (Eyjafjallajökull im April/Mai 2010 und Grímsvötn im Mai 2011), deren Einfluss auf die Feinstaubkonzentrationen in Deutschland ungewiss ist. Nachweislich lag die Vulkanaschewolke zeitweise aber über Deutschland, sodass für die Assimilation benutzte Beobachtungsdaten hierdurch beeinflusst wurden. Insofern eignen sich beide Jahre weniger als Referenzjahr für die Analyse der nationalen Emissionen. Im Jahr 2010 kommen stark negative Temperaturanomalien am Jahresanfang und -ende sowie ein regional sehr nasser August hinzu (Abbildung 20).

Aus Abbildung 17 wird ersichtlich, dass der Sommer 2011 im Vergleich zum Gesamtzeitraum 2010-2017 zu kalt war und somit O₃-Episoden ausblieben (siehe auch Abbildung 19 für die Anzahl der Überschreitungsstunden der O₃-Informationsschwelle). Des Weiteren erkennt man in Abbildung 17, dass das Frühjahr 2011 deutlich zu trocken war.

Abbildung 20: Temperaturanomalien und Niederschlagskarte für ausgewählte Monate 2010

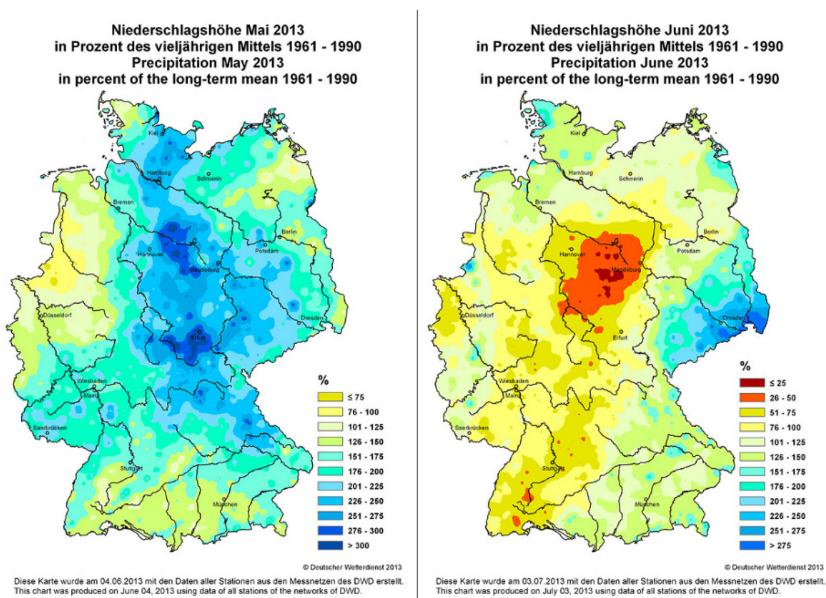


Temperaturanomalie für Januar (links) und Dezember (Mitte) 2010 sowie Niederschlagsanomalie für August 2010 (rechts) in Deutschland bezogen auf den Referenzzeitraum 1961-1990. Quelle: Klimakarten des DWD⁵.

Ebenso als eher ungeeignet für die Analyse der nationalen Emissionen wurde das Jahr 2013 beurteilt, als starke Niederschläge für das Elbehochwasser im Mai und Juni sorgten (Abbildung 21). Für die Referenzjahranalyse sprechen gewisse positive Eigenschaften des Jahres 2013, die unter anderem eine durchschnittliche Jahresmitteltemperatur ($8,7^{\circ}\text{C}$, $-0,2^{\circ}\text{C}$ im Vergleich zum Zeitraum 1981-2010), kurze O₃- und PM₁₀-Episoden sowie das Vorliegen von Zeppelinmessungen innerhalb der Grenzschicht aus der PEGASOS-Messkampagne umfassen.

Das Jahr 2017 ist bzgl. PM₁₀-Konzentrationen als Referenzjahr eher ungeeignet. Abbildung 17 ist zu entnehmen, dass zum Jahresbeginn zwei ausgeprägte Episoden mit regional sehr hohen PM₁₀-Konzentrationen auftraten. Im weiteren Verlauf des Jahres wurden allerdings fast durchgehend unterdurchschnittliche PM₁₀-Konzentrationen gemessen. Das Jahr 2017 war überdurchschnittlich warm ($9,6^{\circ}\text{C}$, $+0,7^{\circ}\text{C}$ im Vergleich zum Zeitraum 1981-2010), wenn auch nicht in dem Maße wie 2014 und 2015. Allerdings weist der Sommer 2017 sowohl bei der Temperatur- als auch bei der Niederschlagsanomalie ein deutliches Nord-Süd-Gefälle auf (Abbildung 22).

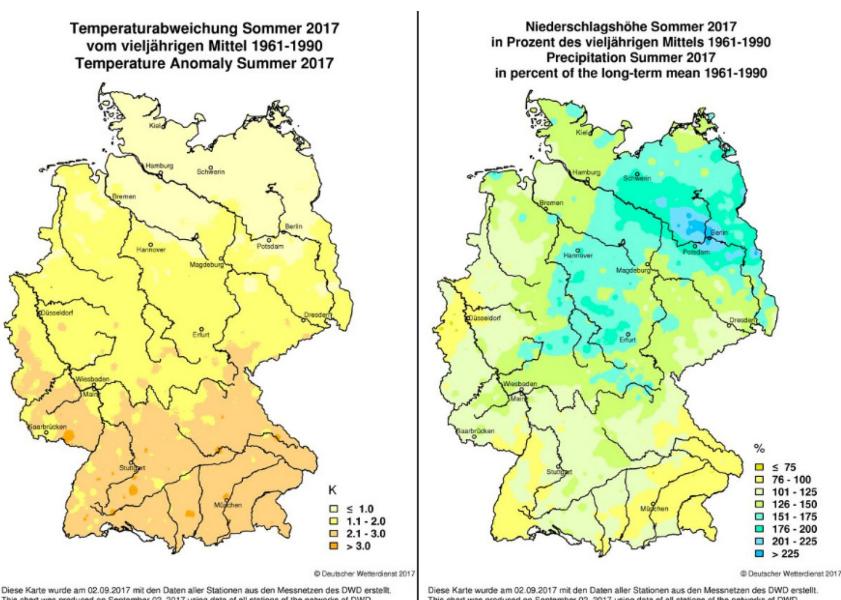
Abbildung 21: Niederschlagsanomalien in Deutschland im Mai und Juni 2013



Niederschlagsanomalie für Mai (links) und Juni (rechts) 2013 in Deutschland bezogen auf den Referenzzeitraum 1961-1990.
Quelle: Klimakarten des DWD⁵.

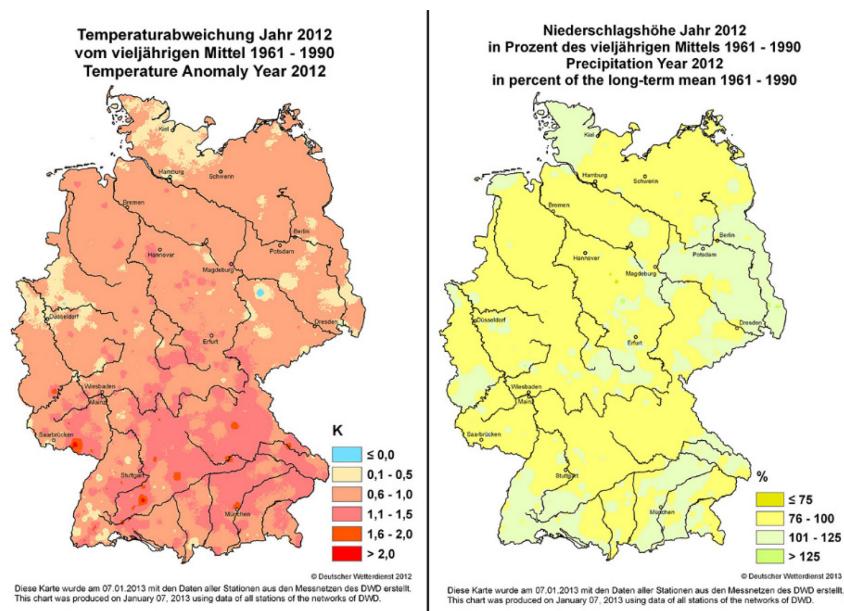
Die beiden am besten geeigneten Jahre für die Analyse der nationalen Emissionen sind die Jahre 2012 und 2016. Das Jahr 2012 eignet sich durch das Vorliegen von Zeppelinmessungen innerhalb der Grenzschicht aus der PEGASOS-Messkampagne, eine durchschnittliche Jahresmittel-temperatur (9,1°C, +0,2°C im Vergleich zum Zeitraum 1981-2010), das Vorliegen kurzer O₃-und PM₁₀-Episoden sowie einer räumlich eher gleichmäßigen Temperatur- und Niederschlags-verteilung (Abbildung 23).

Abbildung 22: Temperatur- und Niederschlagsanomalien in Deutschland für Sommer 2017



Temperaturanomalie (links) und Niederschlagsanomalie (rechts) in Deutschland für Sommer 2017 bezogen auf den Referenzzeitraum 1961-1990. Quelle: Klimakarten des DWD⁵.

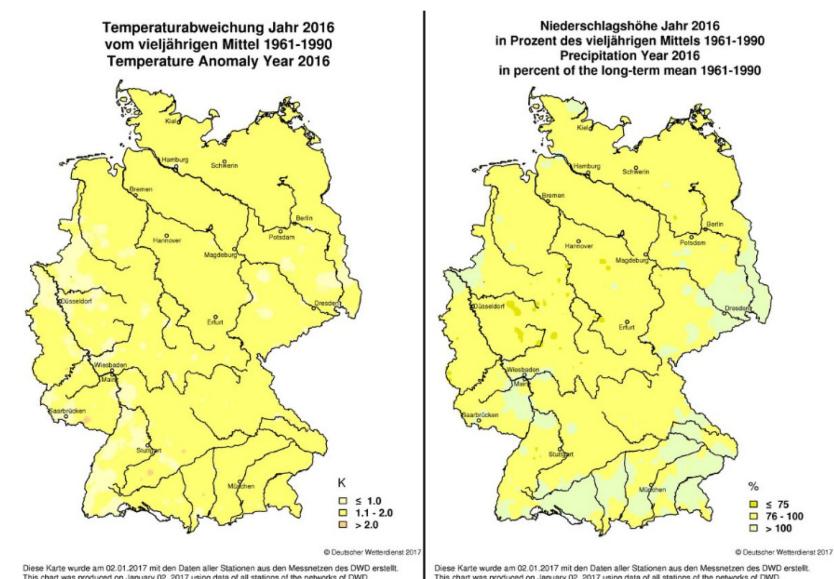
Abbildung 23: Temperatur- und Niederschlagsanomalien in Deutschland für 2012



Temperaturanomalie (links) und Niederschlagsanomalie (rechts) in Deutschland für das Jahr 2012 bezogen auf den Referenzzeitraum 1961-1990. Quelle: Klimakarten des DWD⁵.

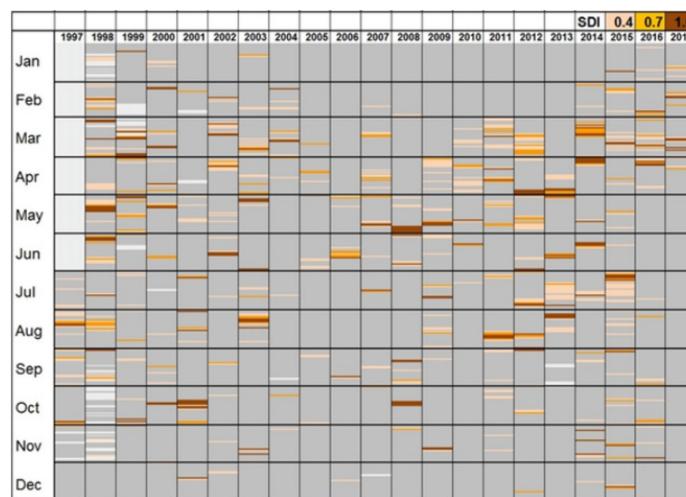
Das Jahr 2016 eignet sich durch eine zeitlich und räumlich homogene Verteilung der Temperatur- und Niederschlagsanomalien (vgl. Abbildung 24). Das Jahr war zwar im Mittel zu warm (9,5°C, +0,6°C im Vergleich zum Zeitraum 1981-2010) und auch zu trocken, allerdings sind diese Abweichungen nicht so extrem wie zum Beispiel die Anomalien der Jahresmitteltemperatur der Jahre 2014 und 2015. Vor allem die moderate positive Temperaturabweichung im Vergleich zum Mittelwert liegt im Trend der letzten zwei Jahrzehnte, in denen die überwiegende Anzahl der Jahre zu den wärmsten jemals gemessenen Jahren zählt. Im Jahr 2016 gab es sowohl eine kurze PM₁₀- als auch eine O₃-Episode, auch wenn die mittlere PM₁₀-Konzentration eher gering ausfiel im Vergleich zum Mittel über alle Jahre (vgl. Abbildung 17). Des Weiteren liegen ab Oktober 2016 Messkampagnendaten (PM-OST, Umweltbundesamt) vor, die zu Validierungszwecken genutzt werden könnten.

Abbildung 24: Temperatur- und Niederschlagsanomalien in Deutschland für 2016



Temperaturanomalie (links) und Niederschlagsanomalie (rechts) in Deutschland für das Jahr 2016 bezogen auf den Referenzzeitraum 1961-1990. Quelle: Klimakarten des DWD⁵.

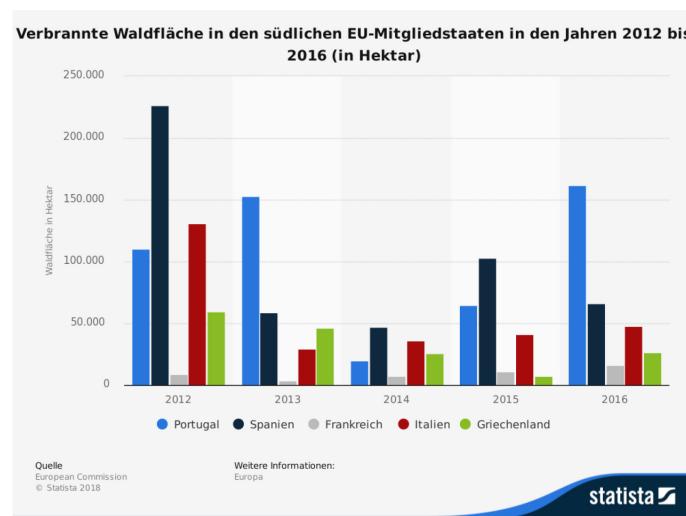
Abbildung 25: Saharastaubtage an der Messstation Hohenpeißenberg



Saharastaubtage an der Messstation Hohenpeißenberg mit Saharastaubindex-Werten (SDI) von über 0.4, 0.7 und 1.0 für den Zeitraum Juli 1997 bis Dezember 2017. Tage ohne Daten sind weiß. Quelle: Deutscher Wetterdienst (DWD)⁸.

Abbildung 26 zeigt die Saharastaubtage für die Jahre 1997-2017, die an der Station Hohenpeißenberg gemessen wurden und einen Saharastaubindex von über 0.4, 0.7 und 1.0 hatten. Der Saharastaubindex (SDI) berücksichtigt unter anderem das Vorhandensein, die Konzentration und Eindeutigkeit von Saharastaub in der Atmosphäre. Ein Wert $SDI > 0.4$ wird hierbei als Indiz für Saharastaub gewertet. Für 2016 wurde Saharastaub vor allem zu Jahresbeginn in Hohenpeißenberg gemessen. 2016 weist dabei jedoch geringere SDI-Werte auf als das Jahr 2012.

Abbildung 26: Verbrannte Waldfläche in südlichen EU-Staaten von 2012-2016



Verbrannte Waldfläche in Portugal, Spanien, Frankreich, Italien und Griechenland in den Jahren 2012 bis 2016 in Hektar. Quelle: Europäische Kommission, Statista 2018.

Beim Vergleich der verbrannten Waldfläche in den südeuropäischen Ländern für die Jahre 2012 und 2016 (Abbildung 26) zeigt sich eine leicht geringere Waldbrandaktivität im Jahr 2016. Vor allem in Spanien gab es 2016 deutlich weniger Waldbrände als 2012. In Portugal hingegen war

die bei Waldbränden verbrannte Fläche 2016 größer als 2012, allerdings nicht im gleichen Umfang wie in Spanien eine Abnahme gemessen wurde.

Aus den oben beschriebenen Ergebnissen sowie der Aktualität der Emissionen wurde gemeinsam mit dem Umweltbundesamt das Jahr 2016 als Referenzjahr für die Analyse der nationalen Emissionen gewählt.

3.3 Auswahl hochauflösten Modellgebiete und Analyseperioden

Neben den Ganzjahresanalysen auf dem u15- und u05-Modellgittern wurden zusätzlich drei hochauflöste Gebiete in $1 \times 1 \text{ km}^2$ Auflösung jeweils für einen ausgewählten 14-tägigen Zeitraum simuliert und analysiert. Diese Gebiete und dazu passende Zeiträume wurden in enger Abstimmung mit dem UBA unter folgenden Gesichtspunkten ausgewählt. Die drei Modellgebiete sollen verschiedene Charakteristiken insbesondere bei den Emittenten aufweisen. Entsprechend wurde nach jeweils einer Region gesucht,

- ▶ die landwirtschaftlich geprägt ist,
- ▶ eine Region, die stark durch industrielle Aktivitäten beeinflusst wird und
- ▶ eine Gegend, die einen urbanen Raum abbildet.

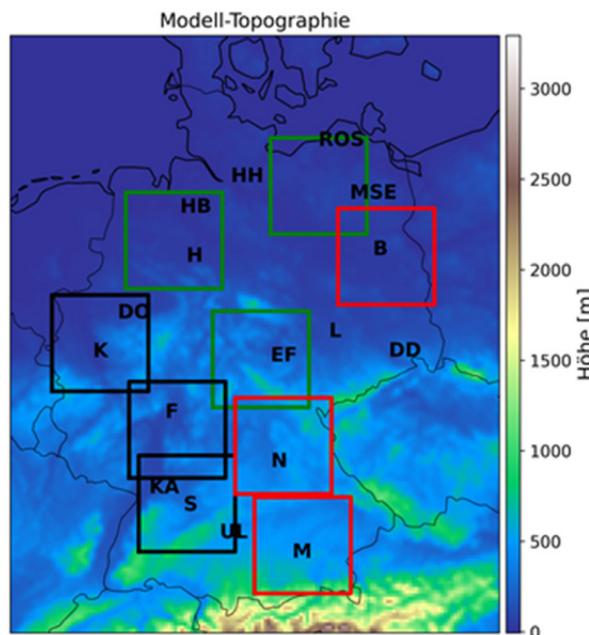
Die Modellregionen sollen aus Gründen der Rechenzeitoptimierung eine Größe von ca. 150×150 Gitterzellen einnehmen, was einer Ausdehnung von ca. $150 \times 150 \text{ km}^2$ entspricht. Die hochauflösten Modellgebieten ermöglichen eine detaillierte Analyse der räumlichen Verteilung der Emissionskorrekturfaktoren. Hierbei kann insbesondere auf die Zuordnung der Emissionskorrekturen auf verschiedene Verursachergruppen eingegangen werden. In Anhang A wird eine Erweiterung der 4D-var Datenassimilationsmethode vorgestellt, die diese Zuordnung in Zukunft weiter verfeinern soll.

Abbildung 27 stellt eine Übersicht der in Frage kommenden Modellgitter für die 1 km -Analysen dar. Die Auswahlkriterien für geeignete Modellgebiete umfassen neben der Emissionsverteilung insbesondere die Anzahl und Verteilung der Beobachtungsstationen im Modellgebiet, vorherrschende Windrichtungen, sodass der Wind von den Emissionsregionen zu den Beobachtungsstationen weht und die Abwesenheit von Störfaktoren wie beispielsweise Hafengebiete mit signifikanten Schiffsemissionen oder kritische Topografie (farblicher Hintergrund in Abbildung 27).

Für die landwirtschaftlich geprägte Region wurde je ein Gebiet in Niedersachsen, Thüringen und Mecklenburg-Vorpommern (grüne Rechtecke in Abbildung 27) auf die Eignung für eine detaillierte Emissionsanalyse untersucht. Das Modellgitter über Thüringen stellte sich als ungeeignet heraus, obwohl das Gitter viele Beobachtungsstationen für PM_{10} -, NO_x - und O_3 -Messungen abdeckt. Es gibt jedoch keine CO-Beobachtungsstation und im Vergleich zu den anderen Kandidaten für das landwirtschaftliche Gitter wird hier wenig NH_3 emittiert. Insbesondere durch die Topografie mit einer Tallage zwischen Harz und Thüringer Wald kann es zu einer Beeinflussung der Anströmung kommen, sodass die emittierten Stoffe ggf. nicht ausreichend von den Beobachtungen erfasst werden. Die Modellgebiete in Mecklenburg-Vorpommern und Niedersachsen sind seitens der Beobachtungsstationen ähnlich aufgestellt. Beide Gitter enthalten wenige Stationen mit CO- und SO_2 -Beobachtungen und eine moderate Zahl an NO_x - und PM_{10} -Beobachtungsstandorten. Bei der Betrachtung der Emissionsstärken beider Modellgebiete, zeigen sich hohe Anteile der NMVOC-Emissionen bei den landwirtschaftlichen Sektoren (GNFR-Sektoren K und L), da in beiden Bundesländern relativ viele Viehbetriebe ansässig sind. Die landwirtschaftlichen NO_x -Emissionen sind verhältnismäßig

hoch und nehmen mehr als 40% der gesamten NO_x-Emissionen in den Gebieten ein. Sowohl die NH₃- als auch die PM₁₀-Emissionen zeigen einen bedeutenden Anteil in den landwirtschaftlichen Sektoren und besonders in Niedersachsen sind diese Anteile auffallend hoch für GNFR-Sektor K. Die Beurteilung der verschiedenen Modellgitterkandidaten für ein landwirtschaftlich geprägtes Gebiet resultierte somit in der Wahl des Niedersächsischen Modellgitters, da Niedersachsen aufgrund seiner Lage an der Nordsee zudem bei der vorherrschenden nord-westlichen Anströmung besonders schwach von Emissionen anders geprägter Gebiete beeinflusst wird.

Abbildung 27: Potenzielle 1 km-Modellgebiete in Deutschland



Potenzielle 1 km-Modellgebiete in Deutschland auf einer Karte der EURAD-IM Modelltopografie. Die möglichen Gebiete sind durch farblich markierte Rahmen den Emissionscharakteristiken zugeordnet (grün: landwirtschaftlich, schwarz: industriell, rot: urban). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Für das industriell geprägte Modellgitter wurden ursprünglich drei Gebiete (schwarze Rechtecke in Abbildung 27) in Betracht gezogen: 1) Nordrhein-Westfalen (NRW) mit zahlreichen industriellen Anlagen insbesondere im Ruhrgebiet, 2) das Rhein-Main-Gebiet um Frankfurt, Mainz, Wiesbaden und Mannheim und 3) das Gebiet um Rhein und Neckar, welches sich von Mannheim und Karlsruhe über Stuttgart bis nach Ulm erstreckt. Die Beobachtungsabdeckung aller Spezies gestaltet sich in allen potenziellen Modellgebieten ähnlich. Nur in NRW gibt es keine routinemäßigen CO-Beobachtungen. In NRW dominieren jedoch im Vergleich zu den anderen Gebieten die Emissionen der Industrie, insbesondere für CO. Die CO-Emissionen in den südlicheren Gebieten beinhalten einen wesentlichen Anteil von Verkehr und Haushalten. Die industriellen NO_x-Emissionen sind am stärksten in NRW, während der Verkehr in den Metropolregionen Rhein-Main und Rhein-Neckar flächendeckend hohe Anteile einnimmt. Auch die NMVOC-Emissionen, deren Hauptverursacher die Lösungsmittelherstellung und -nutzung ist, die SO₂-Emissionen, die im Wesentlichen von Kraftwerken und Industrie freigesetzt werden, und die Industrie-bezogenen Feinstaubemissionen sind in NRW am höchsten. Die Topografie gestaltet sich im Rhein-Neckar-Gebiet eher schwierig, insbesondere rund um Stuttgart. In NRW und Rhein-Main-Gebiet hat sie keine große Auswirkung auf die Verteilung der Schadstoffe. Aufgrund der Dominanz der industriellen Emissionsquellen in NRW wurde entschieden, dass dieses Gebiet für die Detailstudie industrieller Emissionen verwendet wird.

Das dritte Detail-Modellgebiet, soll eine Region abbilden, die mindestens eine Großstadt enthält, aber gleichzeitig im Umland eher von landwirtschaftlichen Emissionsquellen umgeben ist als von industriellen Quellen. Entsprechend kamen Regionen um die Städte Berlin, Nürnberg und München in Frage und wurden auf ihre Tauglichkeit für die detaillierte Analyse untersucht (rote Rechtecke in Abbildung 27). Die Beurteilung ergab, dass sich das Gebiet rund um Berlin am besten eignet. Berlin liegt relativ isoliert von anderen starken städtischen und industriellen Emissionsquellen und die Verteilung der Emissionen im Gebiet ist ausgeglichen mit städtischen und ländlichen Anteilen. In Berlin und im Umland gibt es zahlreiche Beobachtungsstationen, die die Analyse und Evaluierung der Ergebnisse begünstigen. Zudem gestaltet sich die Topografie hier einfach, so dass der Schadstofftransport nicht signifikant beeinflusst wird. Nürnberg und München hingegen sind nicht so isoliert gelegen wie Berlin. Es gibt jedoch deutlich weniger Beobachtungen in den beiden Gebieten. Insbesondere bei dem Münchener Gebiet gestaltet sich die ausgeprägte Topografie der Alpen im Süden als schwierig. Es kann dadurch möglicherweise sogar zu numerischen Problemen in der Modellanalyse kommen.

Zur Identifikation geeigneter Analysezeiträume der einzelnen Modellgebiete mit 1km-Auflösung sollte jeweils eine 2-Wochen-Episode im Analysejahr 2016 gefunden werden, währenddessen

- ▶ es keine besonderen atmosphären-chemischen Ereignisse gab (z.B. hohe Feinstaub- oder Ozonkonzentrationen),
- ▶ möglichst wenig Niederschlag fiel und eine geringe solare Einstrahlung (für moderate Ozon-/Photochemie) herrschte, sowie
- ▶ mäßiger, nicht stagnierender Wind wehte, der die Schadstoffe innerhalb der Modellregion verteilte, so dass das adjungierte Signal des Modell-Beobachtungs-Inkремents im adjungierten Modelllauf möglichst lange in der Modellregion verweilt und die Beobachtungssituation es erlaubt, die in der Modellregion emittierten Schadstoffe zu beobachten.

Mit der Analyse des meteorologischen Modelloutputs sowie der Zuhilfenahme sogenannter Pseudogradientenfelder, die die Anzahl der Tage innerhalb der letzten zwei Wochen angeben, an denen adjungierte Signale pro Gitterzelle erkannt werden, konnte für die Modellgebiete Niedersachsen und NRW der Zeitraum zwischen dem 10. und 23. März 2016 als ideal identifiziert werden. Während dieser Zeit fiel in beiden Regionen kaum Niederschlag, insbesondere die zweite Woche war durch mäßige Sonneneinstrahlung geprägt und es wehte ein mäßiger Wind zunächst überwiegend aus ost-nord-östlicher, später aus nord-westlicher Richtung. Mit der gleichen Methode wurde für das Modellgebiet Berlin-Brandenburg der Zeitraum vom 1. bis 14. April 2016 als bester Analysezeitraum ermittelt. Währenddessen gibt es in der Modellregion zwar unterschiedliche Anströmungsrichtungen, dennoch ist der Einfluss polnischer Emissionen gering. Es fiel wenig Niederschlag. Jedoch gab es eine relativ hohe Sonneneinstrahlung, die aufgrund der Frühjahrs situation aber keinen extremen Einfluss auf die Photochemie nahm. Tabelle 7 zeigt abschließend eine Übersicht der 1 km-Modellgebiete inklusive der Kennung, der Gittergröße und der entsprechenden ausgewählten Analysezeiträume.

Tabelle 7: Übersicht der 1 km-Modellgebiete und den dazugehörigen Analyseperioden

Region	Charakteristik	Kennung	Gittergröße (Gitterzellen)	Analysezeitraum
Niedersachsen	landwirtschaftlich	ua1	181 x 151	10.-23.03.2016

Region	Charakteristik	Kennung	Gittergröße (Gitterzellen)	Analysezeitraum
Nordrhein-Westfalen	industriell	ub1	161 x 151	10.-23.03.2016
Berlin-Brandenburg	urban	uc1	151 x 176	01.-14.04.2016

3.4 Praktische Durchführung der Analysesimulationen

3.4.1 Einrichtung der Modellkette

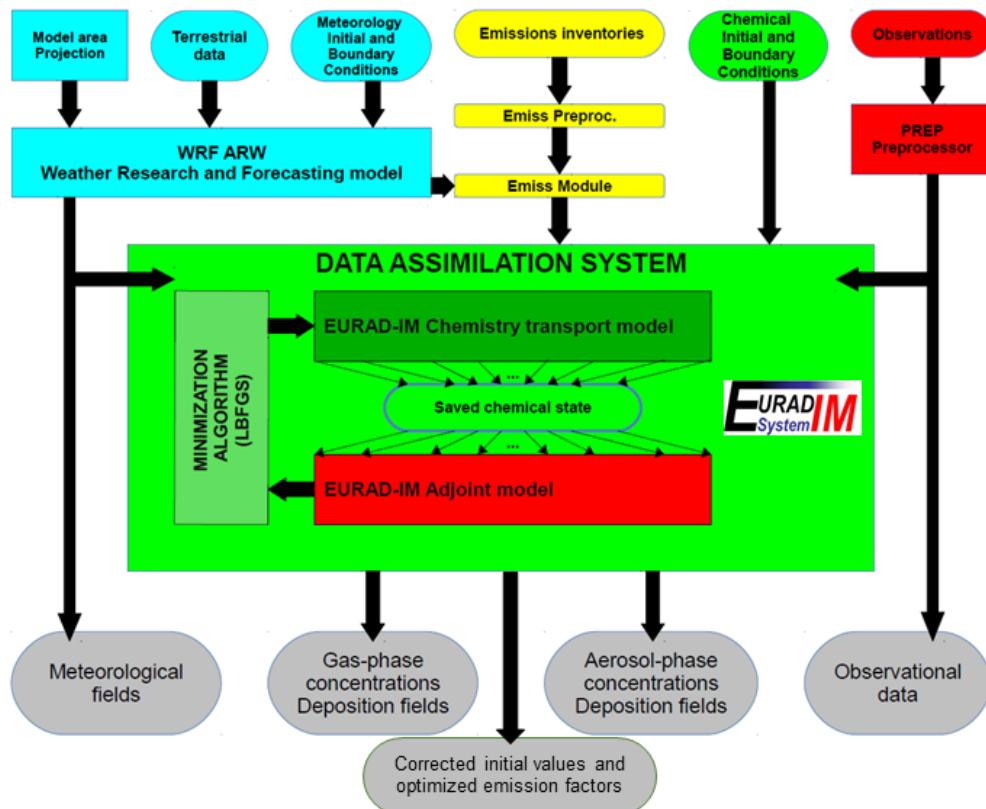
Zur Einrichtung der Modellkette für die Durchführung der Analyse mussten zunächst alle Eingangsdaten gesammelt und vorbereitet werden. Abbildung 28 zeigt ein Flussdiagramm des EURAD-IM, welches sowohl die Eingangs- und Ausgangsdaten als auch einen groben Überblick über die Prozesskette zeigt. Der erste Satz an Eingangsdaten umfasst die offline gekoppelten meteorologischen Felder (cyanfarben), die aus Berechnungen des WRF-Modells stammen (vgl. Abschnitt 4.4.2.1.2). Die hierfür verwendeten globalen Rand- und Anfangswerte stammen aus dem ECMWF-IFS-Modell und beinhalten eine meteorologische Re-Analyse. Für die Bereitstellung der meteorologischen Felder für das EURAD-IM wurden alle Tage des Jahres 2016 kontinuierlich zunächst in 15 km x 15 km (u15) Auflösung, dann in 5 km x 5 km (u05) Auflösung jeweils mit 30 vertikalen Modellschichten mit dem WRF-Modell simuliert. Zusätzlich wurden die letzten 5 Tage des Jahres 2015 (27.-31.12.2015) für die Vorbereitung des chemischen Spin-up des EURAD-IM simuliert. Für die 1 km-Modellgebiete wurden die entsprechenden Regionen für die ausgewählten Zeiträume mit dem WRF simuliert, plus jeweils zwei vorausgehende Tage für den Spin-up. Jeder Modelllauf umfasst genau einen Tag (24 Stunden). Die resultierenden WRF-Dateien enthalten dreidimensionale Felder der wichtigsten meteorologischen Parameter, z.B. Temperatur, Druck, Wind, Feuchte, Land- und Meeresoberflächeninformationen usw., in stündlicher Auflösung.

Die Emissionsdatensätze (in Abbildung 28 gelb markiert) mussten für alle Modellgebiete in der Form angepasst werden, dass sie für innerdeutsche Gitterzellen die GRETA-Emissionen des UBA zugeordnet bekommen, während allen Grenz-Gitterzellen sowie nicht-deutschen Modellregionen die europäischen CAMS-Emissionen zugeteilt werden. Die Emissionsdaten wurden zudem in GNFR-Sektor- und Emissionsspezies-abhängige Ascii-Dateien konvertiert, die vom EURAD-IM direkt lesbar sind. Für mehr Information zu den Emissionsdaten siehe auch Abschnitt 2.4.

Ein weiterer Eingangsdatensatz für die EURAD-IM-Simulationen sind die atmosphären-chemischen Anfangs- und Randwerte (hellgrün oben in Abbildung 28). Hierfür wurden globale Modellanalysen des ECMWF-C-IFS (Composition IFS) verwendet. Diese Randwerte werden auch routinemäßig in der CAMS-Re-Analyse genutzt und können in ihrem GRIB-(GRid In Binary) Format direkt vom EURAD-IM eingelesen werden. Als Anfangswerte werden zunächst klimatologische Daten für die Simulationen zu Beginn eines jeden Spin-up genutzt. Da die lokalen Emissionen und die jeweilig gegenwärtige Dynamik die atmosphären-chemische Situation grundlegend bestimmen, werden fünf (bei u15 und u05) bzw. zwei (bei allen 1 km-Gittern) Tage Spin-up gerechnet, damit sich die Prozesse und Schadstoffverteilungen so einpendeln können, dass für den jeweils ersten Analysetag gute Anfangswerte vorliegen. Die Anfangswerte aller folgenden Analysetage werden seriell von der Analyse des Vortages verwendet. Die Randwerte für die feiner aufgelösten Modellgebiete (u05, ua1, ub1 und uc1) werden wiederum mit dem Nestingverfahren von den entsprechenden Simulationen des Muttergitters extrahiert. Dies sind im Fall des u05-Modellgebiets Randwerte aus den u15-

Simulationen und bei den ua1-, ub1- und uc1-Gebieten die Randwerte aus den u05-Modellläufen.

Abbildung 28: Flussdiagramm des EURAD-IM



Flussdiagramm des EURAD-IM mit den Eingangsdaten in der oberen Reihe, dem schematischen 4D-var Assimilationssystem (grüner zentraler Kasten) und dem Modelloutput (grau, unten). Das Ziel des Projektvorhabens liegt insbesondere in der Bestimmung der optimierten Emissionskorrekturfaktoren (grauer Kasten mit dunkelgrünem Rahmen). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Der letzte Eingangsdatensatz in das EURAD-IM für die Analyse beinhaltet die zu assimilierenden Beobachtungsdaten (rot, oben in Abbildung 28). Diese dienen als Informationsquelle über die beobachteten Konzentrationsverteilungen in der Atmosphäre und umfassen zahlreiche Daten von Beobachtungsnetzwerken, Kampagnen oder Satellitenbeobachtungen und somit sowohl in-situ-Messungen als auch Fernerkundungsbeobachtungen. Alle Daten werden von den bereitstellenden Institutionen in einem individuellen Datenformat übermittelt und beinhalten unterschiedliche Beobachtungsgrößen zu den Schadstoffkonzentrationen in der Atmosphäre. Zum Einlesen in das EURAD-IM müssen alle Beobachtungsdaten auf ein einheitliches Format gebraucht werden. Dies geschieht in dem EURAD-eigenen Beobachtungs-Pre-Prozessor (PREP), der nicht nur die verschiedenen Beobachtungsdaten in ein Format bringt, sondern auch eine gewisse Qualitätssicherung abfragt und die entsprechenden Fehlerangaben der Beobachtungen bemisst und dem EURAD-IM bereitstellt. Für die Jahresanalyse wurden mithilfe von PREP tages- und gebiets-abhängige Beobachtungsdatensätze zusammengestellt.

3.4.2 Durchführung der Simulationen

Im EURAD-IM Modellsystem konnten nun mit allen vorbereiteten Eingangsdaten verschiedene Modellläufe gerechnet werden. Als Referenz zum Basismodell wurde für alle Modellgebiete eine Referenzsimulation durchgeführt. Hierbei wurden keine Beobachtungsdaten assimiliert,

sondern es wurde ein reiner Vorwärtslauf auf Grundlage der meteorologischen, chemischen und Emissions-Eingangsdaten simuliert. Es wurden beim Referenzlauf grundsätzlich keine Korrekturen oder Anpassungen durchgeführt. Dieser Modelllauf wurde für die ausgewählten Zeiträume aller Gitter modelliert. Seine Ergebnisse werden in der folgenden Auswertung mit „ref“ gekennzeichnet. Jeder Referenzlauf simuliert einen individuellen Tag, so dass in der Resultatdatei stündliche Modelldaten für einen Tag abgespeichert werden. Des Weiteren folgte der Analyse-modelllauf. Dabei wird der sogenannte Hintergrundmodelllauf herausgeschrieben, der die Modellrechnung repräsentiert, die zwar noch keine Beobachtungen assimiliert hat, aber gegenüber dem Referenzlauf geänderte Anfangswerte und Emissionskorrekturfaktoren entsprechend der Vortagesanalyse nutzt. In der Auswertung werden die Ergebnisse des Hintergrundlaufs mit „bg“ markiert. Die 4D-var Analyse verläuft iterativ, so dass pro simulierten Tag bis zu 15 Iterationen mit jeweils einem Vorwärts- und einem adjungierten Modelllauf berechnet werden. Bzgl. des Rechenzeitaufwandes entspricht eine Iteration ungefähr der Länge von vier äquivalenten Vorwärtssimulationen. Der finale Vorwärtslauf, die sogenannte Analyse (in der Auswertung gekennzeichnet durch „ana“), beinhaltet die beste Modellanpassung zwischen Hintergrundlauf und Beobachtungsdaten unter Berücksichtigung aller Fehler. Die Kosten sind hierbei minimal durch die verbesserte Abschätzung der Anfangsbedingungen und der Emissionskorrekturfaktoren. Jeder Analyselauf umfasst ein Assimilationsfenster von 24 Stunden. Dies bedeutet, dass pro Iteration 24 Stunden vorwärts in der Zeit simuliert werden und dabei die Diskrepanz zwischen Modellzustand und Beobachtungen erfasst wird. Diese wird anschließend 24 Stunden rückwärts in der Zeit (adjungierter Lauf) integriert und das adjungierte Signal (Gradient) wird dabei zurück zu seinen Quellen (Emissionen und Anfangswerten) transportiert.

Die Simulationsergebnisse von Referenz-, Hintergrund- und Analyselauf beinhalten alle Informationen zu Konzentrationsfeldern vieler gasförmiger und fester Schadstoffe sowie Informationen zu Emissionen- und Depositionen dieser Schadstoffe. Alle Daten sind standardmäßig stündlich aufgelöst und umfassen all diese Felder für jede individuelle Modellgitterzelle (2.994.429 Gitterzellen beim u15-Modellgebiet und 2.422.740 Gitterzellen beim u05-Modellgebiet). Aufgrund des enormen Speicherbedarfs wurde beschlossen, die herausgeschriebenen Modellergebnisse auf die nötigsten Modellvariablen, also die Schadstoffkonzentrationen der relevantesten anthropogenen Spezies, zu beschränken. Bei der Analyse werden weitere wichtige Modellresultate herausgeschrieben. Dazu zählt vor allem eine Datei pro Simulationstag, die die Kosten pro Beobachtungstyp, pro beobachtete Spezies und für die drei Kostenfunktionskomponenten (Hintergrund, Beobachtung und Emissionen) beinhaltet. Ein weiterer wichtiger Modelloutput sind die Gradientfelder, die das adjungierte Signal an in jeder Gitterzelle zu Anfang einer jeden Iteration beschreiben. Schlussendlich resultieren pro Simulationstag mehr als 150 GB an Daten, die aufwendig komprimiert und in ein Archiv verschoben werden müssen, welches aber gleichzeitig schnellen und unkomplizierten Zugriff auf die Daten für die Auswertung erlaubt.

Eine Jahresanalyse umfasst einen enormen zeitlichen Aufwand, insbesondere da man einen Tag nach dem anderen berechnen muss, um die besten Anfangswerte und Emissionskorrekturfaktoren des Vortages berücksichtigen zu können. Aufgrund der fortgeschrittenen Zeit im Projektvorhaben zu Anfang der finalen Modellanalyse, wurde gemeinsam mit dem UBA beschlossen, die Jahresanalyse jahreszeitlich zu teilen, damit die Gesamtanalyse durch parallele Analyseberechnungen der einzelnen Jahreszeiten schneller abgeschlossen werden konnte. So wurde die Analyse am 1. Januar, 1. März, 1. Juni und 1. September 2016 jeweils neu bei dem Emissionskorrekturfaktor 1.0 und den Anfangswerten des entsprechenden Spin-up-Laufs gestartet. Dadurch konnten vier Modellläufe parallel prozessiert werden und der Zeitaufwand für die Gesamtjahresanalyse konnte nahezu geviertelt werden. Des Weiteren wurden die

modellsteuernden Skripte so umgestaltet, dass sie die Wartezeiten auf den Großrechnern effizient verringern.

3.4.3 Anpassung des EURAD-IM

Im Laufe des Projektvorhabens stellten sich zwischenzeitlich verschiedene Schwächen in der Modellanalyse heraus. Durch die Zusammenführung der Optimierung von Gas- und Aerosolphase im Modell ergaben sich unphysikalische Rückkopplungen, deren Ursachenfindung eine erhebliche Mehrarbeit erforderte. Mittels sogenannter identischer Zwillingsexperimente konnte den Gründen der Unregelmäßigkeiten bei der Optimierung des Modellzustandes und der Emissionen nachgegangen werden. Bei identischen Zwillingsexperimenten wird mit einem sogenannten "nature-run" der "wahre" Zustand der Atmosphäre erzeugt, von dem die Beobachtungen berechnet werden. Hierbei wird zur Vereinfachung der Experimente von idealisierten Bedingungen ausgegangen. Somit stimmen die chemischen und physikalischen Prozesse bei der Ableitung der Beobachtung mit denen des Analysesystems überein, so dass fehlende Prozesse im Modell ausgeschlossen werden können. Es wird dann eine Analyse berechnet, die die synthetischen Beobachtungen assimiliert. Die Ursache der entstandenen inhomogenen Sensitivitätsfelder konnte durch zahlreiche Modellrechnungen im adjungierten Modell für die Bildung sekundärer anorganischer Aerosole lokalisiert werden. Das Modul wirkt als eine Art „Blackbox“, in der das Gleichgewicht im System $H^+ - NH_4^+ - SO_4^{2-} - NO_3^- - H_2O$ berechnet wird. Durch den Blackbox-Charakter des Moduls war eine genaue Identifizierung der Ursache des Problems ausschließlich in der bestimmten Beobachtungskonfiguration ersichtlich, in der NH_4^+ und NH_3 gemeinsam beobachtet werden. Diese Beobachtungskonfiguration entspricht nicht den operativen Gegebenheiten. Ausschließlich durch zahlreiche Modellsimulationen, Code-Extraktion, Analysen kleinster Modellauszügen, Konfigurationstests und unterschiedlicher Ergebnisevaluierungen konnte schlussendlich die Fehlerquelle eingeschränkt und der Fehler behoben werden. Bei den nachfolgenden Durchläufen der Analyse stellten sich ungewöhnlich hohe Feinstaubkonzentrationen in den Analyseergebnissen ein. Eine anschließende Ursachenforschung ergab eine fehlende Handhabung des Wolkeneffekts in der Modellversion, so dass der Scavenging-Effekt (Auswaschen der Aerosole aus der Atmosphäre durch Wolken/Regen) und die Behandlung der nassen Deposition im adjungierten Modelllauf explizit fehlten. Dies führte zu einer fehlerhaften Akkumulation an Feinstaub in der Analyse. Durch Nichtbeachtung des Gradienten innerhalb von Regengebieten konnte diese fehlerhafte Feinstaubansammlung erfolgreich korrigiert werden. Weitere Verbesserungen im Walcek-Advektionsschema (Parallelisierung und Nutzung der Dichte anstelle des vertikalen Druckunterschieds (p^*)) führten zur erfolgreichen, finalen Analysemodellkonfiguration.

Die gesamte Auswertung der Simulationsergebnisse wurde mit zahlreichen neuentwickelten Python-Routinen durchgeführt. Diese müssen insbesondere effektiv auf die großen Modelldaten zugreifen und diese verarbeiten. Auch hierbei stand die optimale Ausnutzung des lokalen Arbeitsspeichers im Vordergrund. Zudem verwenden viele Auswertungsroutinen nicht nur die Datensätze, die aus den Modellsimulationen resultieren, sondern verknüpfen diese auch mit den umfangreichen Inputdaten der Meteorologie, Emissionen und Beobachtungen. Dies macht die Skripte komplex, Arbeitsspeicherintensiv und anspruchsvoll in der Automatisierung.

Tabelle 8: Übersicht zur Rechenzeit und Speicherbedarf im Projektvorhaben

Die Angaben zur Rechenzeit resultieren auf Grundlage von durchschnittlichen Abschätzungen der Rechenzeit pro simulierten Tag und sind in die Simulationen der Meteorologie mit WRF, dem Referenzlauf und der Analyse unterteilt. Der Speicherbedarf umfasst ausschließlich alle Modelloutputdaten, die für die Auswertung genutzt werden. Hinzu kommen eigentlich noch die Eingangsdaten der Beobachtungen, Randwerte und Emissionen. Für eine Gesamtjahresübersicht müssen alle Werte von u15 und u05 mit 366 Tagen multipliziert werden, die Werte der 1 km-Simulationen mit 14 Tagen.

Modellgebiet	Rechenzeit			Speicherbedarf
	Meteorologie	Referenz	Analyse	
u15	25,0 core-h	127,6 core-h	3881,8 core-h	17,428 GB
u05	30,1 core-h	165,9 core-h	5834,5 core-h	14,431 GB
ua1, ub1, uc1	34,1 core-h	83,7 core-h	4811,2 core-h	14,436 GB

Alle Simulationen wurden auf den Batch-Systemen der Supercomputer JURECA-DC (Jülich Research on Exascale Cluster Architectures – Data Centric; Jülich Supercomputing Centre, 2021a) und JUWELS (Jülich Wizard for European Leadership Science; Jülich Supercomputing Centre, 2021b) im Forschungszentrum Jülich durchgeführt. Beide Rechner gehören zu den rechenstärksten High Performance Computer (HPC) Systemen Deutschlands und greifen auf ein gemeinsames Filesystem zurück. Während die meiste Entwicklungsarbeit und die meteorologischen WRF-Simulationen auf JURECA-DC ausgeführt wurden, beanspruchte die finale Jahresanalyse den JUWELS Supercomputer. Tabelle 8 fasst abschließend eine Übersicht zum Rechen- und Speicheraufwand der Jahresanalyse der beiden europäischen Modellgebiete und der 1 km-Modellregionen zusammen.

3.5 Metriken

Der Mittelwert der Modellkonzentrationen wird über

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i, \quad (18)$$

berechnet. Die Mittelung über die Beobachtungen erfolgt entsprechend. In der Evaluierung werden die Werte auf verschiedene Arten gemittelt: zeitliche Mittel, räumliche Mittel. In der Regel erfolgen die Berechnungen der statistischen Metriken nach vorheriger räumlicher Mittelung. Hierbei wird über Länder oder Bundesländer gemittelt.

Als Bias wird die mittlere Abweichung zwischen Modell- und Beobachtungskonzentrationen bezeichnet

$$Bias = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - y_i), \quad (19)$$

Ein Biaswert von null zeigt, dass Modell- und Beobachtungskonzentrationen im Mittel keine Abweichungen haben. Ein Wert < 1 (> 1) zeigt, dass im Mittel die Beobachtungen größer (kleiner) sind als die Modellkonzentrationen. Der Bias zeigt im Wesentlichen an, ob es eine systematische Abweichung zwischen Modell- und Beobachtungskonzentrationen (zum Beispiel hervorgerufen von ungenauen Emissionsdaten) gibt. Hierbei ist zu beachten, dass der Bias sensitiver gegenüber hohen Konzentrationen ist. Ferner gibt der Bias keinen Aufschluss über die tatsächliche Streuung der simulierten Konzentrationen, da sich negative und positive Abweichungen gegenseitig aufheben können.

Im Gegensatz zum Bias ist der normierte mittlere Bias (NMB) relativ zu den Beobachtungen berechnet

$$NMB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{(x_i - y_i)}{y_i} * 100. \quad (20)$$

Er ist genauso wie der Bias zu interpretieren, wird jedoch in Prozent angegeben. Durch die Betrachtung der relativen Abweichungen der Simulationen von den Beobachtungen, ist der NMB deutlich sensitiver gegenüber kleinen Beobachtungswerten als der Bias.

Der Root mean square error (Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers) berechnet sich über

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - y_i)^2}. \quad (21)$$

Der RMSE ist ein Maß für den mittleren Fehler der Modellkonzentrationen, also die Streuung der simulierten Konzentrationen um die Beobachtungen. Im Gegensatz zu Bias heben sich positive und negative Fehler nicht gegenseitig auf. Daher ist der RMSE besser geeignet, den Fehler zwischen Modell- und Beobachtungskonzentrationen zu bewerten.

Der normierte mittlere Fehler (NME) wird analog zum NMB berechnet, jedoch unter Verwendung der absoluten Differenz von Modellsimulationen und Beobachtungen.

$$NME = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{|x_i - y_i|}{y_i} * 100. \quad (22)$$

Durch die Normierung werden die positiven und negativen Abweichungen nicht gegenseitig aufgehoben. Allerdings bleibt der NME sensitiv gegenüber kleinen Beobachtungen, wohingegen signifikante Abweichungen von großen Beobachtungswerten weniger Einfluss haben.

Zuletzt wird der Pearson Korrelationskoeffizient (kurz: Korrelation) berechnet

$$Corr = \frac{cov(x, y)}{\sigma_x \sigma_y}. \quad (23)$$

Hierbei ist $cov(x, y)$ die Covarianz der Modellsimulationen und der Beobachtungen und σ_x und σ_y die Standardabweichung der Modellsimulationen und der Beobachtungen. Die Korrelation gibt ein Maß für die Gleichheit zweier Zeitreihen und reicht von -1 (anti-korriert) über 0 (kein Zusammenhang zwischen den Zeitreihen) bis 1 (volle Korrelation). Jedoch ist die Korrelation unabhängig von eventuellen systematischen Fehlern (Bias).

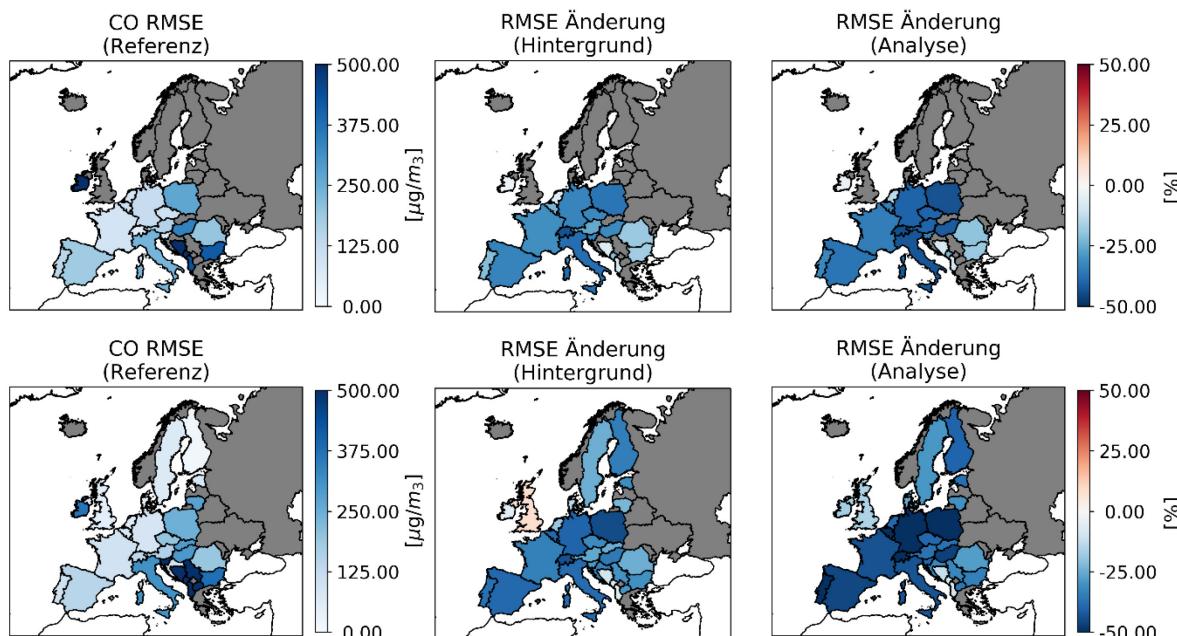
4 Auswertung

4.1 Vergleich der Simulationen mit Beobachtungen

4.1.1 CO-Konzentrationen

Kohlenstoffmonoxid (CO) ist ein langlebiges Spurengas, welches dadurch einen hohen regionalen Hintergrundwert aufweist. Maßgeblich wird CO durch direkte Emissionen (biogene und anthropogene) verursacht, wobei in Europa in der Regel die anthropogenen Quellen überwiegen (siehe auch Anhang B.1). In Abbildung 29 wird die Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers (RMSE) der CO Tagesmittelwerte für den Referenzlauf (links), sowie dessen Änderung im Hintergrundlauf (Mitte) und in der Analyse (rechts) für das Jahr 2016 gezeigt. Hierbei sind die Werte an den Beobachtungsstationen, die zur Validierung genutzt werden in der oberen Reihe und die zum Assimilationsdatensatz gehörenden in den unteren Graphiken dargestellt. Der RMSE der CO Tagesmittelwerte im Referenzlauf zeigt ähnliche Werte für den Assimilations- und Validierungsdatensatz. In beiden Datensätzen sind große Verringerungen des RMSE zu erkennen, die auch in Tabelle 9 aufgelistet sind. Mit Ausnahme von Irland, wo ebenfalls hohe RMSE Werte berechnet wurden, ist der RMSE in Ländern nordwestlich einer Linie von Norditalien bis Nordrussland geringer als in Ländern südöstlich der Linie, wobei die höchsten RMSE-Werte im Bereich des Balkans zu finden sind (bis zu $932 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in Albanien für den Assimilationsdatensatz).

Abbildung 29: CO-RMSE Evaluierung in Europa

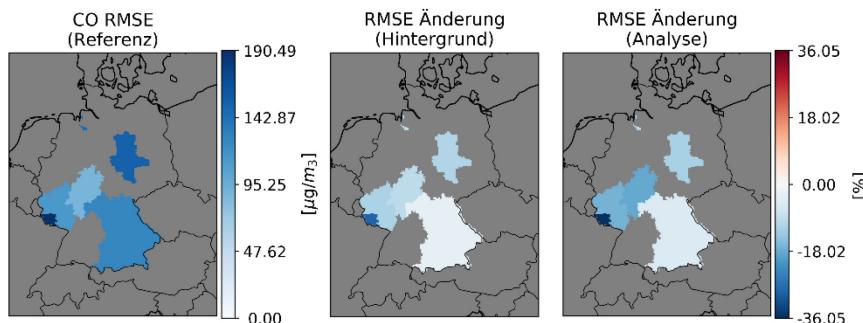


Links: CO-RMSE pro Land für 2016 des Referenzlaufs. Mitte: Änderung des RMSE im Hintergrundlauf. Rechts: Änderung des RMSE in der Analyse. Obere Reihe: RMSE relativ zu CO Messstationen aus dem Validierungsdatensatz. Untere Reihe: RMSE relativ zu CO Messstationen aus dem Assimilationsdatensatz. Länder ohne entsprechenden Beobachtungsdatensatz sind grau dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Ferner ist in Tabelle 9 zu erkennen, dass die Verringerung des RMSE durch die Assimilation in Ländern mit hohen RMSE-Werten generell geringer ist, was auf eine Verletzung der BLUE-Annahme (siehe Kapitel 2.2) hindeutet. Die Daten lassen auch auf Länder schließen, in denen der Assimilationsdatensatz weniger repräsentativ ist. Dies wird durch große Unterschiede in den

RMSE-Werten zwischen Assimilations- und Validierungsdatensatz ersichtlich. So liegt der RMSE in Slowenien bzgl. des Assimilationsdatensatzes bei $588 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und beim Validierungsdatensatz nur bei $63 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Bemerkenswert ist, dass die Änderungen des RMSE im Hintergrundlauf für beide Datensätze vergleichbar gute Werte von ca. -30 % aufweist. So lässt sich abschätzen, dass die dem Hintergrundlauf zugrunde liegenden Änderungen der Emissionen allgemein für eine Verbesserung der Simulationsergebnisse führen, auch wenn der Assimilationsdatensatz weniger repräsentativ ist. Dies kann zum Beispiel durch die Assimilation von Beobachtungen anderer Spezies wie etwa O_3 begründet werden.

Abbildung 30: RMSE der CO-Konzentrationen in Deutschland



Links: CO-RMSE pro Bundesland für 2016 des Referenzlaufs. Mitte: Änderung des RMSE im Hintergrundlauf. Rechts: Änderung des RMSE in der Analyse. Gezeigt sind die Ergebnisse an den Validierungsstationen im Vergleich zu den Simulationen des 5 km Modellgitters. Bundesländer ohne entsprechenden Beobachtungsdatensatz sind grau dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 30 zeigt den RMSE des Referenzlaufs mit der RMSE-Änderung im Hintergrundlauf und in der Analyse für das Jahr 2016 gemittelt über die Validierungsstationen in den einzelnen Bundesländern. Über das Jahr gesehen nimmt der RMSE in der Analyse zwischen 4 % (Hessen) und 25 % (Saarland) ab. Die Validierungsstation in Sachsen-Anhalt befindet sich unweit des Bahnhofs in Wernigerode in einem Park, ist somit als städtischer Hintergrund definiert. Da keine andere CO-Beobachtungsstation im Assimilationsdatensatz zu finden ist, ist die RMSE-Reduktion in der Analyse von 7 % einzig auf Beobachtungen anderer Spezies zurückzuführen. Durch die unmittelbare Nähe zu Emissionsquellen (Bundesstraße B244 und Bahnhof ohne elektrischen Zugbetrieb sowie mit anschließender historischer Schmalspurbahn in weniger als 500 m Entfernung) ist dies eine bemerkenswerte Verbesserung des RMSE und zeigt das Potenzial der 5 km Analyse unter bestimmten Bedingungen lokale Quellen zu erfassen.

Tabelle 9: RMSE der CO-Konzentrationen in Europa und Deutschland

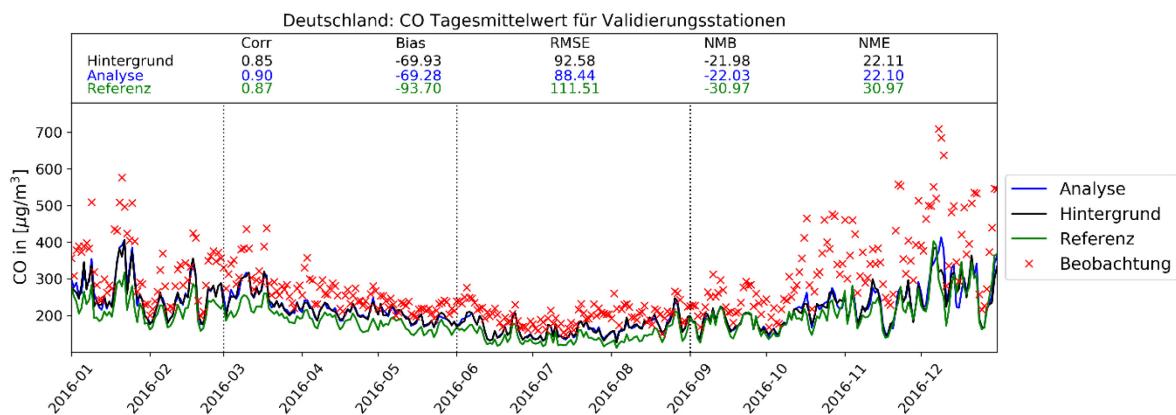
Vergleich des RMSE für 2016 je Land (oben, 15 km Gitter) bzw. Bundesland in Deutschland (unten, 5 km Gitter) für den Assimilations- und Validierungsdatensatz. Zudem ist die Änderung des RMSE im Hintergrundlauf und in der Analyse im Vergleich zum Referenzlauf dargestellt (negative Änderungen bedeuten eine Verringerung des RMSE).

	Assimilationsstationen (RMSE)			Validierungsstationen (RMSE)		
	Referenz ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung	Referenz ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung
Albanien	$932 \mu\text{g}/\text{m}^3$	-6 %	-9 %	$430 \mu\text{g}/\text{m}^3$	-8 %	-9 %
Andorra	$243 \mu\text{g}/\text{m}^3$	-9 %	-14 %	-	-	-
Österreich	$158 \mu\text{g}/\text{m}^3$	-26 %	-37 %	$153 \mu\text{g}/\text{m}^3$	-26 %	-40 %

	Assimilationsstationen (RMSE)			Validierungsstationen (RMSE)		
	Referenz ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung	Referenz ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung
Belgien	72 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-39 %	-58 %	105 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-23 %	-34 %
Bosnien- Herzegowina	581 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-10 %	-12 %	552 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-6 %	-8 %
Bulgarien	375 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-30 %	-34 %	416 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-17 %	-18 %
Kroatien	86 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-34 %	-32 %	-	-	-
Zypern	40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-45 %	-41 %	-	-	-
Tschechien	198 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-32 %	-39 %	102 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-32 %	-40 %
Dänemark	48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-13 %	-25 %	-	-	-
Estland	76 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-31 %	-38 %	-	-	-
Finnland	20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-35 %	-40 %	-	-	-
Frankreich	98 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-34 %	-44 %	92 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-31 %	-35 %
Deutschland	86 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-40 %	-53 %	121 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-33 %	-41 %
Großbritannien	50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	8 %	-15 %	-	-	-
Ungarn	296 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-35 %	-47 %	343 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-32 %	-42 %
Irland	367 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-6 %	-17 %	820 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-2 %	-3 %
Italien	312 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-38 %	-43 %	236 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-38 %	-43 %
Litauen	278 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-23 %	-30 %	-	-	-
Luxemburg	137 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-29 %	-36 %	156 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-30 %	-36 %
Malta	44 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-28 %	-41 %	-	-	-
Montenegro	875 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-6 %	-7 %	559 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-21 %	-23 %
Niederlande	57 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-19 %	-39 %	82 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-6 %	-13 %
Nordmazedonien	599 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-29 %	-36 %	-	-	-
Polen	246 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-45 %	-57 %	268 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-37 %	-44 %
Portugal	100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-37 %	-57 %	141 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-21 %	-32 %
Rumänien	194 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-25 %	-28 %	198 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-18 %	-20 %
Serbien	744 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-30 %	-33 %	-	-	-
Slowakei	291 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-25 %	-37 %	-	-	-
Slowenien	588 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-28 %	-39 %	63 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-32 %	-34 %
Spanien	147 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-39 %	-45 %	182 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-33 %	-36 %

	Assimilationsstationen (RMSE)			Validierungsstationen (RMSE)		
	Referenz ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung	Referenz ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung
Schweden	68 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-24 %	-29 %	-	-	-
Schweiz	134 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-44 %	-59 %	48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-44 %	-44 %
Baden-Württemberg	114 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-2 %	-7 %	-	-	-
Bayern	128 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-30 %	-39 %	127 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-3 %	-5 %
Brandenburg	91 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-22 %	-33 %	-	-	-
Bremen	65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-6 %	-22 %	147 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-9 %	-10 %
Hamburg	88 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-5 %	-20 %	-	-	-
Hessen	77 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-21 %	-43 %	89 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-10 %	-19 %
Mecklenburg-Vorpommern	65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-27 %	-38 %	-	-	-
Rheinland-Pfalz	100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-25 %	-35 %	113 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-11 %	-17 %
Saarland	268 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-19 %	-25 %	190 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-29 %	-36 %
Sachsen-Anhalt	79 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-37 %	-48 %	155 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-11 %	-12 %

Abbildung 31: Vergleich der CO-Tagesmittelwerte

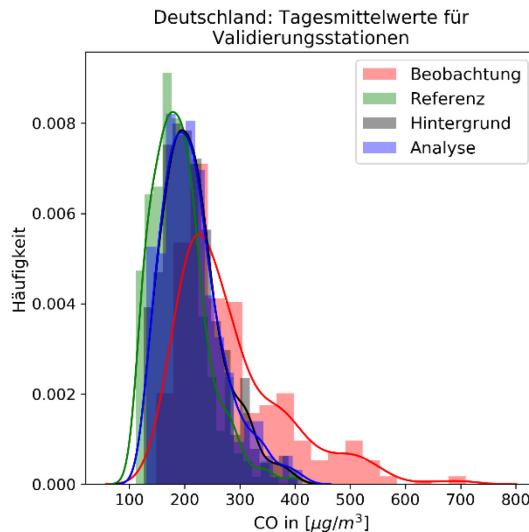


Vergleich der simulierten CO-Tagesmittelkonzentrationen des u05-Modellgitters mit den Beobachtungen des Validierungsdatensatzes für das Jahr 2016. Gezeigt sind die simulierten Konzentrationen des Referenz- (grün) und des Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau). Außerdem werden relevante statistische Größen angegeben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 31 zeigt den Vergleich zwischen den simulierten (u05-Modellgitter) und gemessenen CO-Tagesmittelkonzentrationen für 2016 in Deutschland. Anhand der verschiedenen Statistiken in Abbildung 31 sieht man, dass im Vergleich zum Referenzlauf der Hintergrundlauf und die Analyse verbesserte CO-Tagesmittelkonzentrationen simulieren. So steigt die Korrelation von 0.87 im Referenzlauf auf 0.90 in der Analyse, der Bias steigt um mehr als 25 % von $-94 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf Werte unter $-70 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Abhängig von der synoptischen Situation sind die Konzentrationen zwischen Oktober und März 2016 deutlich variabler und ca. doppelt so hoch wie zwischen April

und September 2016. Dies liegt an den höheren Emissionen, die je nach Wettersituation zu den wenigen Beobachtungsstationen in Deutschland transportiert werden oder an diesen vorbei. Ferner haben Inversionswetterlagen, in denen die Emissionen in der Grenzschicht gehalten werden, einen hohen Einfluss auf hohe Schadstoffkonzentrationen im Winter.

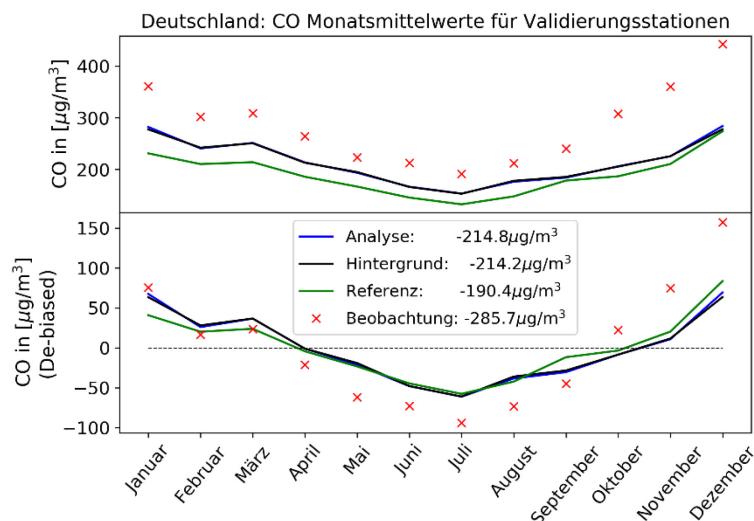
Abbildung 32: Häufigkeitsverteilung der CO-Tagesmittelkonzentration



Vergleich der Häufigkeitsverteilung der simulierten (u05-Modellgitter) und beobachteten CO-Tagesmittelkonzentrationen des Validierungsdatensatzes deutscher Stationen im Jahr 2016. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die Verbesserungen der Modellkonzentrationen durch die Analyse werden auch in Abbildung 32 deutlich, in der die Häufigkeitsverteilung der CO-Tagesmittelkonzentrationen für das Jahr 2016 an deutschen Validierungsstationen zu sehen ist. Die Analyse liegt zwischen dem Referenzlauf und den Beobachtungen. In der Analyse wird die Häufigkeitsverteilung in Richtung höheren Konzentrationen verschoben und stimmt somit besser mit der Häufigkeitsverteilung der beobachteten CO-Konzentrationen überein. Einzig der Bereich der Maximalkonzentrationen von CO kann durch die Analyse nicht abgedeckt werden. Dies liegt vermutlich an der geringeren Repräsentativität der Assimilationsstationen, die einen deutlich geringeren Anteil an hohen CO-Konzentrationen als die Validierungsstation aufweisen (siehe Anhang B.3).

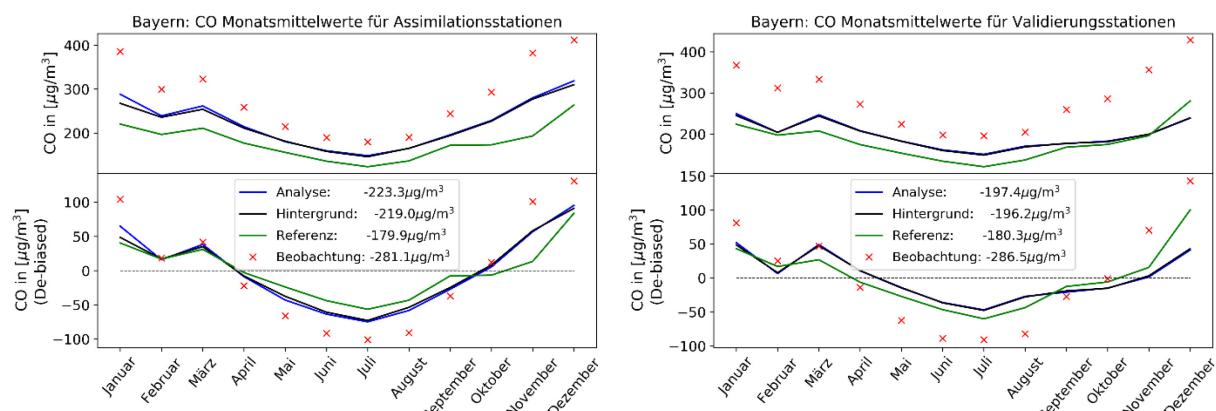
Abbildung 33: Monatsmittelwerte der CO-Konzentration in Deutschland



Oben: Vergleich der mit dem u05-Modellgitter simulierten Monatsmittelwerte für CO im Jahr 2016 des Referenz- (grün) und Hintergrundlaufs (schwarz), sowie der Analyse (blau) mit den Beobachtungen des Validierungsdatensatzes deutscher Stationen (rot). Unten: Vergleich der Variabilität der Monatsmittelwerte der CO-Konzentration. Für den Vergleich wurden die Jahresmittelwerte von den Zeitreihen abgezogen. Die jeweiligen Jahresmittelwerte sind in der Legende notiert. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die CO-Konzentrationen zeigen einen markanten Jahresgang, mit hohen Konzentrationen im Winter und niedrigeren Konzentrationen im Sommer, was maßgeblich mit der Heizperiode zusammenhängt. Daher ist es bei CO angebracht, die verschiedenen Modellsimulationen hinsichtlich ihres Jahresganges der CO-Konzentrationen zu untersuchen. Abbildung 33 zeigt die CO-Monatsmittelwerte (oben) für die verschiedenen simulierten (u05 Modellgitter) und gemessenen Zeitreihen (Validierungsstationen) in Deutschland für 2016, sowie deren Variabilität (unten). Um die Variabilität der CO-Monatsmittelwerte analysieren zu können, wurde von jeder Zeitreihe der Jahresmittelwert (siehe Legende in Abbildung 33) subtrahiert. Das Jahresmittel der CO-Konzentrationen steigt von $190 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Referenzlauf auf $214 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Hintergrundlauf bzw. $215 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Analyse und liegt somit deutlich näher am beobachteten Jahresmittelwert von $286 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Alle Zeitreihen zeigen den gleichen Jahresgang mit höheren Konzentrationen im Winter. Im Deutschlandmittel zeigt die Analyse eine geringere Variabilität der CO-Konzentrationen im Vergleich zum Referenzlauf, was im Wesentlichen auf die im Mittel geringeren Korrekturen der Modellkonzentrationen (durch die Emissionen, siehe Kapitel 4.2.1) am Ende des Jahres zurückzuführen ist.

Abbildung 34: Monatsmittelwerte der CO-Konzentration in Bayern

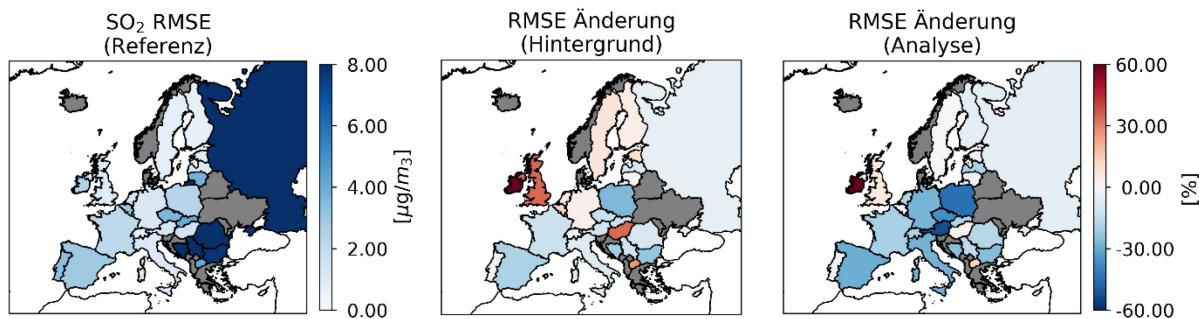


Oben: Vergleich der mit dem u05-Modellgitter simulierten Monatsmittelwerte für CO im Jahr 2016 des Referenz- (grün) und Hintergrundlaufs (schwarz), sowie der Analyse (blau) mit den Beobachtungen (rot) des Assimilations- (links) und Validierungsdatensatzes (rechts) bayerischer Stationen. Unten: Vergleich der Variabilität der Monatsmittelwerte. Für den Vergleich wurden die Jahresmittelwerte von den Zeitreihen abgezogen. Die jeweiligen Jahresmittelwerte sind in den Legenden notiert. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Jedoch muss hierbei die Repräsentativität der CO-Beobachtungsstationen in Betracht gezogen werden. In Abbildung 34 wird der CO-Jahresgang und dessen Variabilität an bayerischen Stationen für das Jahr 2016 zwischen Assimilations- und Validierungsstationen verglichen. Die Variabilität der CO-Konzentrationen im Assimilationsdatensatz zeigt deutliche Verbesserungen in der Analyse gegenüber dem Referenzlauf. Im Sommer sind die Konzentrationen ca. $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ weiter unter dem Mittel als im Referenzlauf und somit näher an der beobachteten CO-Variabilität. Am Ende des Jahres liegen die Konzentrationen im November mehr als $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über dem Jahresmittel der CO-Konzentrationen und stimmen somit auch besser mit der beobachteten Variabilität überein. Im Vergleich hierzu ist die Variabilität an den

Validierungsstationen in Bayern in der Analyse deutlich geringer. Dies liegt im Wesentlichen an den zu geringen Korrekturen der CO-Konzentrationen (und Emissionen, siehe Kapitel 4.2.1) in den Wintermonaten. Allerdings sind die gemittelten CO-Jahreskonzentrationen in beiden Datensätzen in der Analyse besser als im Referenzlauf. Dies bedeutet, dass die Analyse u. a. durch bessere Emissionswerte zwar bessere Ergebnisse liefert als der Referenzlauf, die zu schwache Korrektur der Emissionen im Bereich der CO-Validierungsstationen im Herbst/Winter jedoch zu einem unzureichenden Jahresprofil führen.

Abbildung 35: SO₂-RMSE Evaluierung in Europa



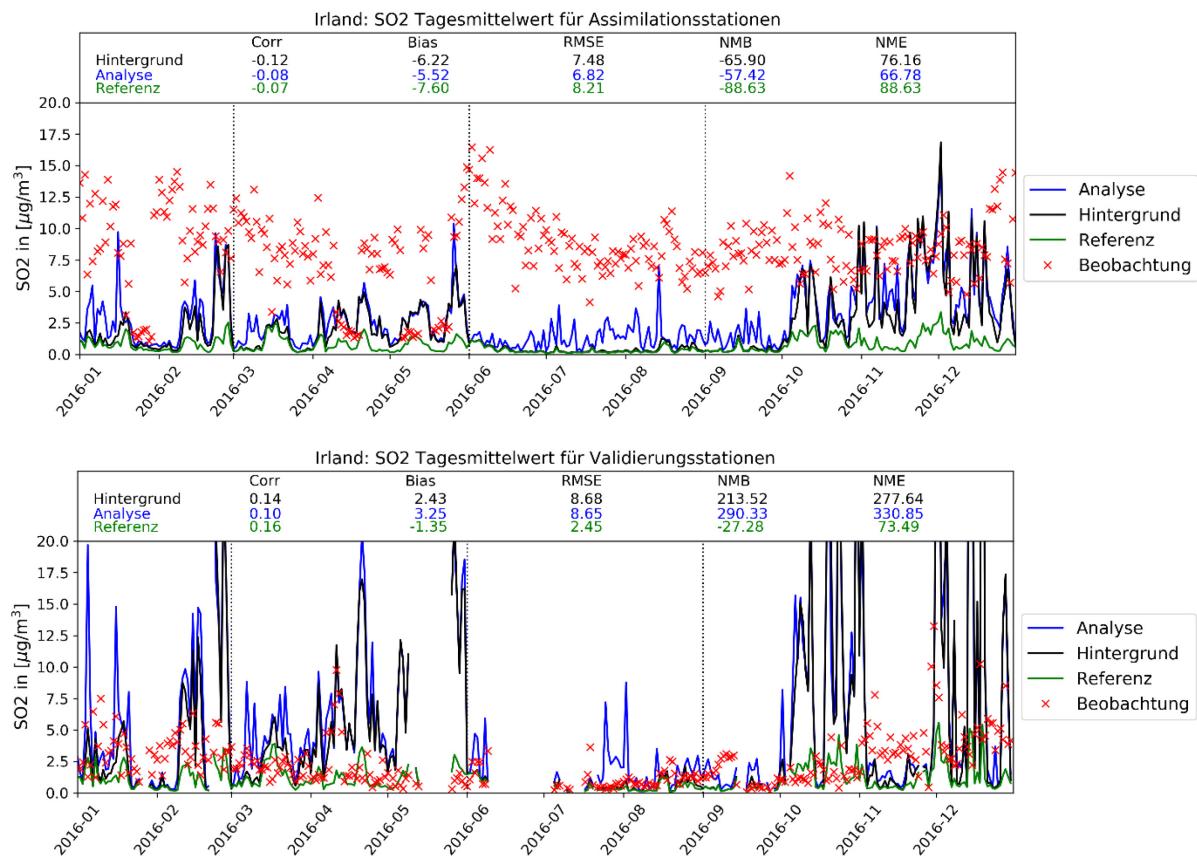
Links: SO₂-RMSE (bezogen auf die Validierungsstationen) pro Land für 2016 des Referenzlaufs. Mitte: Änderung des RMSE im Hintergrundlauf. Rechts: Änderung des RMSE in der Analyse. Länder ohne entsprechenden Beobachtungsdatensatz sind grau dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

4.1.2 SO₂-Konzentrationen

SO₂ wird zu einem großen Teil aus Punktquellen emittiert, deren Korrektur insbesondere mit einem groben Gitter eingeschränkt sind. Des Weiteren beträgt die atmosphärische Verweildauer von SO₂ wenige Tage (abhängig von der Jahreszeit; Lee et al, 2011), sodass es zu überregionalen Effekten von SO₂-Emissionen kommen kann. Umso größer ist der Einfluss der Repräsentativität des Assimilationsdatensatzes auf die Korrekturen an Validierungsstationen. Abbildung 35 zeigt den RMSE der SO₂-Konzentrationen des Referenzlaufs an den Validierungsstationen pro Land für das Jahr 2016. Daneben werden die Änderungen des RMSE im Hintergrundlauf und in der Analyse gezeigt. Generell ist der RMSE in Europa gering, mit Werten um 2 µg/m³. Nur in Südosteuropa und in Russland werden höhere RMSE-Werte von bis zu über 18 µg/m³ im Referenzlauf ermittelt. Die Änderungen des RMSE sind im Hintergrundlauf und in der Analyse heterogen. Gerade in Irland und Großbritannien sind in beiden Datensätzen Verschlechterungen im RMSE der SO₂-Konzentration zu erkennen. Am Beispiel Irland kann man dies aber auf die schlechte Repräsentativität der Beobachtungsstationen des Assimilationsdatensatzes zurückführen.

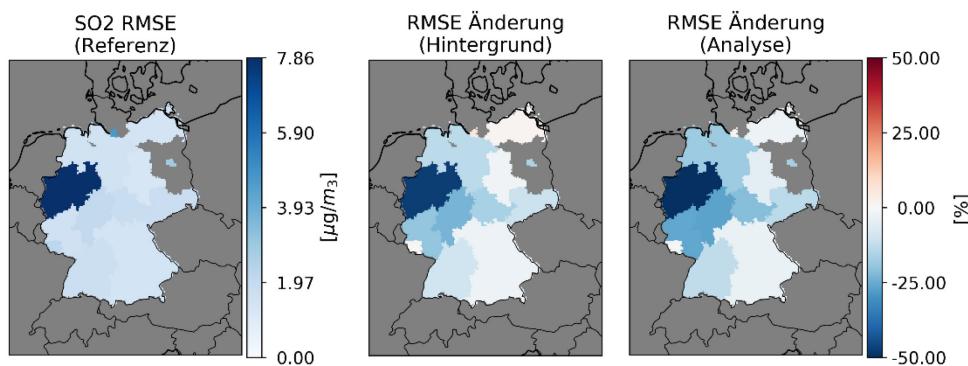
Abbildung 36 zeigt den Vergleich der simulierten SO₂-Tagesmittelwerte mit den Beobachtungen des Assimilations- und Validierungsdatensatzes. Es ist deutlich zu sehen, dass die Änderungen der Simulationen, die durch die Assimilation entstanden sind, einen größeren Einfluss auf die simulierten Konzentrationen an den Validierungsstationen haben als auf die SO₂-Konzentrationen an den Assimilationsstationen. Während die SO₂-Konzentrationen auch in der Analyse bei den Assimilationsstationen zum überwiegenden Teil die Beobachtungen unterschätzen, ist die Analyse an den Validierungsstationen zum Teil deutlich zu hoch (z. B. im Oktober und Dezember 2016). Ebenfalls kann man bei den Beobachtungen des Assimilationsdatensatzes eine höhere Variabilität erkennen als an den Validierungsstationen. Gleichzeitig zeigt der Assimilationsdatensatz generell höhere SO₂-Konzentrationen.

Abbildung 36: Vergleich der SO₂-Tagesmittelwerte



Vergleich der simulierten SO₂-Tagesmittelkonzentrationen des u15-Modellgitters mit den Beobachtungen des Validierungsdatensatzes für das Jahr 2016 in Irland. Gezeigt sind die simulierten Konzentrationen des Referenz- (grün) und des Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau). Oben: Vergleich mit dem Assimilationsdatensatz. Unten: Vergleich mit dem Validierungsdatensatz. Außerdem werden relevante statistische Größen angegeben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 37: SO₂-RMSE Evaluierung in Deutschland



Links: SO₂-RMSE pro Bundesland für 2016 des Referenzlaufes. Mitte: Änderung des RMSE im Hintergrundlauf. Rechts: Änderung des RMSE in der Analyse. Gezeigt sind die Ergebnisse an den Validierungsstationen im Vergleich zu den Simulationen des 5 km Modellgitters. Bundesländer ohne entsprechenden Beobachtungsdatensatz sind grau dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

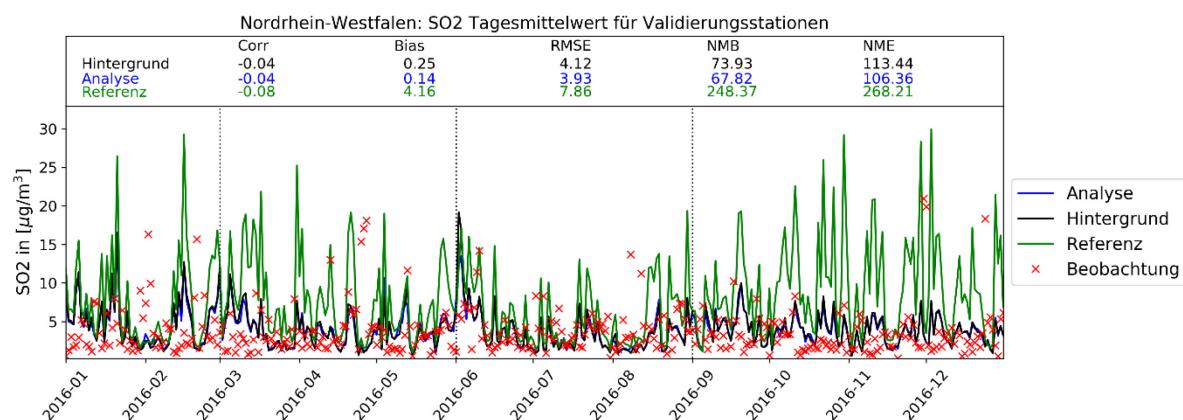
Abbildung 37 zeigt den RMSE-Vergleich der verschiedenen Simulationen für SO₂ mit den Validierungsstationen im Jahr 2016 auf Bundeslandebene. Die Analyse zeigt verbesserte RMSE-Werte, vor allem in Nordrhein-Westfalen (über -50 %), wo der RMSE des Referenzlaufes mit 8 µg/m³ am größten sind. Auch in anderen Bundesländern wird in der Analyse eine

Verbesserung des RMSE von ca. -25 % erreicht. Hamburg, Mecklenburg-Vorpommern, Thüringen, Saarland und Bayern haben eine etwas geringere Verbesserungen des RMSE von bis zu -10 %.

Beispielhaft zeigt Abbildung 38 den Vergleich der simulierten mit den beobachteten Tagesmittelkonzentrationen von SO₂ in Nordrhein-Westfalen für das Jahr 2016, gemittelt über alle Validierungsstationen. Die Verbesserung der Modellkonzentration der Analyse gegenüber des Referenzlaufs ist offensichtlich. Der Referenzlauf zeigt regelmäßige SO₂-Tagesmittelwerte von über 15 µg/m³, während derart hohe Konzentrationen nur selten beobachtet wurden. In der Analyse sind diese hohen Konzentrationen nicht zu sehen. Einzelne hohe beobachtete Konzentrationen sind nicht in der Analyse repräsentiert, werden in den meisten Fällen aber auch nicht durch den Referenzlauf abgebildet (z. B. Anfang Februar oder Ende April 2016). Diese hohen SO₂-Konzentrationen in den Beobachtungen müssen weiter analysiert werden, liegen vermutlich aber an besonderen meteorologischen Bedingungen, die ein Heruntermischen von Abgasfahnen in die unterste Atmosphärenschicht widerspiegeln. Auch wenn diese maximalen Konzentrationen nicht von der Analyse getroffen werden, zeigt die Analyse dennoch, dass die simulierten SO₂-Konzentrationen mit den Beobachtungen im Mittel gut übereinstimmen. Der Bias und RMSE sinken von 4,16 µg/m³ bzw. 7,86 µg/m³ im Referenzlauf auf 0,14 µg/m³ bzw. 3,93 µg/m³ in der Analyse.

In anderen, internen Untersuchungen im Rahmen des CAMS-Projektes (siehe Anhang B.2) wurde herausgefunden, dass gerade die SO₂-Konzentrationen stark von der vertikalen Verteilung der Emissionen abhängen. Die in diesem Projekt genutzte vertikalen Verteilparameter (siehe Kapitel 2.4.4) stimmen mit den optimalen Verteilparametern, die auch im CAMS-Projekt genutzt werden, überein. Nichtsdestotrotz stellen diese Parameter eine große Unsicherheit in der Simulation der SO₂-Konzentrationen dar.

Abbildung 38: SO₂-Konzentrationen in Nordrhein-Westfalen

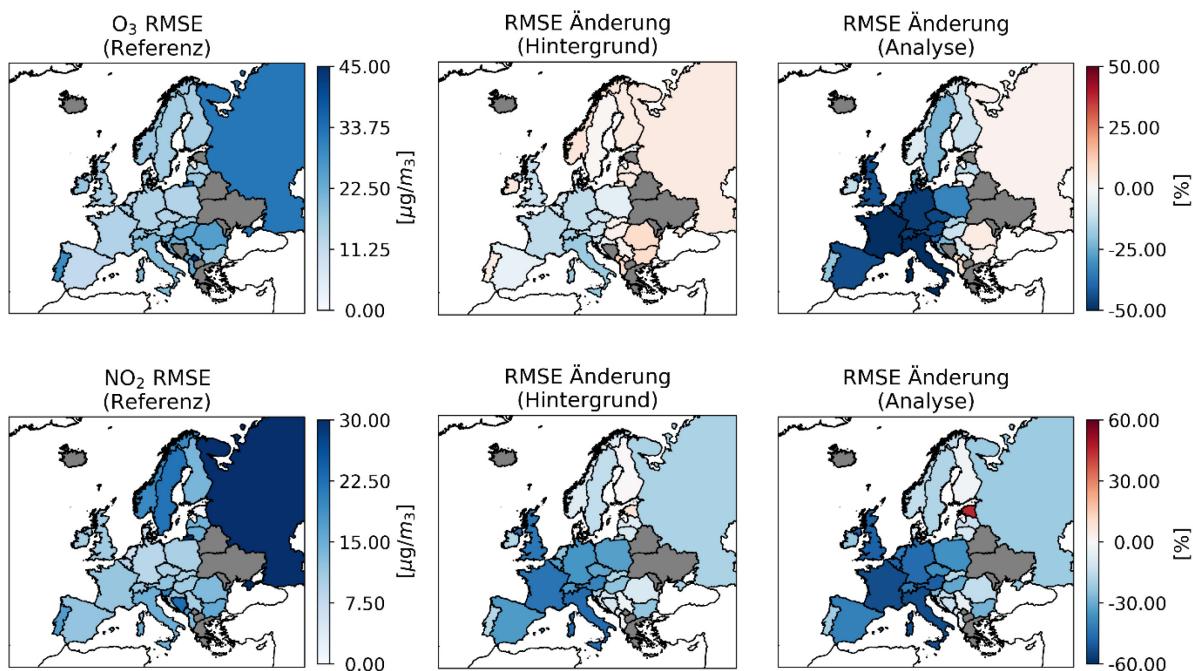


Vergleich der simulierten SO₂-Tagesmittelkonzentrationen in Nordrhein-Westfalen des u05-Modellgitters mit den Beobachtungen des Validierungsdatensatzes für das Jahr 2016. Gezeigt sind die simulierten Konzentrationen des Referenz (grün) und des Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau). Außerdem werden relevante statistische Größen für alle Simulationen angegeben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

4.1.3 NO₂- und O₃-Konzentrationen

NO₂ ist ein sehr kurzlebiges, reaktives Spurengas mit einer mittleren Verweildauer in der Atmosphäre von wenigen Stunden (Liu et al., 2016). Allerdings ist auch ein Ferntransport von NO₂ über sogenannte Reservoirspezies nicht auszuschließen. Gerade in dicht besiedelten Regionen ist NO₂ ein wichtiger Vorläuferstoff von O₃. Weitere Vorläuferstoffe von O₃ sind u. a. CO und VOCs.

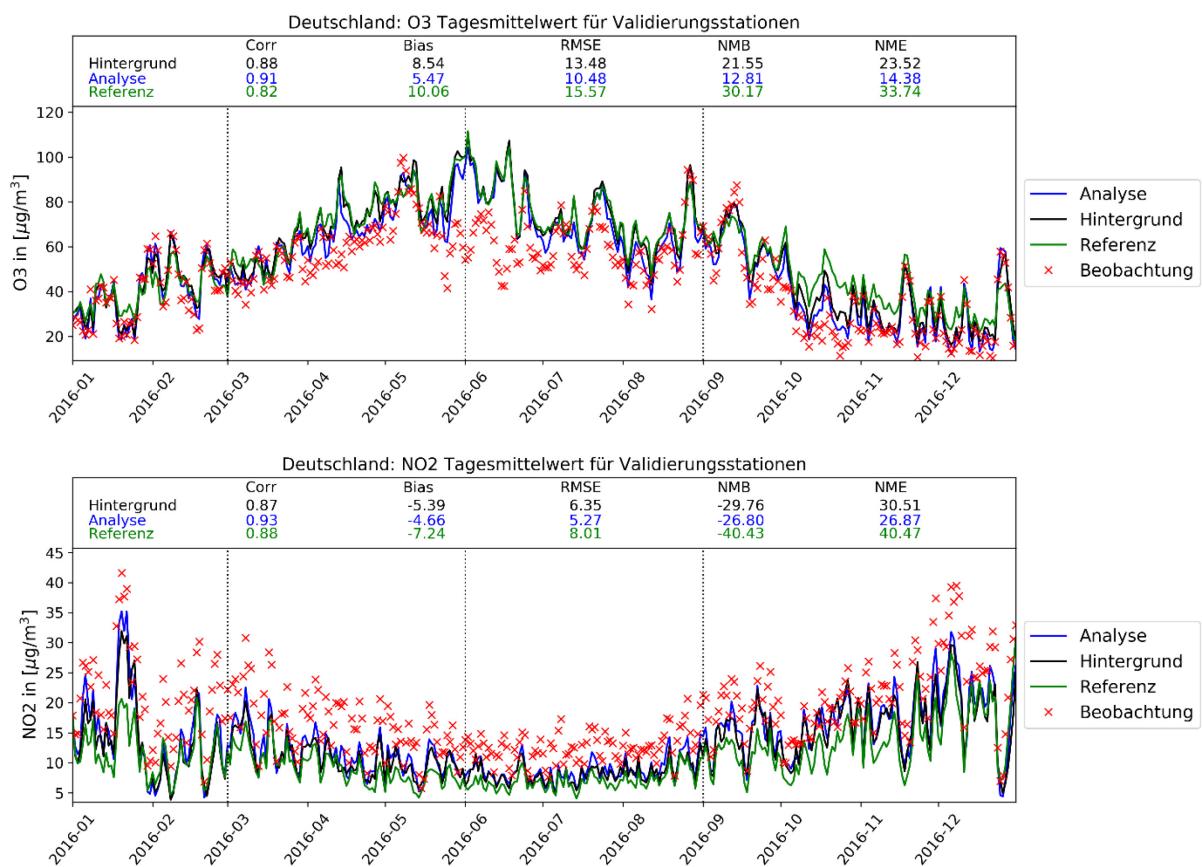
Abbildung 39: O₃- und NO₂-RMSE Evaluierung in Europa



Links: RMSE pro Land für 2016 des Referenzlaufs. Mitte: Änderung des RMSE im Hintergrundlauf. Rechts: Änderung des RMSE in der Analyse. Oben: RMSE-Daten bezogen auf O₃-Validierungsstationen. Unten: RMSE-Daten bezogen auf NO₂-Validierungsstationen. Länder ohne entsprechenden Beobachtungsdatensatz sind grau dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 39 zeigt den RMSE des Referenzlaufs für O₃ (oben) und NO₂ (unten) sowie dessen Änderungen im Hintergrundlauf und in der Analyse in Bezug auf die Validierungsstationen für 2016. Sowohl für O₃ als auch für NO₂ ist der RMSE des Referenzlaufs in Zentraleuropa mit ca. 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ vergleichsweise gering. Hingegen steigen die RMSE-Werte des Referenzlaufs in Südost- und Osteuropa teilweise auf über 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (O₃) bzw. über 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (NO₂) an. Die Analyse zeigt sowohl bei O₃ als auch bei NO₂ gerade in Zentraleuropa eine deutliche Reduktion des RMSE von über 45 %. Ferner ist die RMSE-Reduktion bei NO₂ im Hintergrundlauf bereits recht hoch, was auf einen starken Einfluss der Emissionskorrekturen auf die Modellkonzentrationen schließen lässt. So beträgt die RMSE-Reduktion in Frankreich im Hintergrundlauf -44 % und in der Analyse -53 %. Da O₃ nicht direkt emittiert wird, sind die RMSE-Änderungen im Hintergrundlauf auch nicht so deutlich wie in der Analyse. Beispielsweise wird der RMSE in Frankreich im Hintergrundlauf um -13 % und in der Analyse um -52 % reduziert. Hierbei geht die RMSE-Reduktion im Hintergrundlauf im Wesentlichen auf Korrekturen der Emissionen der Vorläuferstoffe zurück.

Abbildung 40: O₃- und NO₂-Tagesmittelkonzentrationen in Deutschland

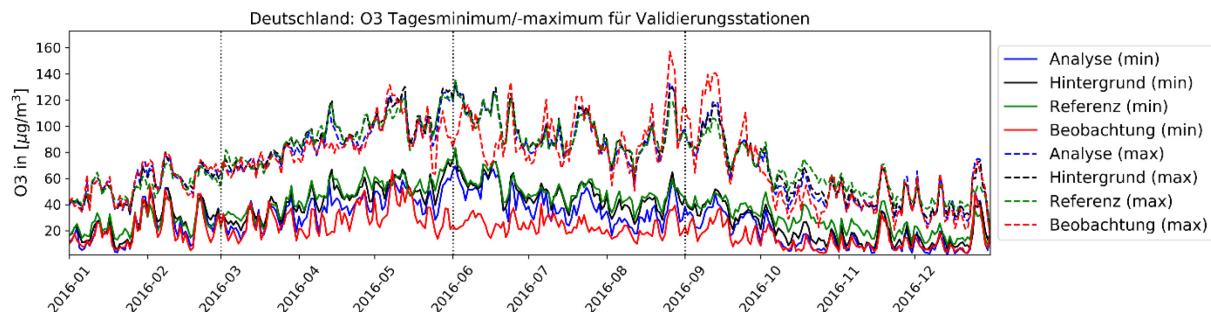


Vergleich der simulierten O₃- (oben) und NO₂-Tagesmittelkonzentrationen (unten) in Deutschland des u05-Modellgitters mit den Beobachtungen des Validierungsdatensatzes (rot) für das Jahr 2016. Gezeigt sind die simulierten Konzentrationen des Referenz- (grün) und des Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau). Außerdem werden relevante statistische Größen für alle Simulationen angegeben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 40 vergleicht die simulierten und beobachteten Zeitreihen der Tagesmittelwerte von O₃ und NO₂ in Deutschland an den Validierungsstationen für das Jahr 2016. Ein Vergleich mit den Assimilationsstationen zeigt (hier nicht dargestellt), dass die O₃- und NO₂-Konzentrationen in der Regel nicht von dem Repräsentativitätsproblem betroffen sind wie die CO- und SO₂-Konzentrationen. Die NO₂-Konzentrationen werden mit einem Bias von -7,74 µg/m³ im Referenzlauf im Mittel unterschätzt. Die O₃-Konzentrationen werden hingegen mit einem Bias von 10,06 µg/m³ im Referenzlauf im Mittel überschätzt. In der Analyse wird der Bias der NO₂- bzw. O₃-Konzentrationen auf -4,66 µg/m³ bzw. 5,47 µg/m³ reduziert. Während die Unterschätzung der NO₂-Konzentrationen systematisch für die ganze Zeitreihe gilt, lassen sich bei den simulierten Zeitreihen der O₃-Konzentrationen verschiedene Episoden identifizieren, in denen die Modellkonzentrationen die Beobachtungen weit übersteigen. Beispielsweise werden im Modell von Ende Mai bis Anfang Juni 2016 Tagesmittelwerte von O₃ von etwa 80 µg/m³ bis über 100 µg/m³ simuliert, während die beobachteten Tagesmittelwerte im Bereich von 40 µg/m³ bis 80 µg/m³ liegen. Besonders bemerkenswert ist hierbei, dass die Simulationen und Beobachtungen in dieser Episode antikorreliert sind, d. h. die Modelle simulieren hohe Konzentrationen von über 100 µg/m³ in den Zeiten, in denen die Beobachtungen niedrige O₃-Konzentrationen von ca. 40 µg/m³ anzeigen. Ferner zeigen sowohl der Hintergrundlauf als auch die Analyse in diesen Episoden keine Verbesserung der gemittelten O₃-Konzentrationen. Da die Analyse im Juni neu gestartet wurde (siehe Kapitel 3.4), können Emissionskorrekturen der O₃-

Vorläuferstoffe als Ursache ausgeschlossen werden. Ebenso lässt sich in den simulierten NO₂-Konzentrationen keine entsprechende Episode identifizieren.

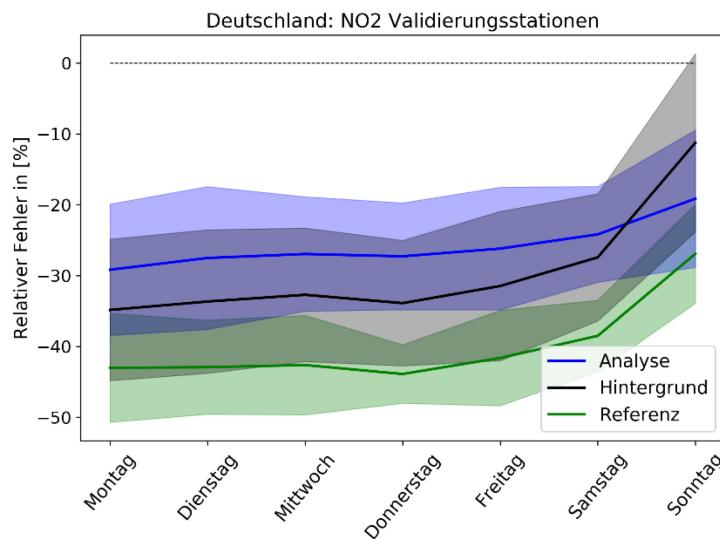
Abbildung 41: Zeitreihe der O₃-Tagesmaxima und -minima für Deutschland



Vergleich der simulierten O₃-Tagesminimum- (durchgezogene Linie) und -Tagesmaximumkonzentrationen (gestrichelte Linie) in Deutschland des u05-Modellgitters mit den Beobachtungen des Validierungsdatensatzes (rot) für das Jahr 2016. Gezeigt sind die simulierten Konzentrationen des Referenz- (grün) und des Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 41 zeigt die Zeitreihen der Tagesminimum- bzw. -maximumkonzentrationen von O₃ der Modellsimulationen und Beobachtungen an den Validierungsstationen in Deutschland für 2016. Typischerweise haben die O₃-Konzentrationen ihr Minimum in den frühen Morgenstunden kurz vor Sonnenaufgang, wenn die nächtliche O₃-Chemie einen Großteil des O₃ abgebaut hat. Die O₃-Maximalkonzentrationen werden hingegen am Nachmittag gemessen, wenn die sonnengetriebene O₃-Produktion über den Tag hinweg erfolgte. Abbildung 41 zeigt eine stärkere Überschätzung der Tagesminima von etwa Mitte März bis Mitte November 2016. Vor allem im Sommer werden Differenzen von etwa 20 µg/m³ zwischen dem Referenzlauf und den Beobachtungen gezeigt. Diese großen Differenzen beschränken sich nicht nur auf die angesprochenen Episoden, sondern sind systematisch über den Sommer verteilt relativ konstant. Dies steht im Kontrast zu den Fehlern bei den Tagesmaxima, die außerhalb der angesprochenen Episoden vernachlässigbar gering sind. Die Episode Ende Mai bis Anfang Juni 2016 war durch ausgeprägte konvektive Ereignisse geprägt (Abbildung 96 zeigt beispielhaft die Analyse des Modellwetters des GFS-Modells am 28.05.2016, 12 UTC). Diese sind auch in der 5 km-Auflösung nicht explizit zu berechnen, sodass sie durch Parametrisierungen repräsentiert werden. Die hohen simulierten Tagesmaxima können durch die Fehler in der Meteorologie entstehen. Sofern konvektive Ereignisse nicht im Modell simuliert werden, ist die solare Einstrahlung und somit auch die O₃-Produktion deutlich stärker als die gemessene. In der Nacht können diese hohen Konzentrationen nicht ausreichend abgebaut werden, sodass die O₃-Konzentrationen auf erhöhtem Niveau bleiben. Die generelle Überschätzung der Tagesminima im Sommer 2016 basieren im Wesentlichen auf der Überschätzung der Konzentrationen an urbanen und suburbanen Beobachtungsstationen. An ländlich-regionalen Stationen werden die O₃-Tagesminima hingegen außerhalb der angesprochenen Episoden gut getroffen. Der Vergleich der O₃-Tagesmaxima und -minima an den verschiedenen Stationstypen ist in Abbildung 97 zusammengefasst.

Abbildung 42: Wochengang des relativen NO₂-Fehlers in Deutschland



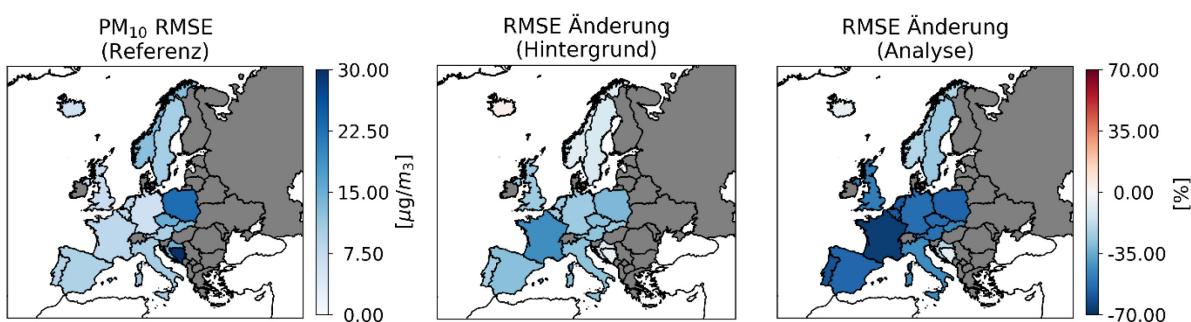
Mittlerer Wochengang des relativen Fehlers der NO₂-Konzentrationen in Bezug auf die Validierungsstationen für das Jahr 2016. Die Schattierung zeigt die Standardabweichung um den Mittelwert an. Die Modellsimulationen des Referenz- (grün) und Hintergrundlaufs (schwarz) und der Analyse (blau) sind mit dem 5 km-Modellgitter erstellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 42 zeigt den mittleren Wochengang des relativen Fehlers der simulierten NO₂-Konzentrationen über alle Validierungsstationen in Deutschland für das Jahr 2016. Die Reduktion des relativen Fehlers im Hintergrundlauf und in der Analyse von mehr als -40 % im Referenzlauf auf -35 % bzw. weniger als -30 % ist während der Wochentage zu sehen. In allen drei Simulationen nimmt der relative Fehler am Wochenende ab und reduziert sich auf -30 % (Referenzlauf) bis -10 % (Hintergrundlauf). Der Wochengang des relativen Fehlers spiegelt wider, dass die NO₂-Konzentrationen am Wochenende besser simuliert werden als an den Wochentagen. Als größter NO₂-Emittent ist der Straßenverkehr die größte Unsicherheitsquelle der NO₂-Emissionen. Somit lässt sich darauf schließen, dass die NO₂-Emissionen, vor allem die des Straßenverkehrs, die Realität besser am Wochenende repräsentieren als während der Wochentage. Dies wird dadurch gestützt, dass bei den anderen analysierten Spezies kein Trend zu erkennen ist, der mit dem mittleren Wochengang des relativen Fehlers der NO₂-Konzentrationen vergleichbar ist. Zur Verdeutlichung ist in Abbildung 98 im Anhang beispielhaft der mittlere Wochengang des relativen Fehlers der CO-Konzentrationen an deutschen Validierungsstationen gezeigt.

4.1.4 PM₁₀- und PM_{2,5}-Konzentrationen

Abbildung 43 zeigt den RMSE der PM₁₀-Konzentrationen des Referenzlaufs (links) für das Jahr 2016 gemittelt über alle Validierungsstationen pro Land. Des Weiteren werden die Änderungen des RMSE der PM₁₀-Konzentrationen durch den Hintergrundlauf (Mitte) und der Analyse (rechts) gezeigt. Der RMSE der PM₁₀-Konzentrationen des Referenzlaufs weist überwiegend Werte von 10 µg/m³ auf, teilweise aber auch höher (Polen, Bosnien-Herzegowina). Durch die Assimilation wird der RMSE um bis zu 67 % (Frankreich) reduziert. Generell ist die RMSE-Reduktion in der Analyse stärker als im Hintergrundlauf. Für Deutschland ergeben sich RMSE-Verringerungen von 24% im Hintergrundlauf und von 52 % im Analyselauf. Auffällig ist die starke Verbesserung der Fehler durch die Analyse, d.h. in der Regel haben die Anfangswertkorrekturen einen größeren Einfluss.

Abbildung 43: PM₁₀-RMSE Evaluierung in Europa



Links: RMSE des Referenzlaufs gemittelt über alle Validierungsstationen je Land für das gesamte Jahr 2016. Mitte: Relative Änderung des RMSE im Hintergrundlauf. Rechts: Relative Änderung des RMSE in der Analyse. Wenn keine Beobachtungsdaten verfügbar sind, werden die Länder in grau dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Tabelle 10: Bias der PM₁₀-Konzentrationen in Europa

Bias der Tagesmittelwerte der PM₁₀-Konzentrationen für das Jahr 2016 gemittelt über alle Validierungsstationen des jeweiligen Landes für das u15-Modellgitter.

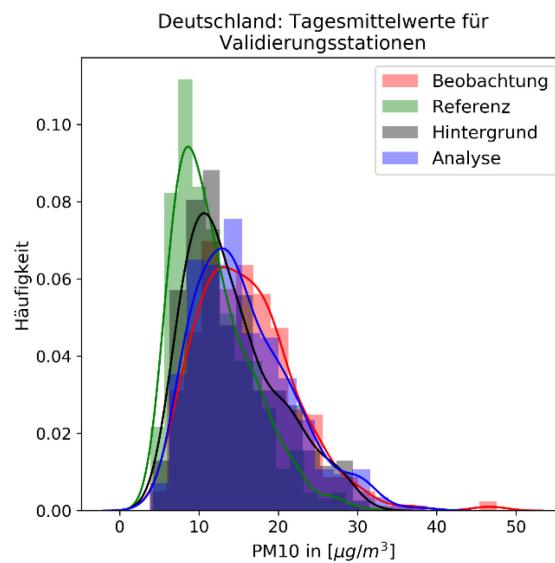
	Referenz	Hintergrund	Analyse	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung
Österreich	-7,68 µg/m ³	-3,62 µg/m ³	-2,49 µg/m ³	-53 %	-67 %
Belgien	-5,75 µg/m ³	-3,01 µg/m ³	-0,74 µg/m ³	-48 %	-87 %
Bosnien- Herzegowina	-41,02 µg/m ³	-37,89 µg/m ³	-36,20 µg/m ³	-8 %	-12 %
Kroatien	-7,26 µg/m ³	-1,74 µg/m ³	0,06 µg/m ³	-76 %	-99 %
Tschechien	-11,39 µg/m ³	-6,51 µg/m ³	-4,16 µg/m ³	-43 %	-63 %
Frankreich	-7,16 µg/m ³	-3,48 µg/m ³	-1,67 µg/m ³	-51 %	-77 %
Deutschland	-4,04 µg/m ³	-0,91 µg/m ³	0,13 µg/m ³	-77 %	-97 %
Großbritannien	-5,91 µg/m ³	-3,52 µg/m ³	-2,62 µg/m ³	-40 %	-57 %
Island	0,69 µg/m ³	-2,04 µg/m ³	0,62 µg/m ³	+96 %	-10 %
Italien	-8,50 µg/m ³	-4,01 µg/m ³	-2,21 µg/m ³	-53 %	-74 %
Niederlande	-6,72 µg/m ³	-3,83 µg/m ³	-1,70 µg/m ³	-43 %	-75 %
Norwegen	-10,24 µg/m ³	-8,94 µg/m ³	-7,39 µg/m ³	-13 %	-28 %

	Referenz	Hintergrund	Analyse	Hintergrund rel. Änderung	Analyse rel. Änderung
Polen	-18,37 µg/m ³	-11,49 µg/m ³	-6,59 µg/m ³	-37 %	-64 %
Portugal	-7,28 µg/m ³	-4,55 µg/m ³	-1,71 µg/m ³	-38 %	-77 %
Slowakei	-10,39 µg/m ³	-5,75 µg/m ³	-3,45 µg/m ³	-45 %	-67 %
Spanien	-7,91 µg/m ³	-4,19 µg/m ³	-1,99 µg/m ³	-47 %	-75 %
Schweden	-6,40 µg/m ³	-4,57 µg/m ³	-3,17 µg/m ³	-29 %	-50 %

Tabelle 10 fasst den Bias der modellierten PM₁₀-Konzentrationen (Tagesmittelwerte) der verschiedenen Länder zusammen. Im Referenzlauf werden die PM₁₀-Konzentrationen im Tagesmittel unterschätzt. Dieser negative Bias wird durch den Hintergrundlauf und die Analyse deutlich reduziert. Die Ergebnisse verdeutlichen, dass die Korrektur von PM₁₀-Anfangswerten und Emissionsraten zu deutlich verbesserten modellierten Konzentrationen führen. So wurde der Bias der täglich gemittelten PM₁₀-Konzentrationen in Deutschland in der Analyse um 97 % reduziert. Auch in den übrigen Ländern liegt die relative Änderung des Bias bei über 50 %, in acht Ländern (Belgien, Kroatien, Frankreich, Deutschland, Italien, Niederlande, Portugal, Spanien) sogar bei über 74 %. Geringere Verbesserungen der PM₁₀-Konzentrationen sind in Ländern zu finden, in denen weniger Beobachtungen verfügbar sind (Island, Norwegen, Schweden). Bosnien-Herzegowina hat den größten Bias im Referenzlauf (-41,02 µg/m³). Durch diesen großen Bias wird die BLUE-Annahme in der 4D-var Methode verletzt, die erfordert, dass die Beobachtungen und die Simulationen keinen systematischen Fehler aufweisen. In diesem Fall kann nicht erwartet werden, dass die Methode die Modellkonzentrationen zufriedenstellend korrigieren kann.

Abbildung 44 zeigt die Häufigkeitsverteilung der PM₁₀-Tagesmittel-Konzentrationen an allen Validierungsstationen in Deutschland für die Beobachtungen und die drei Simulationen mit dem u05-Modellgebiet. Während die Beobachtungen ein breites Maximum der PM₁₀-Konzentrationen zwischen 10 µg/m³ und 20 µg/m³ mit der Spitze bei 13 µg/m³ haben, liegt das Maximum im Referenzlauf bei ca. 8 µg/m³. Des Weiteren zeigt die Häufigkeitsverteilung eine deutliche Unterschätzung hoher Konzentrationen im Referenzlauf. Der Hintergrundlauf sowie die Analyse zeigen eine gute Übereinstimmung der Häufigkeit hoher Tagesmittelkonzentrationen bei PM₁₀. Das Maximum in der Verteilung erhöht sich im Hintergrundlauf auf ca. 11 µg/m³ und in der Analyse auf 13 µg/m³ und zeigt ein flacheres und breiteres Maximum als der Referenzlauf. Während im Hintergrundlauf moderate Tagesmittelkonzentrationen um 20 µg/m³ zu selten und um 10 µg/m³ etwas zu häufig modelliert werden, spiegelt die Analyse die Verteilung der Tagesmittelkonzentrationen sehr gut wider, insbesondere für hohe Tagesmittelkonzentrationen.

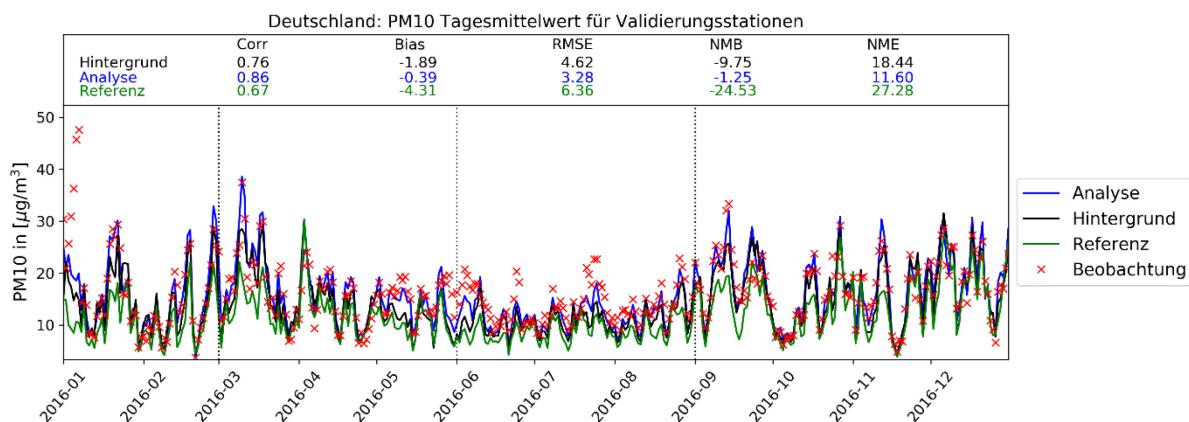
Abbildung 44: Häufigkeitsverteilung der PM₁₀-Konzentrationen in Deutschland



Häufigkeitsverteilung der PM₁₀-Tagesmittelkonzentrationen aller Validierungsstationen in Deutschland. Dargestellt sind die PM₁₀-Tagesmittelwerte der Beobachtungen (rot), des Referenzlaufs (grün), des Hintergrundlaufs (schwarz) und der Analyse (blau). Die simulierten Konzentrationen stammen vom u05-Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 45 zeigt den Vergleich der simulierten Tagesmittelkonzentrationen von PM₁₀ mit den Beobachtungen. Die Analyse zeigt vor allem bei höheren Tagesmittelkonzentrationen von PM₁₀ eine gute Übereinstimmung und deutliche Verbesserungen gegenüber dem Referenzlauf. Eine Ausnahme bilden die hohen beobachteten PM₁₀-Konzentrationen Anfang Januar 2016. Diese hohen PM₁₀-Konzentrationen wurden hauptsächlich im Nordosten Deutschland beobachtet und wurden aus Polen nach Deutschland transportiert. Diese hohen Konzentrationen sind im Spin-up der Analyse nicht repräsentiert, weshalb hier die Modelle deutlich unterschätzen. Im Allgemeinen bestätigt Abbildung 45 die Ergebnisse von Abbildung 44 und zeigt, dass die simulierten Konzentrationen (vor allem der Analyse) auch in der zeitlichen Verteilung gut mit den Beobachtungen übereinstimmen. So liegt die Korrelation zwischen den Beobachtungen und der Analyse zum Beispiel bei 0,86, im Vergleich zu 0,67 im Referenzlauf. Die Ergebnisse belegen, dass die Analyse eine gute Grundlage bietet, die PM₁₀-Konzentrationen im Jahr 2016 in Deutschland zuverlässig zu analysieren.

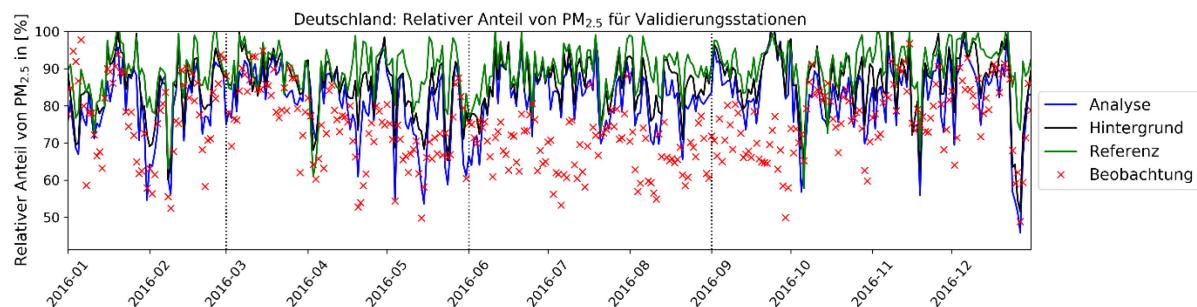
Abbildung 45: Vergleich der PM₁₀-Tagesmittelwerte in Deutschland



Vergleich der PM₁₀-Tagesmittelkonzentrationen für 2016 gemittelt über alle Validierungsstationen in Deutschland der Beobachtungen (rot) mit dem Referenz- (grün) und Hintergrundlauf (schwarz) sowie der Analyse (blau). Ergebnisse des u05-Modellgitters werden als Linie dargestellt. Außerdem werden relevante statistische Größen angegeben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

In Ergänzung zu den PM₁₀-Konzentrationen wird im Folgenden die simulierte PM_{2.5}-Konzentration mit den Beobachtungen verglichen. Abbildung 46 zeigt den relativen Anteil von PM_{2.5}-an den gesamten PM₁₀-Tagesmittelkonzentrationen gemittelt über alle Validierungsstationen in Deutschland für 2016. Die Abbildung zeigt eine systematische Überschätzung des PM_{2.5}-Anteils an den PM₁₀-Konzentrationen für alle simulierten Zeitreihen, was darauf schließen lässt, dass der Anteil der sekundär gebildeten Aerosole im EURAD-IM höher ist als in den Beobachtungen. Während bei den Beobachtungen im Mittel 74 % der PM₁₀-Konzentrationen auf PM_{2.5} entfallen, liegt der Anteil beim Referenzlauf und Hintergrundlauf bei 89 % bzw. 86 %. Der PM_{2.5}-Anteil wird in der Analyse auf 82 % reduziert und zeigt somit eine bessere Zusammensetzung der gesamten PM₁₀-Konzentrationen bezogen auf die Größenverteilung im Vergleich zum Referenzlauf. Somit ist die Assimilation von PM₁₀- und PM_{2.5}-Beobachtungen geeignet, die Zusammensetzung der PM₁₀-Konzentrationen in Bezug auf die Teilchengrößenverteilung zu korrigieren. Vor allem im Sommer liegt eine große Diskrepanz der simulierten Werte zu den Beobachtungen vor. Dies lässt darauf schließen, dass die in der Analyse vernachlässigten SOA (sekundär organische Aerosole), die wesentlich von VOCs gebildet werden, einen großen Einfluss auf die Fehler in der Größenverteilung der Aerosole haben. Allerdings wird diese verbesserte Teilchengrößenverteilung nicht an den Hintergrundlauf des nächsten Tages weitergegeben, was an der nur kleinen Verbesserung der PM-Zusammensetzung des Hintergrundlaufs im Vergleich zum Referenzlauf zu sehen ist. Dies ist bemerkenswert, da die PM₁₀-Konzentrationen des Hintergrundlaufs von der Analyse des Vortages profitiert.

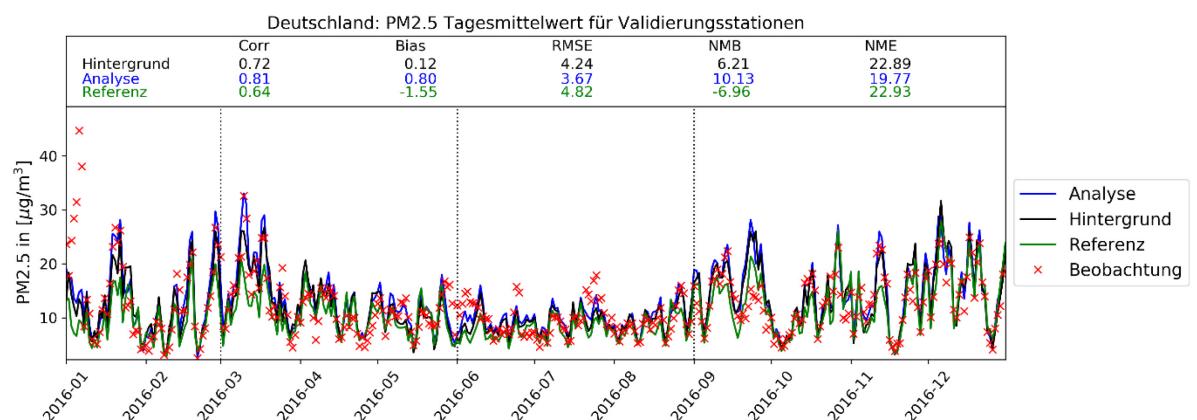
Abbildung 46: Relativer Anteil der PM_{2,5}-Konzentrationen an den PM₁₀-Konzentrationen



Relativer Anteil der PM_{2,5}-Konzentrationen an den gesamten PM₁₀-Konzentrationen für das Jahr 2016. Die Zeitreihen zeigen Tagesmittelwerte gemittelt über alle Validierungsstationen in Deutschland für das u05-Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Um diesen Umstand näher zu analysieren, sind in Abbildung 47 die Zeitreihen der Modellsimulationen (u05-Modellgitter) und der Beobachtung der PM_{2,5}-Tagesmittelwerte gemittelt über alle Validierungsstationen in Deutschland für 2016 dargestellt. Im Vergleich zu den PM₁₀-Tagesmittelkonzentrationen (Abbildung 45) werden die PM_{2,5}-Konzentrationen in den Simulationen des Hintergrundlaufs und der Analyse weniger stark korrigiert. So ist der normierte mittlere Fehler (NME) mit 22,89 % für PM_{2,5}-Konzentrationen im Hintergrundlauf vergleichbar mit dem Referenzlauf (22,93 %). Der normierte mittlere Fehler der PM₁₀-Konzentrationen reduziert sich hingegen von 27,28 % im Referenzlauf auf 18,44 % im Hintergrundlauf. Im Wesentlichen ist dies darin begründet, dass die PM_{2,5}-Konzentrationen generell einen geringeren Fehler aufweisen als die PM₁₀-Konzentrationen (siehe auch den normierten Bias NMB in Abbildung 45 und Abbildung 47).

Abbildung 47: Vergleich der PM_{2,5}-Konzentrationen in Deutschland

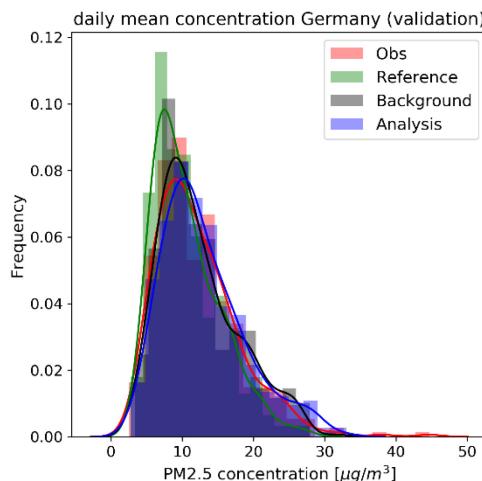


Vergleich der PM_{2,5}-Tagesmittelkonzentrationen für 2016 gemittelt über alle Validierungsstationen in Deutschland der Beobachtungen (rot) mit dem Referenz- (grün) und dem Hintergrundlauf (schwarz) sowie der Analyse (blau) des u05-Modellgitters. Außerdem werden relevante statistische Größen aller Simulationen angegeben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Dies wird durch die Häufigkeitsverteilung der Tagesmittelkonzentrationen von PM_{2,5} für alle Validierungsstationen in Deutschland für 2016 in Abbildung 48 bestätigt. Im Vergleich zur Häufigkeitsverteilung der PM₁₀-Tagesmittelkonzentrationen in Abbildung 44 stimmen die simulierten PM_{2,5}-Tagesmittelkonzentrationen des Referenzlaufs gut mit den Beobachtungen überein. In der Analyse sieht man nur leichte Überschätzungen der PM_{2,5}-Tagesmittelkonzentrationen kleiner als 10 µg/m³ und größer als 20 µg/m³. Auch wenn hohe

Konzentrationen von mehr als $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ der Analyse häufiger simuliert werden als im Referenzlauf und somit besser zu den Beobachtungen passen, werden Konzentrationen zwischen $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Vergleich zu den Beobachtungen zu häufig simuliert.

Abbildung 48: Häufigkeitsverteilung der PM_{2.5}-Konzentrationen in Deutschland



Häufigkeitsverteilung der PM_{2.5}-Tagesmittelkonzentrationen aller Validierungsstationen in Deutschland für 2016. Dargestellt sind die PM_{2.5}-Tagesmittelwerte der Beobachtungen (rot), des Referenz- (grün) und Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau). Die simulierten Konzentrationen stammen vom u05-Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Somit lässt sich abschließend sagen, dass die Aerosol-Konzentrationen im Allgemeinen realistischer durch die Analyse simuliert werden. Allerdings wird der Anteil kleinerer Partikel an den PM₁₀-Konzentrationen systematisch überschätzt. Dies deutet auf einen zu hohen Anteil sekundärer Bestandteile an den Aerosol-Konzentrationen hin.

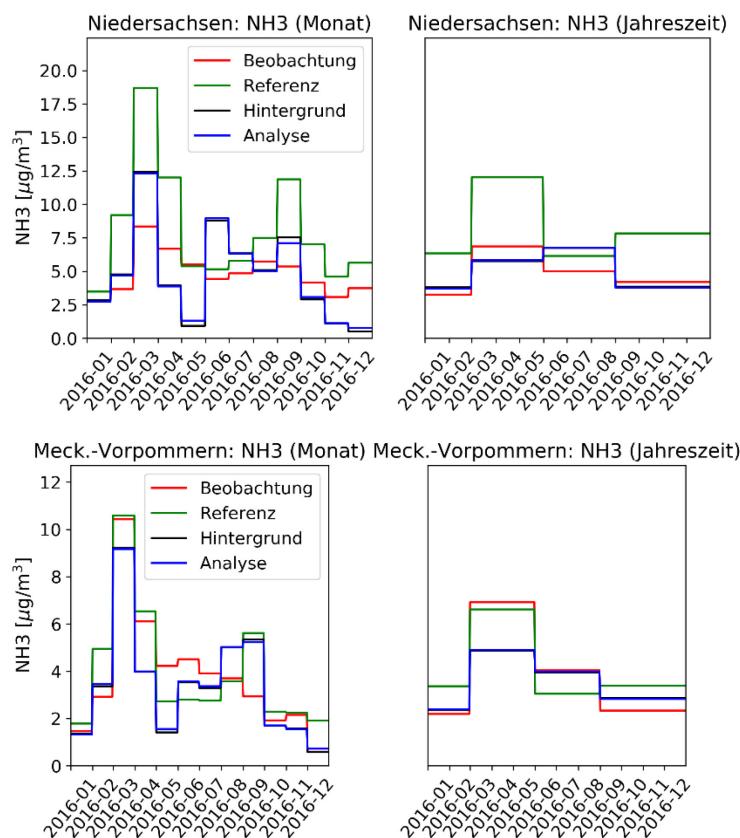
4.1.5 NH₃-Konzentrationen

In-situ NH₃-Beobachtungen liegen als Wochen- oder Monatsmittelwerte an den Stationen vor, die in Abbildung 14 gezeigten sind. Die Beobachtungsdichte ist vor allem in Niedersachsen und Mecklenburg-Vorpommern groß, wobei die Hauptemissionsquellen für NH₃ in Niedersachsen liegen. Weitere dichte Beobachtungsnetze liegen in Sachsen und Bayern vor.

An dieser Stelle wird nochmals darauf hingewiesen, dass die in Kapitel 2.2 beschriebene 4D-var Methode in der Lage ist, NH₃-Emissionen und -Anfangswerte zu optimieren, obwohl keine NH₃-Beobachtungen in den Assimilationsprozess eingebunden sind. Der folgende Vergleich zeigt also einen Vergleich mit unabhängigen Beobachtungen der nicht-beobachteten Spezies NH₃.

Abbildung 49 zeigt den Vergleich der NH₃-Konzentrationen im Monatsmittel zwischen den Beobachtungen und den verschiedenen Modellsimulationen des 5 km-Modellgitters, gemittelt über Beobachtungsstationen in Niedersachsen und Mecklenburg-Vorpommern. Der Vergleich des Referenzlaufs (grün) mit den Beobachtungen (rot) zeigt, dass der Jahresgang der Konzentrationen in Niedersachsen ähnlich ist. Nach dem Maximum der Monatsmittelwerte im März nehmen die NH₃-Konzentrationen bis zum Sommer ab. Im August und September zeigen die NH₃-Monatsmittelwerte ein zweites, etwas schwächeres Maximum. Allerdings sind die simulierten NH₃-Konzentrationen des Referenzlaufs an den zwei Maxima ungefähr um einen Faktor 2 größer als die beobachteten NH₃-Konzentrationen. Vor allem im Sommer fällt diese Differenz zwischen simulierten und beobachteten Konzentrationen geringer aus ($\sim 1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), zeigt im Winter jedoch wieder einen Faktor von ungefähr 2.

Abbildung 49: Vergleich der NH₃-Monatsmittelkonzentrationen in Niedersachsen und Mecklenburg-Vorpommern



Vergleich der beobachteten NH₃-Konzentrationen (rot) mit den simulierten Zeitreihen des Referenz- (grün) und Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau) des u05-Modellgitters für das Jahr 2016. Oben: Mittelwert über alle Stationen in Niedersachsen; unten: Mittelwert über alle Stationen in Mecklenburg-Vorpommern; links: Monatsmittelwerte; rechts: Mittelwerte der vier Analyseabschnitte wie in Kapitel 3.4 beschrieben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Der Vergleich der beobachteten NH₃-Monatsmittelwerte mit den simulierten Monatsmittelwerten des Referenzlaufs in Mecklenburg-Vorpommern ist hingegen unterschiedlich. Die simulierten Zeitreihen zeigen, wie in Niedersachsen, ein Maximum im März und ein schwächeres Maximum im September, wohingegen die Beobachtungen nur ein Maximum im März zeigen und die Konzentrationen im Laufe des Jahres abnehmen. Das Maximum im März beträgt in beiden Zeitreihen ca. 11 µg/m³. Während die simulierten NH₃-Konzentrationen in Niedersachsen ganzjährig über den beobachteten Konzentrationen liegen, sind die simulierten NH₃-Konzentrationen des Referenzlaufs im Sommer 2016 in Mecklenburg-Vorpommern etwa um einen Faktor 1,5 zu gering. Dies deutet auf eine fehlerhafte zeitliche Verteilung der NH₃-Emissionen für 2016 hin. Allerdings sind die NH₃-Emissionen stark witterungsabhängig aufgrund ihres starken Zusammenhangs mit der Feldbewirtschaftung. Daher sind die festen zeitlichen Verteilfunktionen der Emissionen generell mit großen Unsicherheiten behaftet.

Die Analyse produziert im jahreszeitlichen Mittel verbesserte Ergebnisse gegenüber dem Referenzlauf. Allerdings wird das Maximum im Frühling in Mecklenburg-Vorpommern (Abbildung 49 unten rechts) in der Analyse stark gedämpft, was durch die fehlende Beschränkung durch Beobachtungen in der Assimilation, den Einfluss von Aerosolbeobachtungen und deren Differenz zu den Beobachtungen (vor allem in Polen) sowie durch Transporteffekte verursacht sein könnte.

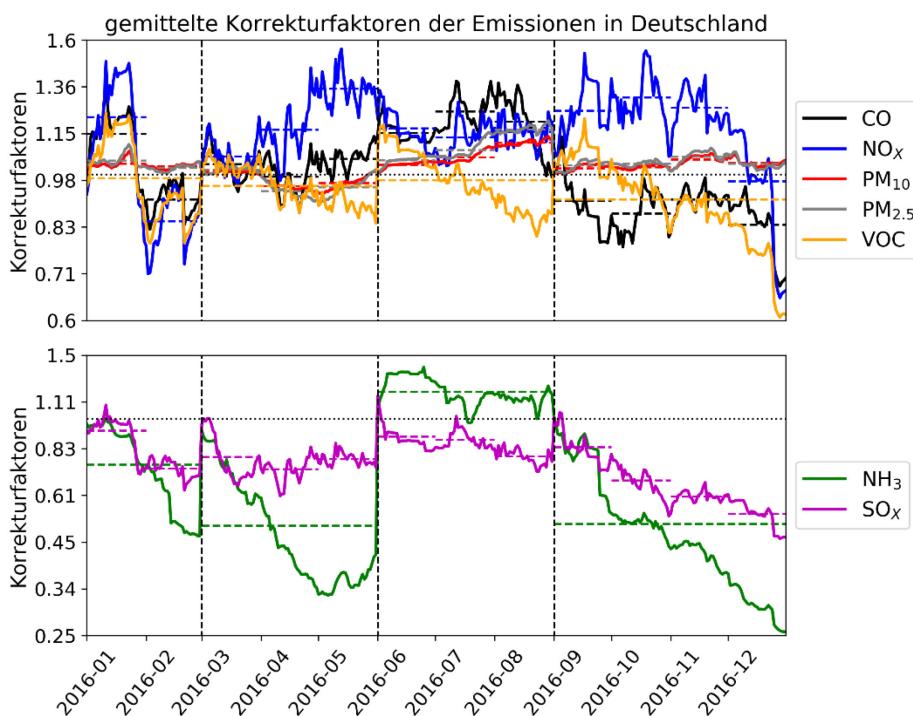
Der Vergleich zwischen beobachteten und simulierten NH₃-Konzentrationen in den Bundesländern Bayern, Nordrhein-Westfalen, Sachsen und Rheinlandpfalz sowie an den Stationen des Umweltbundesamtes ist in Abbildung 95 im Anhang hinterlegt. Im Wesentlichen ähneln die Zeitreihen denen in Abbildung 49. Die Zeitreihen in Sachsen passen zu den Zeitreihen in Mecklenburg-Vorpommern, während alle anderen Zeitreihen ähnlich zu denen in Niedersachsen sind. Die Ähnlichkeit zwischen den Zeitreihen der NH₃-Konzentrationen in Mecklenburg-Vorpommern und Sachsen deutet auf einen Einfluss von Aerosolbeobachtungen in Polen hin, was auch die Überkorrektur (Reduktion) der simulierten Maximalkonzentrationen von NH₃ erklären würde. Unter Berücksichtigung der Ergebnisse für alle Bundesländer lassen sich drei generelle Aussagen über die NH₃-Konzentrationen treffen:

1. Die simulierten NH₃-Konzentrationen des Referenzlaufs sind zu hoch;
2. Der Unterschied zwischen den NH₃-Konzentrationen im Referenzlauf und den Beobachtungen ist im Sommer niedriger als in den übrigen Jahreszeiten.
3. Die Analyse zeigt deutlich verbesserte NH₃-Konzentrationen als der Referenzlauf.

4.2 Analyse der Emissionskorrekturen

Die Korrekturfaktoren der Emissionen zeigen sowohl eine räumliche als auch eine zeitliche Variabilität. Daher ist eine pauschale Analyse der Qualität der Korrekturfaktoren, vor allem unter Berücksichtigung der zum Teil längeren Verweildauer der Spezies in der Atmosphäre und der zum Teil schlechten Beobachtungslage (wie etwas bei CO) schwierig. Allerdings ist auch zu bemerken, dass die 4D-var Methode, die der Analyse zugrunde liegt, eine Analyse der Emissionen von unbeobachteten oder wenig beobachteten Spezies ermöglicht. An dieser Stelle wird darauf hingewiesen, dass die Emissionskorrekturfaktoren für die gesamte Emissionsmenge, die sich aus anthropogenen und biogenen Emissionen zusammensetzt, berechnet werden. Eine Unterscheidung bzw. Ableitung des anthropogenen und biogenen Anteils ist nicht möglich. Wie jedoch bereits in Kapitel 2.5 diskutiert wurde, ist der biogene Anteil an den Gesamtemissionen in der Regel klein (vor allem in Zentraleuropa). Daher wird angenommen, dass die Emissionskorrekturfaktoren den anthropogenen Emissionen zuzuordnen sind. Einzig in ländlicheren Regionen ist diese Zuordnung mit größeren Unsicherheiten belegt. Allerdings ist der Einfluss auf die Gesamtemissionen durch den niedrigen biogenen Anteil als gering zu beurteilen.

Abbildung 50: Räumlich gemittelte Zeitreihen der Emissionskorrekturen für Deutschland



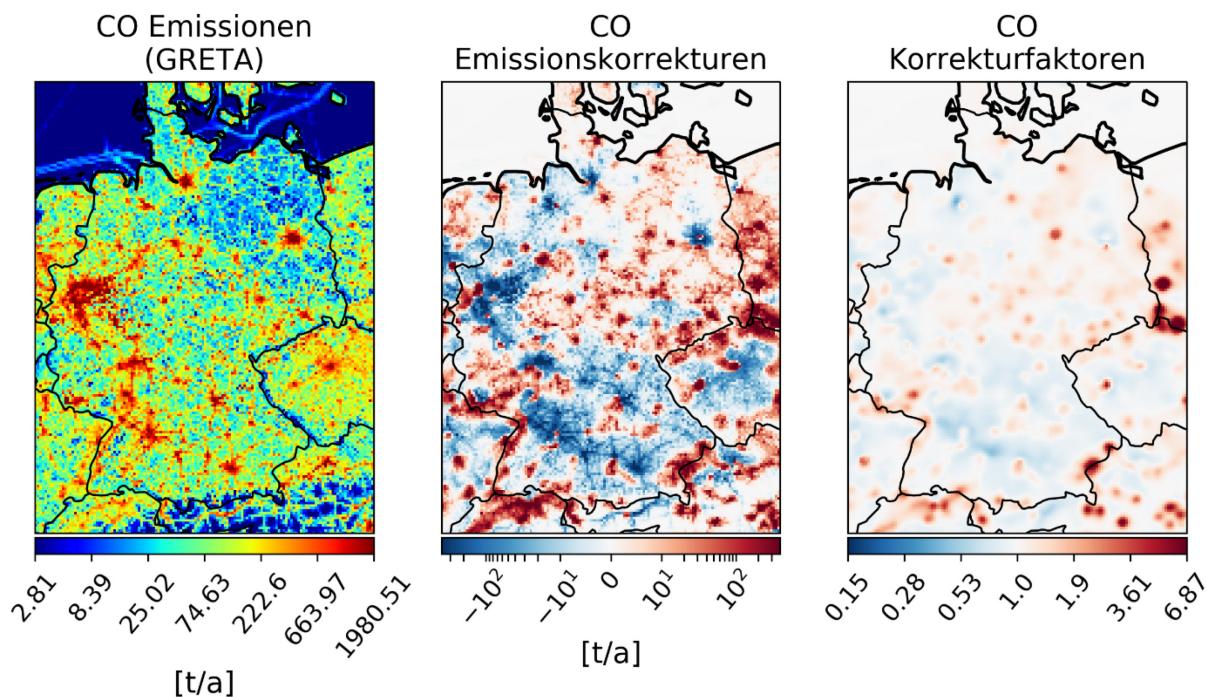
Zeitreihe der räumlich gemittelten, täglichen (durchgezogene Linie) und monatlichen bzw. saisonalen Korrekturfaktoren (gestrichelt) für CO, NO_x, PM₁₀, PM_{2,5} und VOC-Emissionen (oben) sowie NH₃- und SO_x-Emissionen (unten) in Deutschland für 2016 ermittelt mit dem u05-Modellgitter. Die Korrekturfaktoren der Aerosole (PM₁₀ und PM_{2,5}) sind durch Nachbearbeitung bereits korrigiert worden (siehe Kapitel 4.2.5). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 50 zeigt die Zeitreihe der räumlich gemittelten Korrekturfaktoren der verschiedenen Spezies für Deutschland im Jahr 2016 für das 5 km-Modellgitter. Da die Korrekturfaktoren von NH₃- und SO₂-Emissionen zum Teil stark von den Korrekturfaktoren der anderen Spezies abweichen, sind diese gesondert gezeigt. Ziel der Analyse war unter anderem die Evaluierung des Jahresgangs der Emissionen. Daher sind neben den täglichen Korrekturfaktoren auch die monatlich bzw. saisonal gemittelten Korrekturfaktoren aufgetragen. Die Korrekturfaktoren werden pro Spezies im Folgenden separat betrachtet und mit den Beobachtungen, der räumlichen Verteilung und den Verursachergruppen der Emissionen in Beziehung gebracht. Bei der Evaluierung der Korrekturfaktoren wird von positiven und negativen Emissionsänderungen gesprochen. Dies bezieht sich auf Verstärkungen (positive Korrekturfaktoren > 1) bzw. Abschwächungen (negative Korrekturfaktoren < 1) der Emissionen.

4.2.1 CO-Emissionskorrekturen

Kohlenstoffmonoxid (CO) hat eine Verweildauer in der Atmosphäre von ungefähr 2 Monaten (Khalil and Rasmussen, 1990). In dieser Zeit kann das emittierte CO global weiträumig verteilt werden. Daher bestehen die CO-Konzentrationen in der Atmosphäre zu einem großen Teil aus weiträumiger Hintergrundkonzentration und lokal emittierten Bestandteilen. Somit besteht vor allem bei CO die Differenz von Beobachtung und Modelllauf aus Fehlern in den Anfangswerten der Simulation und Fehlern in den Emissionsdaten. Beide Fehlerquellen werden durch die Analyse korrigiert, sodass die Modellsimulationen der Analyse den optimalen atmosphärischen Zustand unter Berücksichtigung aller Informationsquellen und deren Fehlern widerspiegeln.

Abbildung 51: Vergleich der jährlichen CO-Emissionen mit deren Korrekturen

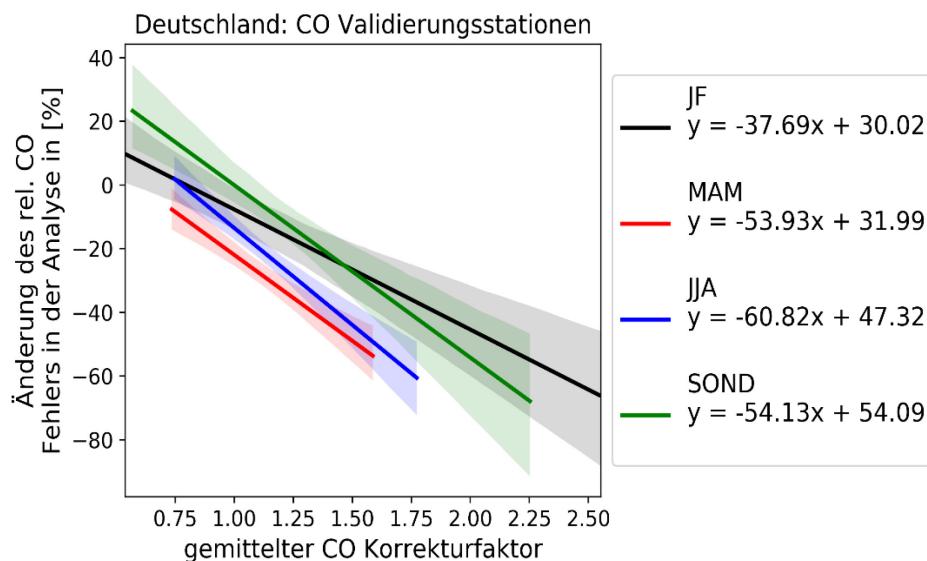


Links: Jährliche CO-Emissionen aggregiert auf das 5 km-Gitter. Mitte: Absolute Korrekturen der jährlichen CO-Emissionen. Rechts: jährlich gemittelte Korrekturfaktoren der CO-Emissionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die räumlich gemittelten Korrekturfaktoren der CO-Emissionen in Abbildung 50 zeigen eine heterogene Verteilung der Emissionskorrekturfaktoren. Während im Januar sowie von Mai bis August positive Emissionsänderungen bis zu einem Faktor von 1.3 (Monatsmittel) zu sehen sind, werden in den übrigen Monaten keine oder negative Emissionsänderungen mit bis zu einem Faktor von 0.9 (Monatsmittel) beobachtet. Allerdings ist nicht nur die zeitliche Verteilung der Korrekturfaktoren der CO-Emissionen heterogen, sondern auch deren räumliche Verteilung.

Abbildung 51 vergleicht die jährlichen CO-Emissionen mit den berechneten Emissionskorrekturen. Die Heterogenität der Emissionskorrekturen ist deutlich zu erkennen. In der Summe werden die jährlichen Emissionen in Ballungszentren wie etwa dem Ruhrgebiet oder Frankfurt negativ korrigiert. In diesen Gebieten berechnet die Analyse eine Abnahme der Emissionen in der jährlichen Summe stellenweise um mehr als 300 t/a (siehe Abbildung 51, Mitte). Dies bedeutet in diesen Regionen in etwa eine Emissionsreduktion von 20 %. Jedoch werden auf großen Flächen Deutschlands positive Emissionskorrekturen berechnet, die eher kleinere Städte oder einzelne Punktquellen betreffen und teilweise Emissionssteigerungen von ebenfalls mehr als 300 t/a ergeben. Einzelne Strukturen sind in den Emissionskorrekturen in Abbildung 51 (Mitte) zu erkennen. So sticht zum Beispiel die Autobahn A5 südlich von Karlsruhe mit positiven Emissionskorrekturen hervor. Ebenso ist die Autobahn A3 zwischen Köln und Würzburg sowie etliche weitere Autobahnen in Süddeutschland in der Nähe von großen Städten mit negativen Emissionskorrekturen zu identifizieren.

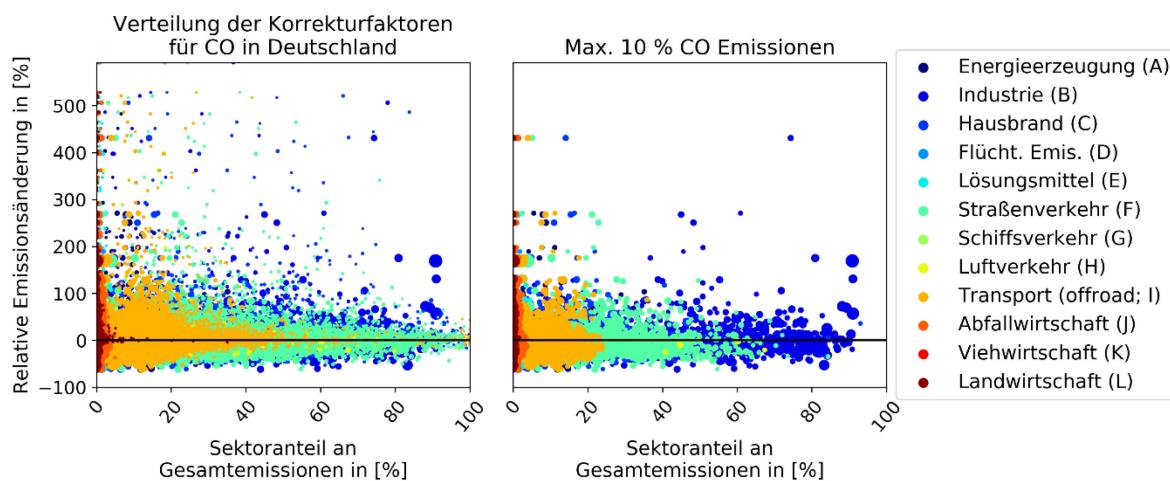
Abbildung 52: Relative Änderung der CO-Konzentration im Vergleich zu den CO-Emissionskorrekturen



Vergleich der relativen Änderung des absoluten Fehlers der CO-Konzentrationen in der Analyse zum Referenzlaufes in Abhängigkeit der Korrekturfaktoren der CO-Emissionen für das Jahr 2016 und den Validierungsdatensatz. Die Emissionskorrektrfaktoren sind im Umkreis von 100 km um die jeweilige Beobachtungsstation gemittelt. Die unterschiedlichen Farben zeigen die unterschiedlichen Jahreszeiten an. Gezeigt sind nur die Regressionsgeraden, bei deren Berechnung Ausreißer entfernt wurden. Ausreißer wurden definiert als Datenpunkte, bei denen der Fehler des Referenzlaufes kleiner als $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt. Die Abkürzungen in der Legende beziehen sich auf die verschiedenen Monate, die in der Analyse zusammenhängend berechnet wurden: JF: Januar, Februar; MAM: März, April, Mai; JJA: Juni, Juli, August; SOND: September, Oktober, November, Dezember. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

In Abbildung 52 wird die Änderung des absoluten Fehlers des CO-Konzentrationen der Analyse des 5 km-Modellgitters relativ zum Referenzlauf in Abhängigkeit der Korrekturfaktoren der CO-Emissionen für 2016 für jede Jahreszeit dargestellt. Hierbei sind die Korrekturfaktoren täglich lokal im Umkreis von 100 km um die Beobachtungsstationen des Validierungsdatensatzes gemittelt. Zur besseren Übersicht ist nur die Regressionsgerade gezeigt, nicht aber die einzelnen Datenpunkte, die allerdings eine starke Streuung aufweisen. Bei der Berechnung der Regressionsgeraden sind Ausreißer vom Datensatz entfernt worden. Hierbei sind Ausreißer definiert als Datenpunkte, bei denen die Differenz zwischen Referenzlauf und Beobachtungen kleiner als $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen. Diese Bereinigung des Datensatz war erforderlich, damit die Evaluierung der relativen Fehleränderung nicht von den Datenpunkten mit kleinen Fehlern im Referenzlauf übermäßig beeinflusst wird. Es ist ein klarer Zusammenhang zwischen der Reduzierung des relativen Fehlers und den steigenden lokalen Korrekturfaktoren der CO-Emissionen zu sehen. Hierbei ist zu bemerken, dass die Analyse an allen CO-Validierungsstationen bis auf DEBY039 und DEHB005 im Jahresmittel positive Emissionsänderungen aufweisen. Auch unter Berücksichtigung der Fehlerspanne der linearen Regression (Schattierung in Abbildung 52) ist der positive Effekt der Emissionsänderungen auf den absoluten Fehler der Analyse offensichtlich. So sind die Fehler in der Analyse kleiner, je größer der lokale Korrekturfaktor der CO-Emissionen ist. Allerdings ist die Streuung der relativen Fehlerreduktion vor allem bei Korrekturfaktoren nahe 1 relativ groß. Wie zu erwarten ist, sind die Korrekturfaktoren im Winter größer als im Sommer. Bei den Stationen, in deren Umfeld im Jahresmittel negative Emissionskorrekturen berechnet wurden (DEBY039 und BEHB005), zeigen die Trends erwartungsgemäß die gegenteilige Entwicklung, bei der der Fehler abnimmt, je kleiner die Korrekturfaktoren sind. Dies führt in der Gesamtbetrachtung aller Stationen in Abbildung 52 ebenfalls zu einer höheren Streuung.

Abbildung 53: Vergleich der CO-Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen



Vergleich der relativen CO-Emissionsänderung in der Analyse mit dem prozentualen Anteil der Sektoremissionen an den CO-Gesamtemissionen. Die Größe der einzelnen Datenpunkte spiegelt die CO-Emissionsstärke wider. Die Daten beziehen sich auf die 5 km-Analyse im Jahr 2016. Links: Alle Gitterboxen mit CO-Emissionen innerhalb Deutschlands. Rechts: Gitterboxen mit den höchsten 10 Prozent der CO-Emissionen innerhalb Deutschlands. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 53 zeigt die Verteilung der relativen CO-Emissionskorrekturen auf die einzelnen Sektoren. Im Wesentlichen wird CO aus dem Industriesektor und aus dem Straßenverkehr emittiert. Es ist jedoch ein deutlicher Unterschied bei den Emissionskorrekturen zu erkennen. In Gitterboxen, in denen der Straßenverkehr der dominante Sektor ist, sind die Emissionen, aber auch die relativen Emissionsänderungen in der Regel klein und übersteigen kaum 100 %. Nur vereinzelt werden höhere relative Emissionskorrekturen berechnet. Der Zusammenhang zwischen den relativen Emissionskorrekturen und den CO-Emissionen des Industriesektors zeigt höhere Korrekturen, wenn die Emissionen des Industriesektors dominieren. Hierbei ist auch der Anteil der starken Emissionen größer als beim Straßenverkehrssektor. Allerdings gibt es auch einen großen Bereich an Gitterboxen mit hohen CO-Emissionen des Industriesektors, in denen die Emissionen leicht negative Korrekturen erfahren. Weitere hohe Emissionskorrekturen sind in Gitterboxen zu erkennen, in denen der Hausbrandsektor dominant ist. Allerdings sind die CO-Emissionen in diesen Gitterboxen gering.

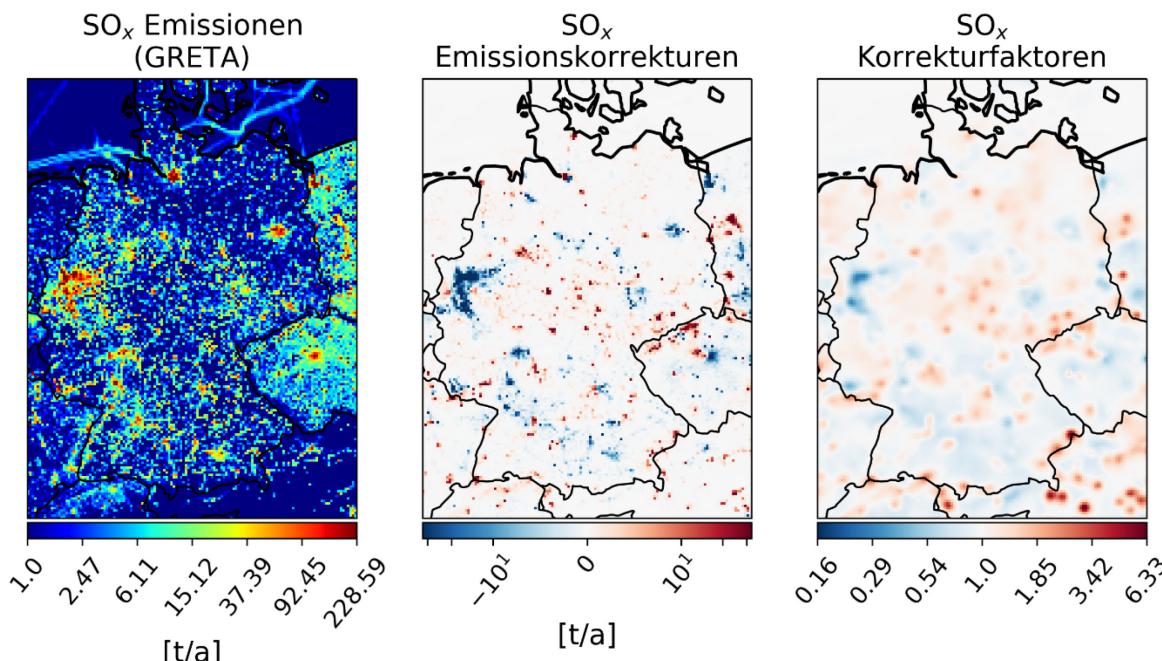
4.2.2 SO_x-Emissionskorrekturen

Die für Deutschland gemittelten SO_x-Emissionskorrekturen in Abbildung 50 zeigen ganzjährig negative Korrekturen an. Die Korrekturen erreichen im Dezembermittel den niedrigsten Faktor von 0.66. Im Jahresmittel liegen die Korrekturen der SO_x-Emissionen bei einem Faktor von 0.71.

Abbildung 54 vergleicht die räumliche Verteilung der jährlichen SO_x-Emissionen mit deren Korrekturen durch die Analyse sowie den berechneten Korrekturfaktoren. Wie bei den CO-Emissionskorrekturen sind die Korrekturen der SO_x-Emissionen räumlich sehr heterogen. Deutlich treten industriell geprägte Regionen wie das Ruhrgebiet, Frankfurt am Main und die Rhein-Neckar-Region mit negativen Emissionskorrekturen mit mehr als -30 t/a hervor. Ferner sind viele Punktquell-Emissionen zu erkennen. Diese zeigen im nördlichen Teil Deutschlands eher negative, im mittleren Teil positive und im südlichen Teil gemischte Korrekturen an. Wie bereits in Kapitel 4.1.2 erwähnt, hängt die SO₂-Konzentration stark von der vertikalen Verteilung der Emissionen, vor allem der Punktquellen, ab. Im Vorfeld des Projektes wurde zwar das vertikale Profil der Emissionen in den verschiedenen Sektoren, vor allem in Hinblick auf SO_x-

Emissionen, analysiert und eine optimale Verteilung der Emissionen gewählt, jedoch ist ein Einfluss der vertikalen Verteilung auf die Analyse nicht ganz auszuschließen. Es ist denkbar, dass die Emissionen im Modell in zu niedrige Höhen verteilt werden. Dies hätte zur Folge, dass die SO_x -Konzentrationen zu hoch und somit die Emissionskorrekturen zu stark ausfallen. Durch fehlende Beobachtungen der vertikalen SO_x -Verteilung in der Atmosphäre ist eine abschließende Beurteilung des Einflusses der vertikalen Verteilung auf die Simulationsergebnisse schwierig. Einzig aufwendige Sensitivitätsstudien könnten einen Hinweis liefern. Allerdings haben die im Vorfeld des Projektes durchgeführten Analysen der vertikalen Verteilung der Emissionen gezeigt, dass die Sensitivitätstest ebenfalls kein eindeutiges Ergebnis erwarten lassen und ihrerseits sowohl räumlich als auch zeitlich mit großen Unsicherheiten belegt sind.

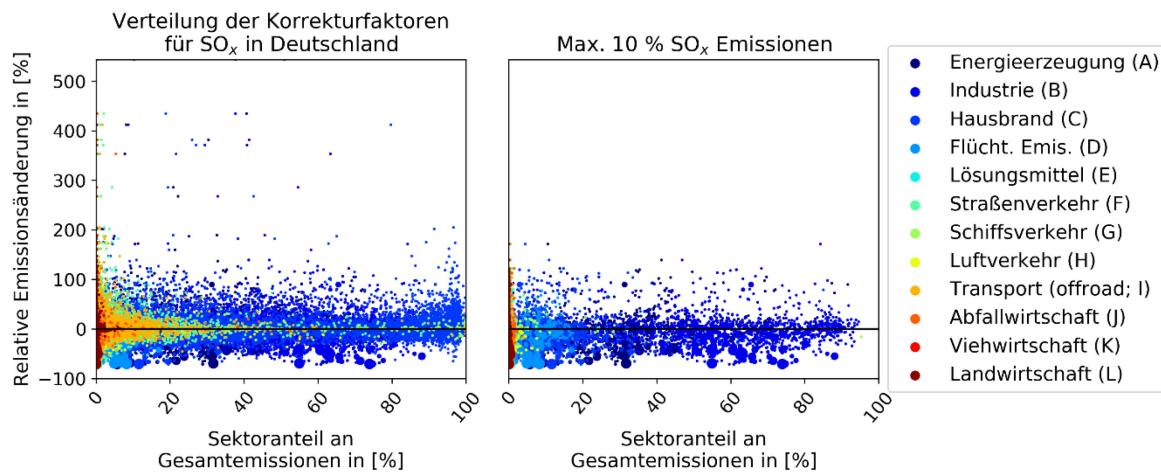
Abbildung 54: Räumliche Verteilung der SO_x -Emissionskorrekturen



Links: Jährliche SO_x-Emissionen aggregiert auf das 5 km-Gitter. Mitte: Absolute Korrekturen der jährlichen SO_x-Emissionen. Rechts: Jährlich gemittelte Korrekturfaktoren der SO_x-Emissionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 55 zeigt die Verteilung der SO_x-Emissionskorrekturen in Abhängigkeit von den Sektoren innerhalb Deutschlands. Der Industriesektor ist zusammen mit der Energieerzeugung in den meisten Gitterzellen der dominierende SO_x-Emittent. Während einige Gitterboxen mit geringen Emissionen eine positive Emissionskorrektur anzeigen, werden in der Analyse vor allem bei starken Emittenten negative Korrekturen bis zu -71 % berechnet. In Gitterzellen, in denen der Verkehrssektor die meisten SO_x-Emissionen verursacht, sind die Emissionskorrekturen vernachlässigbar gering. Jedoch sind in diesen Gitterboxen auch die Emissionen eher gering, sodass Korrekturen in diesen Bereichen wenig Einfluss auf die Modellkonzentrationen haben.

Abbildung 55: Vergleich der SO_x-Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen

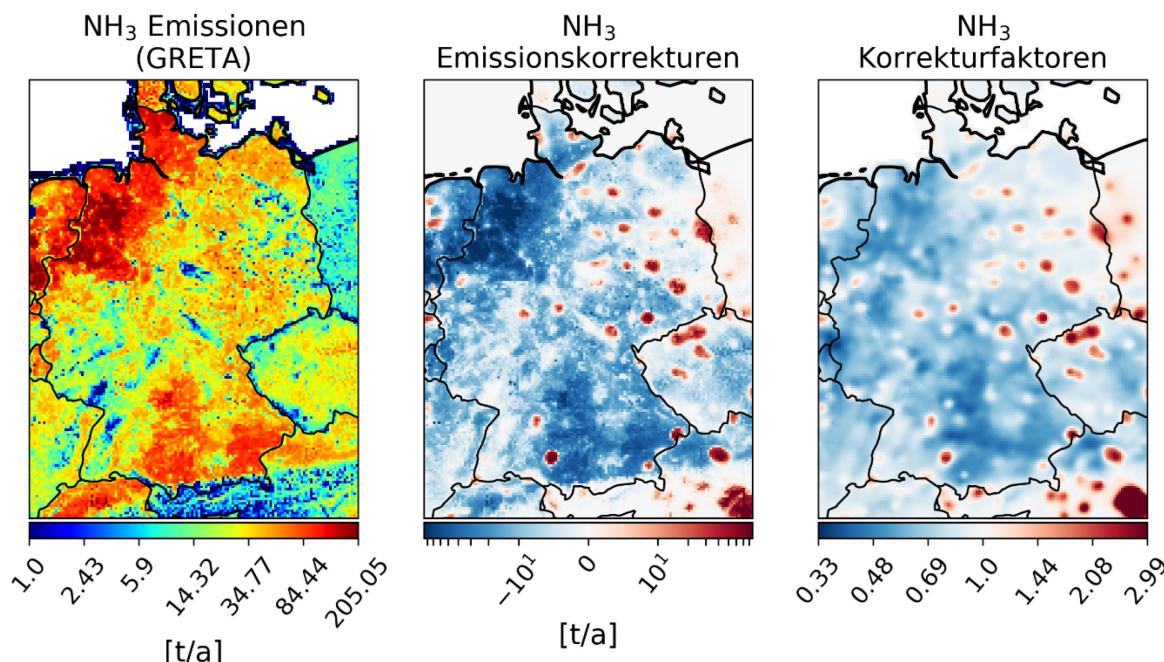


Vergleich der relativen SO_x-Emissionsänderung in der Analyse mit dem prozentualen Anteil der Sektoremissionen an den SO_x-Gesamtemissionen. Die Größe der einzelnen Datenpunkte spiegelt die SO_x-Emissionsstärke wider. Die Daten beziehen sich auf für das Jahr 2016 gemittelte Emissionsänderungen im 5 km-Gitter. Links: Alle Gitterboxen mit SO_x-Emissionen innerhalb Deutschlands. Rechts: Gitterboxen mit den höchsten 10 Prozent der SO_x-Emissionen innerhalb Deutschlands. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

4.2.3 NH₃-Emissionskorrekturen

Neben den SO_x-Emissionen werden die NH₃-Emissionen im Deutschlandmittel am stärksten korrigiert (siehe Abbildung 50). Vor allem in der zeitlichen Verteilung der Emissionen liegen große Unsicherheiten, da diese stark von den aktuellen meteorologischen Bedingungen abhängen und somit in einer standardisierten Verteilfunktion nicht gut abgebildet werden können. Jedoch lassen sich anhand der Analyse Anhaltspunkte für eine verbesserte jahreszeitliche Verteilung der Emissionen finden (siehe auch Kapitel 4.1.5). So sind die Emissionskorrekturen im Sommer positiv, während die Hauptemissionszeiten im Frühling und Herbst negative Emissionskorrekturen erfahren. Diese Entwicklung lässt sich auch gut im Vergleich der Beobachtungen mit den Simulationen erkennen, wobei es hier auch innerhalb der Bundesländer regional zu unterschiedlichen Entwicklungen kommt. Generell deutet die Analyse aber darauf hin, dass die NH₃-Emissionen im Jahr 2016 zu hoch waren.

Abbildung 56: Räumliche Verteilung der NH₃-Emissionskorrekturen

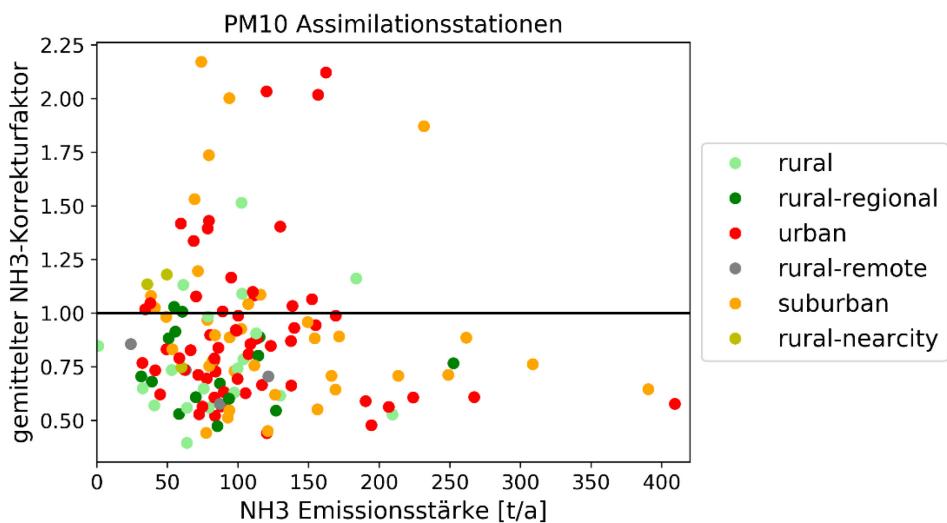


Links: Jährliche NH₃-Emissionen aggregiert auf das 5 km-Gitter. Mitte: Absolute Korrekturen der jährlichen NH₃-Emissionen. Rechts: Jährlich gemittelte Korrekturfaktoren der NH₃-Emissionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 56 zeigt die Verteilung der jährlichen NH₃-Emissionen in Deutschland im Vergleich zu deren Korrekturen durch die Analyse. Vor allem in den landwirtschaftlich geprägten Regionen in Niedersachsen und Bayern werden negative Emissionskorrekturen mit mehr als -50 t/a berechnet. Vor allem im Osten Deutschlands sind einige Regionen zu identifizieren, in denen positive Korrekturen berechnet wurden. Diese lassen sich in den meisten Fällen urbanen oder suburbanen PM₁₀-Beobachtungsstationen zuordnen, teilweise auch PM_{2,5}-Beobachtungsstationen. In diesen Regionen identifiziert das Modell NH₃-Emissionen als Hauptquelle der PM₁₀-Vorhersagefehler, sodass diese unter Anwendung des adjungierten Aerosolmoduls korrigiert werden. Durch fehlende NH₃-Beobachtungen können die Korrekturen der NH₃-Emissionen an den PM₁₀-Messstationen nicht beschränkt werden, es ist aber davon auszugehen, dass die Korrekturen vor allem an diesen Stellen großen Unsicherheiten unterliegen. Es bleibt abschließend zu bemerken, dass der beschriebene Zusammenhang nicht auf alle urbanen und suburbanen PM₁₀-Beobachtungsstationen zutrifft und somit auch lokale Emissionsverteilungen und Transporteffekte berücksichtigt werden müssen.

Abbildung 57 fasst diese Beobachtung zusammen. Hier werden die NH₃-Emissionskorrekturfaktoren den Emissionsstärken von NH₃ lokal (5 Gitterboxen, 25 km) an den PM₁₀-Assimilationsstationen gegenübergestellt. Die verschiedenen Arten der Beobachtungsstationen sind hierbei farblich kodiert. Der überwiegende Anteil der PM₁₀-Beobachtungsstationen in Deutschland befindet sich im urbanen oder suburbanen Raum. An einigen dieser Stationen sind die in Abbildung 56 zu sehenden positiven Emissionskorrekturen lokalisiert. Jedoch ist dies kein systematischer Zusammenhang, da der überwiegende Teil der Emissionskorrekturen auch an den urbanen und suburbanen Stationen negativ ist.

Abbildung 57: Vergleich der jährlichen Emissionskorrekturfaktoren für NH₃ mit den Emissionsstärken an PM₁₀-Beobachtungsstationen

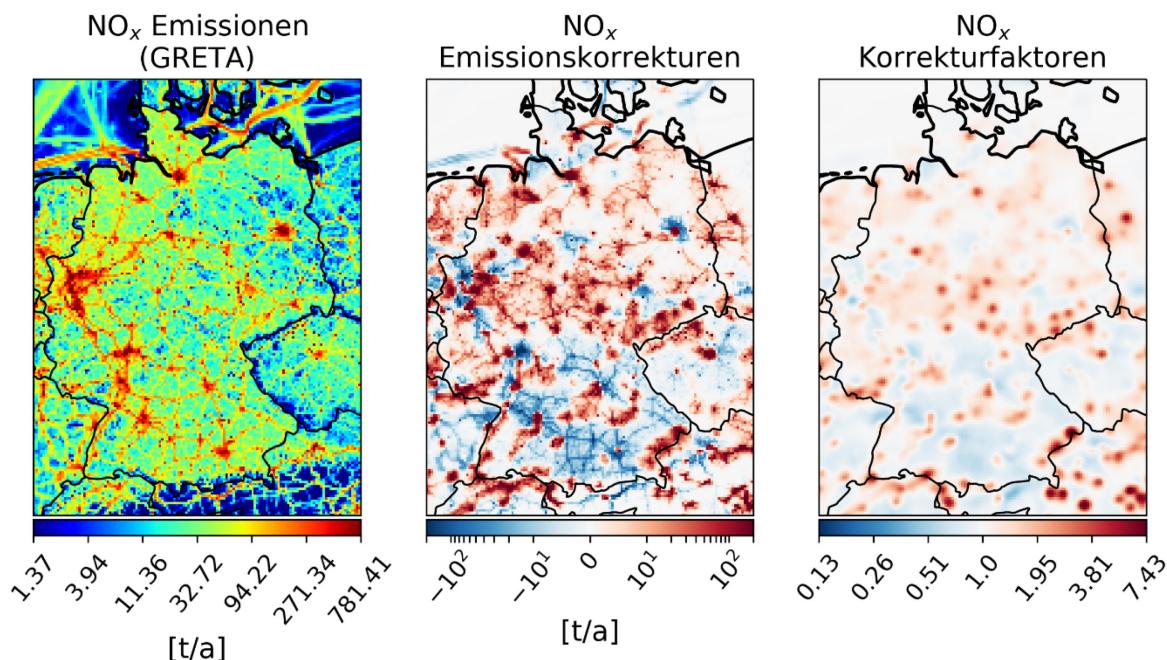


Vergleich der jährlichen Emissionskorrekturfaktoren für NH₃ mit den jährlichen NH₃-Emissionsstärken für 2016. Die Daten sind jeweils an den PM₁₀-Assimilationsstationen in Deutschland in einem Bereich von 5 Gitterboxen (25 km) gemittelt worden. Die Art der Beobachtungsstation ist farblich kodiert. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

4.2.4 NO_x- und VOC-Emissionskorrekturen

Die Analyse in Kapitel 4.1.3 hat gezeigt, dass die NO₂-Konzentrationen im Referenzlauf im Mittel systematisch unterschätzt werden. Entsprechend zeigt Abbildung 50 eine Zunahme der NO_x-Emissionen im Deutschlandmittel für 2016. Generell zeigt die Analyse eine Erhöhung der NO_x-Emissionen für Gesamtdeutschland von ca. 20-30 % an, wobei die Emissionskorrekturen im Sommer etwas schwächer ausfallen. Im Februar und im Dezember berechnet die Analyse eine Reduktion der NO_x-Emissionen, die in der genaueren Betrachtung jedoch auf singuläre Ereignisse zurückzuführen ist. Beispielsweise stellt sich Ende Januar, Mitte Februar sowie Ende Dezember 2016 die Wetterlage um und es kommt infolge von Langwellentrögen zur Advektion südlicher Luftmassen (exemplarisch dargestellt anhand der Temperaturadvektion in 850 hPa am 20.02.2016, 6 UTC, in Abbildung 99 im Anhang). Durch die Änderung der Luftmasse lassen sich sprunghafte Änderungen der NO₂-Konzentrationen (siehe auch Abbildung 40), aber auch in den Konzentrationen anderer Spezies erkennen. Die beobachteten NO₂-Konzentrationen in Deutschland fallen um den 20.02.2016 zum Beispiel von etwa 30 µg/m³ auf 5 µg/m³. Gleichzeitig steigt die O₃-Konzentration im gleichen Zeitraum von 20 µg/m³ auf 60 µg/m³. Dies bewirkt starke Reduktionen der Emissionen, von denen im Wesentlichen alle Spezies betroffen sind.

Abbildung 58: Räumliche Verteilung der NO_x-Emissionskorrekturen



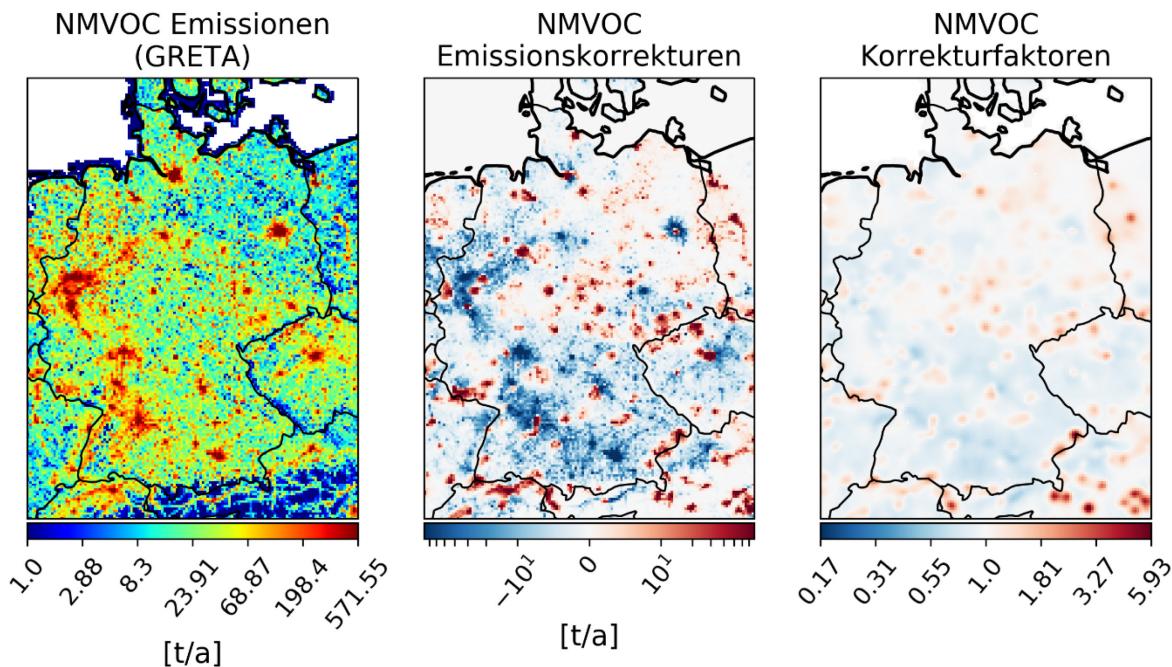
Links: Jährliche NO_x-Emissionen aggregiert auf das 5 km-Gitter. Mitte: Absolute Korrekturen der jährlichen NO_x-Emissionen. Rechts: Jährlich gemittelte Korrekturfaktoren der NO_x-Emissionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die deutschlandweit gemittelten Korrekturfaktoren für VOC-Emissionen (siehe Abbildung 50) verhalten sich an den angesprochenen singulären Ereignissen wie die NO₂-Korrekturfaktoren, wenn die Reduktion der Korrekturfaktoren auch etwas kleiner ausfällt. Generell sind die Korrekturfaktoren für VOC-Emissionen kleiner als für NO_x-Emissionen. Dies liegt im Wesentlichen daran, dass keine Beobachtungen von VOC-Spezies assimiliert wurden. Somit sind die VOC-Emissionskorrekturen hauptsächlich durch NO₂- und O₃-Beobachtungen verursacht. Abhängig von den NO_x-Konzentrationen sind die VOC-Emissionen ein Katalysator für eine erhöhte O₃-Konzentration, wobei der Einfluss von VOC bei hohen NO_x-Konzentrationen (relativ zur VOC-Konzentration) stärker ist. Auffällig ist, dass die VOC-Emissionskorrekturen jeweils am Beginn der Analyseperioden positiv sind, danach im deutschlandweiten Mittel aber negativ werden. Denkbar ist, dass die VOC-Emissionskorrekturen durch die fehlenden Beobachtungen nur im jahreszeitlichen Mittel (analog zu den NH₃-Emissionskorrekturen) betrachtet werden können (siehe Abbildung 50). Dies würde im deutschlandweiten Mittel eine schwache negative Emissionskorrektur von wenigen Prozent bedeuten. Aufgrund der fehlenden Beobachtungen und dem vor allem im Sommer größeren Einfluss biogener Emissionen auf die VOC-Gesamtemissionen sind die Korrekturen mit großen Unsicherheiten behaftet und müssen mit Satellitenbeobachtungen einzelner Spezies detaillierter analysiert werden. Dies ist jedoch außerhalb der Möglichkeiten des vorliegenden Projekts.

Abbildung 58 vergleicht die jährlichen Korrekturen der NO_x-Emissionen mit den NO_x-Emissionsstärken für 2016. Mit wenigen Ausnahmen werden die NO_x-Emissionen in Ballungszentren positiv korrigiert. Ausnahmen sind hier u. a. die äußeren Bezirke Berlins, Frankfurt am Main und München, sowie Regionen entlang des nördlichen Rheins in Nordrhein-Westfalen. Im Süden Deutschlands treten die negativen Korrekturen der Autobahnen heraus, was sich stellenweise auch in anderen Regionen in Deutschland beobachten lässt (z. B. an der Autobahn A2 zwischen dem Ruhr-Gebiet und Hannover). Dies deutet darauf hin, dass die Emissionen des Straßenverkehrs entlang der Autobahnen (vor allem im Süden Deutschlands)

generell über- und in den Ballungszentren unterschätzt werden. Des Weiteren werden einzelne Punktquellen in Mitteldeutschland positiv korrigiert.

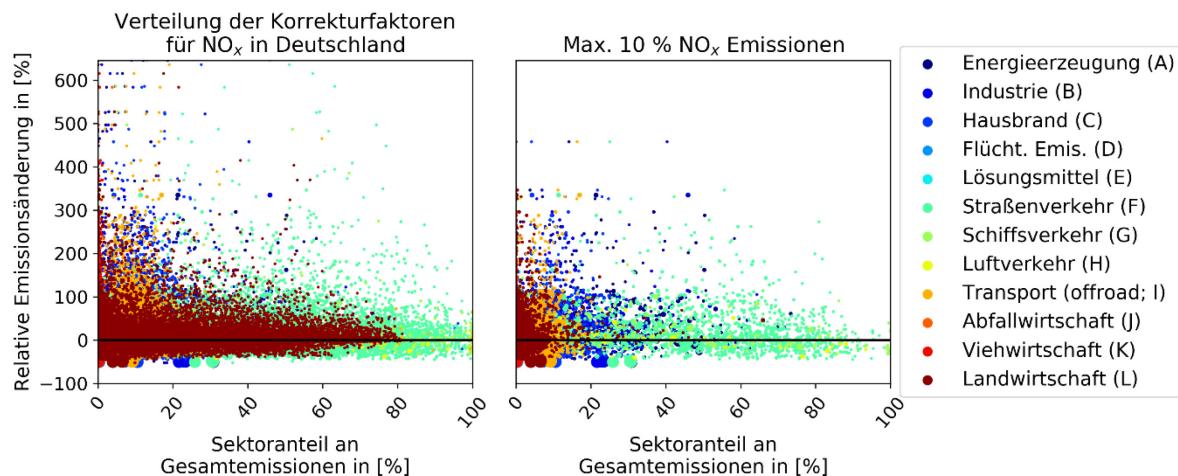
Abbildung 59: Räumliche Verteilung der VOC-Emissionskorrekturen



Links: Jährliche VOC-Emissionen aggregiert auf das 5 km Gitter. Mitte: Absolute Korrekturen der jährlichen VOC-Emissionen. Rechts: Jährlich gemittelte Korrekturfaktoren der VOC-Emissionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 59 zeigt die jährlichen VOC-Emissionskorrekturen für 2016 im Vergleich zu den anthropogen verursachten VOC-Emissionen. Im Jahresmittel werden die VOC-Emissionen in Ballungszentren überwiegend negativ korrigiert. VOC-Emissionen in mittelgroßen Städten wie etwa Fulda oder Kassel in Hessen oder Erfurt in Thüringen werden hingegen positiv korrigiert. Ein möglicher Grund könnte die Lage der Beobachtungsstationen von O_3 und NO_2 sein oder die Lage dieser Städte in eher ländlichen Regionen mit unsicheren biogenen Emissionen. Eine genauere Analyse bedarf allerdings satellitengestützten VOC-Beobachtungen.

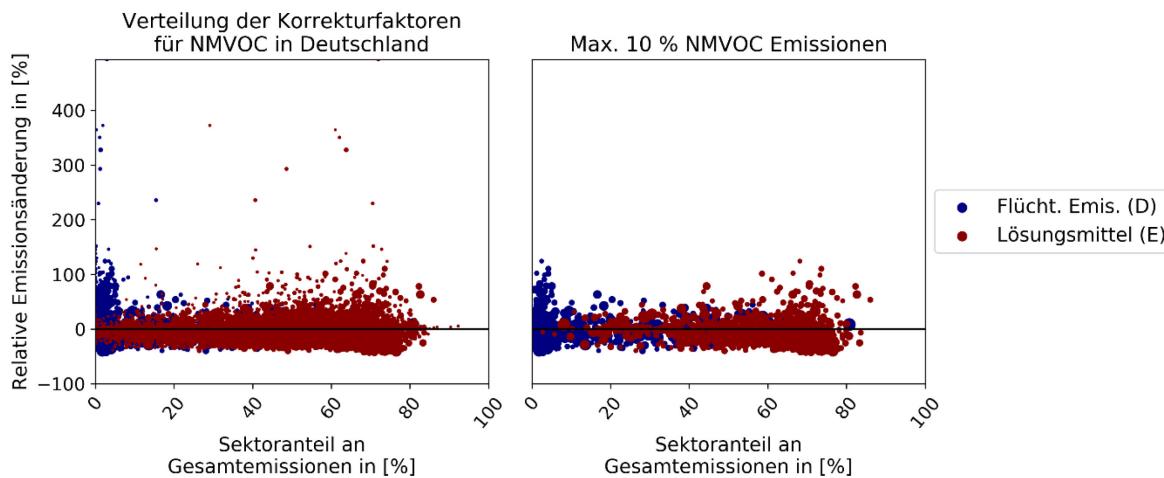
Abbildung 60: Vergleich der NO_x-Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen



Vergleich der relativen NO_x-Emissionsänderung in der Analyse mit dem prozentualen Anteil der Sektoremissionen an den NO_x-Gesamtemissionen. Die Größe der einzelnen Datenpunkte spiegelt die NO_x-Emissionsstärke wider. Die Daten beziehen sich auf für das Jahr 2016 gemittelte Emissionsänderungen im 5 km-Gitter. Links: Alle Gitterboxen mit NO_x-Emissionen innerhalb Deutschlands. Rechts: Gitterboxen mit den höchsten 10 Prozent der NO_x-Emissionen innerhalb Deutschlands.
Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 60 zeigt die relativen Korrekturen der NO_x-Emissionen in Abhängigkeit ihrer sektoralen Zugehörigkeit. Gitterboxen, in denen der Verkehrssektor die dominante NO_x-Quelle ist, verzeichnen stellenweise eine Emissionskorrektur von bis zu 600 %. Allerdings sind die Emissionsmengen in diesen Gitterboxen eher gering. Gitterzellen mit den stärksten NO_x-Emissionen werden nur gering oder negativ korrigiert. In diesen Gitterboxen lässt sich auch kein Sektor als Hauptquelle identifizieren. Es sind vielmehr verschiedene Sektoren (z. B. Verkehr und Industrie) ähnlich stark an den Emissionen beteiligt. Unter den stärksten Emissionsraten für NO_x (siehe Abbildung 60 rechts), sind die Emissionen des Luftverkehrs leicht negativ korrigiert zu identifizieren. Unter den stärkeren Emissionsmengen lässt sich erkennen, dass Gitterpunkte mit hohem Anteil an Emissionen des Industrie- oder Energiesektors stark positive Korrekturen von bis über 400 % erfahren.

Abbildung 61: Vergleich der VOC-Emissionskorrekturen mit dem relativen Anteil der Sektoren an den Gesamtemissionen



Vergleich der relativen VOC-Emissionsänderung in der Analyse mit dem prozentualen Anteil der Sektoremissionen an den VOC-Gesamtemissionen. Die Größe der einzelnen Datenpunkte spiegelt die VOC-Emissionsstärke wider. Die Daten beziehen sich auf für das Jahr 2016 gemittelte Emissionsänderungen im 5 km-Gitter. Links: Alle Gitterboxen mit VOC-Emissionen innerhalb Deutschlands. Rechts: Gitterboxen mit den höchsten 10 Prozent der VOC-Emissionen innerhalb Deutschlands. Um eine bessere Übersicht zu bekommen, sind nur die Sektoren E und D gezeigt, die maßgeblich die VOC-Emissionen verursachen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Um einen besseren Einblick in die sektorale Verteilung der Korrekturen der VOC-Emissionen zu erhalten, sind in Abbildung 61 die relativen Emissionskorrekturen mit dem sektoralen Anteil der Emissionen verglichen. Hierbei wird die Evaluierung auf die Hauptquellen von anthropogen verursachten VOC-Emissionen (Lösungsmittel- und flüchtige Emissionen) konzentriert durchgeführt. Während die Emissionskorrekturen in Gitterboxen, in denen die VOC-Emissionen hauptsächlich durch flüchtige Emissionen verursacht werden, nur gering sind, steigen die Emissionskorrekturen an Gitterboxen, in denen Lösungsmittel die Hauptquelle darstellen teilweise auf 100 %, bei geringeren Emissionsstärken auch weit darüber hinaus bis etwa 400 %. Allerdings wird an den meisten Gitterpunkten eine negative Emissionskorrektur verzeichnet, die im Mittel gering ist, aber bis etwa -40 % sinken kann.

4.2.5 PM₁₀- und PM_{2.5}-Emissionskorrekturen

Im Rahmen der Evaluierung der Ergebnisse wurde erkannt, dass bei den PM₁₀- und PM_{2.5}-Analysen die Anfangswerte überproportional korrigiert wurden, während sich die Korrekturfaktoren der Feinstaubemissionen nur schwach änderten. Grund für die schwachen Änderungen der Korrekturfaktoren ist die unterschiedliche Skalierung der Gradienten der Anfangswerte und Korrekturfaktoren der Emissionen in der Minimierung der 4D-var Analysemethode (vergleiche Kapitel 2.2 für eine Beschreibung der Methode). Dadurch werden die Anfangswerte stärker korrigiert als die Emissionen. Durch die längere Verweildauer der PM₁₀-Konzentrationen in der Atmosphäre, erhöhen diese Anfangswertkorrekturen ebenfalls die PM₁₀-Konzentrationen der Folgetage. Diese effektive Erhöhung der PM₁₀-Konzentration führt ebenfalls zu geringeren Emissionskorrekturen, teilweise sogar zu Korrekturfaktoren für PM₁₀-Emissionen, die eine Verringerung der Emissionsdaten in dem Kataster anraten. Aufgrund der guten Beobachtungslage von PM₁₀-Konzentrationen in Deutschland und der relativ konstanten negativen Abweichung der simulierten PM₁₀-Konzentrationen des Referenzlaufs im Vergleich zu den Beobachtungen (siehe Abbildung 45 in Kapitel 4.1.4), kann diese Verringerung der Emissionen nicht als realistisch angesehen werden. Für die Korrekturfaktoren der PM_{2.5}-

Emissionen wurden die gleichen Beobachtungen gemacht. Um diesem Effekt entgegenzuwirken, wurden die Emissionskorrekturfaktoren für PM_{10} und $PM_{2.5}$ in einer Nachbearbeitung angepasst. Das Prozedere wird im Folgenden beschrieben.

Bei der gemeinsamen Assimilation von Anfangswerten und Emissionskorrekturfaktoren wird generell beobachtet, dass die Anfangswerte am Ende des Assimilationsfensters nur noch einen geringen Einfluss auf die Modellkonzentration haben. Durch die zu starken Anfangswertkorrekturen von Feinstaub in der vorliegenden Analyse sind die Anfangswertkorrekturen jedoch auch am Ende des Assimilationsfensters ausgeprägt. Dieses Signal der Anfangswertkorrekturen am Ende des Assimilationsfenster wird mit einem einfachen linearen Modell auf die Emissionskorrekturen projiziert. Dabei soll gelten

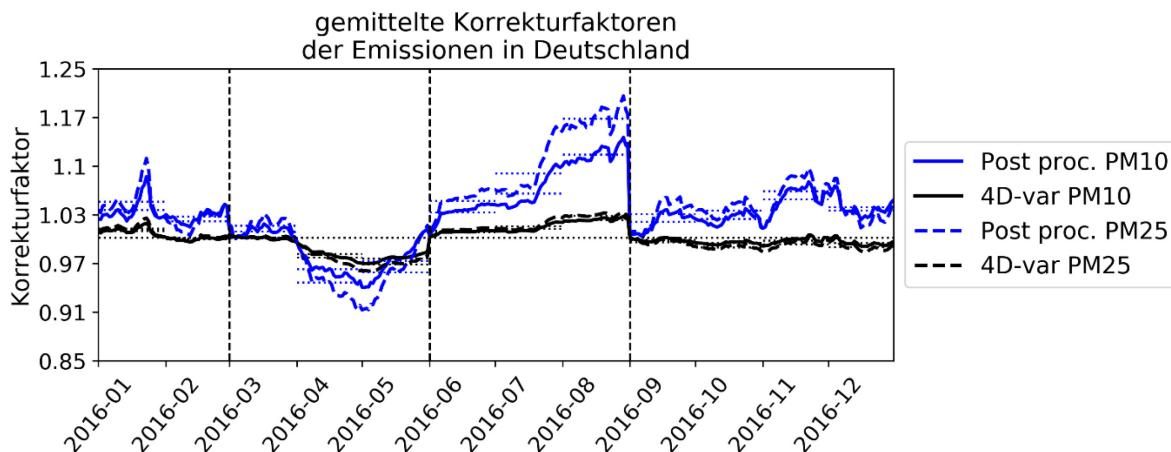
$$\Delta x_{0|f} \equiv \Delta x_0(t = t_f) = 0, \quad (24)$$

wobei $\Delta x_{0|f}$ die Anfangswertkorrekturen und t_f das Ende des Assimilationsfensters ist. Um die Projektion von $\Delta x_{0|f}$ in erster Näherung zu ermöglichen, wurde das EURAD-IM in ein lineares Modell überführt, in dem die Chemie- sowie Aerosollöser vernachlässigt werden und nur der Transport betrachtet wird. Die Größe $\Delta x_{0|f}$ wird mit Hilfe des linearen Modells vom Endzeitpunkt t_f zum Anfangszeitpunkt t_0 transportiert. Das Signal wird an jedem Gitterpunkt zu jeder Simulationsstunde um einen Faktor $1/t_f + 1$ reduziert, der den jeweiligen Emissionen zugeschrieben wird. Somit berechnet sich in jeder Stunde und an jeder Gitterbox ein individueller Emissionskorrekturfaktor, der die überproportionalen Anfangswertkorrekturen teilweise kompensiert. Ziel war eine realistischere Repräsentation der Emissionskorrekturfaktoren für Feinstaub. Das Signal $\Delta x_{0|f}$ der Anfangswerte am Ende des Assimilationsfensters ist in der Regel vergleichsweise gering, sodass angenommen werden kann, dass diese nachträglichen Korrekturen eine untere Grenze der tatsächlichen Korrekturfaktoren der PM_{10} - und $PM_{2.5}$ -Emissionen darstellt.

Verschiedene Ansätze wurden getestet, um aus den stündlichen Korrekturfaktoren tägliche Emissionskorrekturen zu berechnen. Diese waren die zeitliche Mittelung, eine Optimierung mittels des Nelder-Mead-Verfahrens (Nelder and Mead 1965) und die Optimierung mittels der Least-Squares Methode. Während das Nelder-Mead-Verfahren viele Iterationen benötigt und das Least-Squares-Verfahren in der einfachen Form Arbeitsspeicherplatzprobleme verursachte, ist die zeitliche Mittelung eine einfach und effizient durchzuführende Methode, die letztlich für die Nachbereitung der PM_{10} - und $PM_{2.5}$ -Emissionskorrekturen genutzt wurde. Kleinere Tests haben gezeigt, dass sich die verschiedenen Methoden nur geringfügig unterscheiden.

Abbildung 62 vergleicht die in der Analyse berechneten Korrekturfaktoren für PM_{10} - und $PM_{2.5}$ -Emissionen mit den durch das Nachprozessieren berechneten Korrekturfaktoren. Die in Abbildung 50 gezeigten Korrekturfaktoren für PM_{10} - und $PM_{2.5}$ -Emissionen entsprechen den bereits durch das Nachprozessieren angepassten Korrekturfaktoren. Im Deutschlandmittel sind die Korrekturfaktoren für $PM_{2.5}$ -Emissionen etwas stärker als für PM_{10} . Die nachprozessierten Korrekturfaktoren sind überwiegend positiv und erreichen im August Werte von etwa 20 % bzw. 15 % Emissionssteigerung für $PM_{2.5}$ bzw. PM_{10} . Im April und Mai sind die Korrekturfaktoren negativ und liegen im Bereich von 5 % bis 10 % Emissionsreduktion.

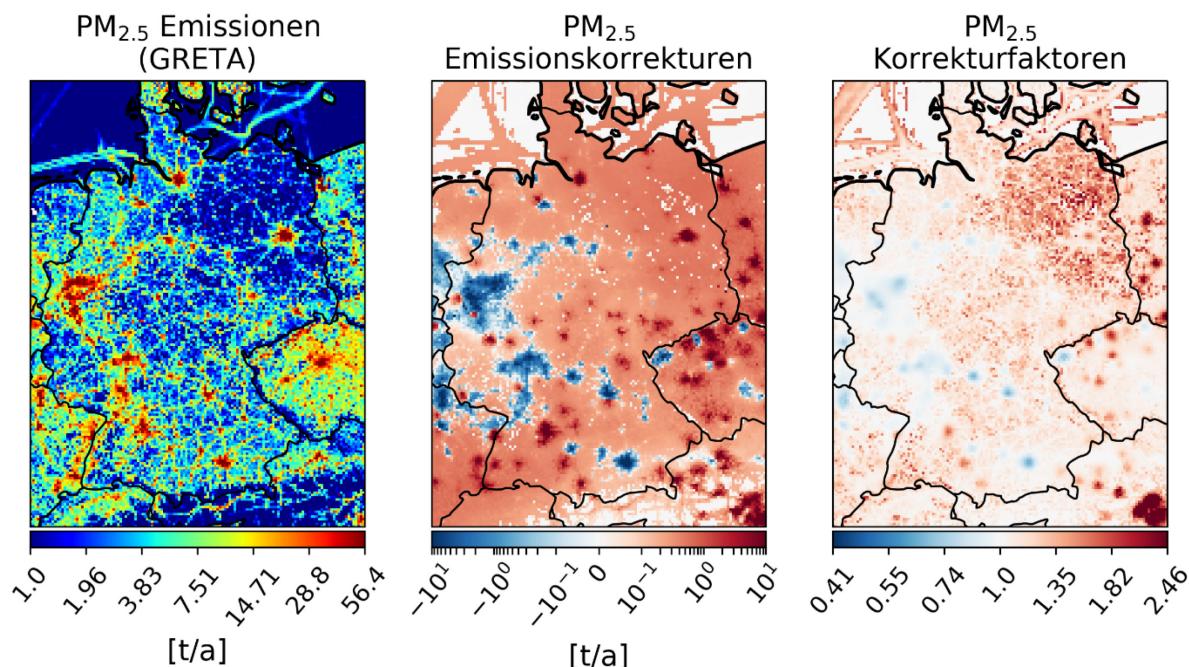
Abbildung 62: Vergleich der originalen mit den nachbereiteten Emissionskorrekturen für PM₁₀ und PM_{2,5}



Vergleich der in der Analyse berechneten Korrekturfaktoren für PM₁₀- und PM_{2,5}-Emissionen (schwarz) mit den Korrekturfaktoren nach dem Post-Processing (blau) gemittelt über Deutschland auf dem u05-Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die Korrekturfaktoren für PM_{2,5}- und PM₁₀-Emissionen zeigen im Wesentlichen die gleiche Verteilung. Abbildung 63 zeigt die räumliche Verteilung der PM_{2,5}-Emissionskorrekturen in Deutschland für 2016 nach den Nachprozessierung. Die Emissionskorrekturen sind nicht eindeutig zuzuordnen. Viele Emissionshotspots wie das Ruhr-Gebiet, die Rhein-Main-Region, oder München sind negativ korrigiert. Andere Emissionshotspots wie Hamburg, Berlin oder Stuttgart sind hingegen positiv korrigiert. Allerdings sind die Emissionskorrekturen mit weniger als 10 t/a vergleichsweise gering. Die Analyse zeigt generell eine Erhöhung der Emissionen in eher ländlich geprägten Regionen wie dem Nordosten Deutschlands an. Durch die schwachen Korrekturen und die Unsicherheiten, die durch die zu stark korrigierten Anfangswerte und die dadurch nötige Nachprozessierung der Emissionskorrekturen entstanden sind, sind die Emissionskorrekturen auch in ihrer räumlichen Verteilung relativ unsicher. Daher wird für PM₁₀- und PM_{2,5}-Emissionskorrekturen eine Zuordnung zu den Sektoren vernachlässigt, da dies durch die gegebenen Unsicherheiten möglicherweise zu falschen Schlussfolgerungen führen könnte.

Abbildung 63: Räumliche Verteilung der PM_{2.5}-Emissionskorrekturen

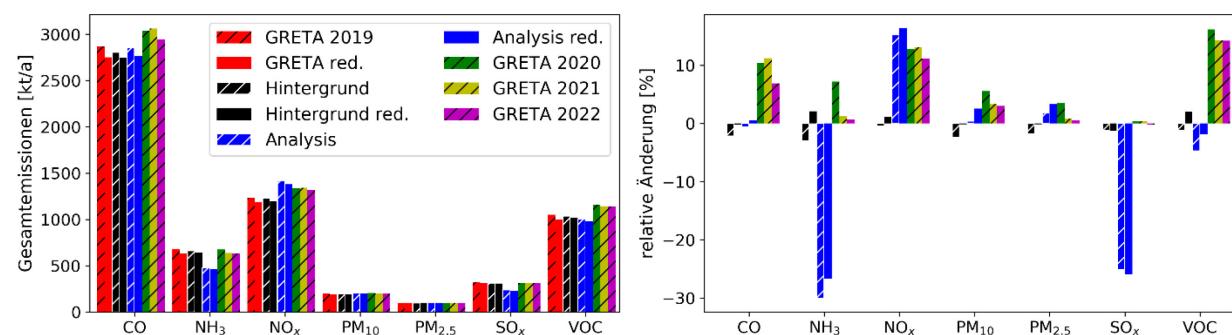


Links: Jährliche PM_{2.5}-Emissionen aggregiert auf das 5 km-Gitter. Mitte: Absolute Korrekturen der jährlichen PM_{2.5}-Emissionen. Rechts: jährlich gemittelte Korrekturfaktoren der PM_{2.5}-Emissionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

4.2.6 Gesamtemissionen für das Jahr 2016

Ziel des Vorhabens war es, die gesamtdeutschen Emissionen für das Jahr 2016 sowie deren räumliche und jahreszeitliche Verteilung zu analysieren. Während die räumliche und jahreszeitliche Verteilung in den vorangegangenen Abschnitten diskutiert wurden, wird in Abbildung 64 die Jahressumme der Emissionen der Berichterstattungen der Jahre 2019 (Grundlage dieser Analyse) bis 2022 mit den Analyseergebnissen verglichen. Da die Emissionsdaten des Umweltbundesamtes (räumlich verteilt über das GRETA-Tool) an den Gitterboxen auf der Grenze Deutschlands, sowie an See-Häfen, dem Niederrhein und dem Nord-Ostsee-Kanal durch Emissionsdaten des CAMS-Projektes ersetzt wurden (vergleiche Kapitel 2.4.1), wurden die Emissionsdaten mit und ohne Berücksichtigung der Grenzgitterboxen verglichen. Eine darüberhinausgehende Berücksichtigung der Emissionen an den See-Häfen und am Nord-Ostsee-Kanal war aus technischen Gründen nicht möglich.

Abbildung 64: Vergleich der Gesamtemissionen für 2016 mit den verschiedenen Berichterstattungen



Links: Vergleich der Jahresgesamtemissionen in Deutschland für 2016 zwischen verschiedenen Berichterstattungen und den in der Analyse des u05-Modellgitters genutzten und berechneten Jahresgesamtemissionen. Rechts: Relative Änderung der Gesamtemissionen bezüglich der Berichterstattung 2019, der die Analyse zugrunde liegt. Die Backgroundemissionen sind die tatsächlich in der Analyse als Eingangsdaten genutzten Emissionen, die mit den TNO-Daten in den Grenzregionen und für die Schifffahrt modifiziert wurden. Die Analyse zeigt die durch die Assimilation korrigierten Gesamtjahresemissionen für 2016. Die schraffierten Balken beziehen sich auf Gesamtdeutschland, während bei den blanken Balken die Gitterboxen unberücksichtigt sind, in denen TNO-Emissionsdaten verwendet wurden. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die Analyse spiegelt im Wesentlichen den Trend der Emissionsdaten in den verschiedenen Berichterstattungen wider. Einzig bei den VOC-Emissionen deutet die Analyse auf eine leichte Reduktion der Emissionen hin, während die Berichterstattungen eine Erhöhung der Emissionen vorgeben. Der Anstieg der CO-Emissionen fällt in der Analyse schwächer aus als in den Berichterstattungen, dies liegt aber im Wesentlichen an der schlechten Beobachtungslage für CO. Des Weiteren zeigt die Analyse eine starke Reduktion der NH₃-Emissionen um 25 % bis 30 % an, die auch in abgeschwächter Form in den Berichterstattungen zu sehen ist. NH₃-Beobachtungen werden nicht assimiliert, jedoch lassen die Vergleiche mit den Beobachtungen erkennen, dass eine Reduktion der NH₃-Emissionen im Jahr 2016 zu erwarten ist. Die größte absolute Änderung in der Analyse erfahren die NO_x-Emissionen. Diese steigen von ca. 1200 kt/a auf über 1400 kt/a an, was in etwa 15 % Anstieg der Emissionen entspricht. Ein deutlicher Anstieg der NO_x-Emissionen ist auch in den Berichterstattungen zu sehen. Maßgeblich sind hierbei die unterschätzten Straßenverkehrsemissionen, die in der Berichterstattung 2019 und somit in der Assimilation die erhöhten Dieselemissionen nicht beinhalten, die im Rahmen von Abgasuntersuchungen rund um Volkswagen aufgedeckt wurden (siehe zum Beispiel Jung und Sharon, 2019). Die Emissionskorrekturen von PM₁₀ und PM_{2.5} sind in der Analyse gering, spiegeln aber auch die geringen Erhöhungen der Emissionen in den Berichterstattungen wider. Es wird aber davon ausgegangen, dass die tatsächlichen Emissionen noch höher liegen als in der Analyse berechnet. SO_x-Emissionen werden in der Analyse um etwa 25 % reduziert. Die Berichterstattungen deuten eine schwächere Reduktion der Emissionen an. Gerade die Reduktion der Emissionen in Nordrhein-Westfalen sind wesentlich für die SO_x-Emissionsreduktion ausschlaggebend. Die Analyse zeigt in dem Vergleich der SO₂-Konzentrationen, dass diese Emissionsreduktionen in Nordrhein-Westfalen realistisch sind (siehe Abbildung 38 in Kapitel 4.1.2). Da die SO₂-Konzentration stark von der vertikalen Verteilung der Emissionen, vor allem der Punktquellen, abhängt, ist ein Einfluss der vertikalen Verteilung auf die Analyse der Gesamtemissionen nicht auszuschließen. In der Analyse werden VOC-Emissionen reduziert, während sie in den Berichterstattungen erhöht werden. Da der biogene Anteil der VOC-Emissionen in Deutschland vor allem im Sommer auf bis zu 40 % ansteigen kann (regional auch deutlich höher) und Beobachtungen von VOCs nicht zur Assimilation zur Verfügung stehen, ist eine Beurteilung der anthropogenen Emissionsanteile schwierig und hängt wegen des hohen biogenen Anteils zumindest zeitweise von der Meteorologie ab. Zur Vollständigkeit sind in Abbildung 100 und Abbildung 101 die Emissionskorrekturen der einzelnen Spezies je europäischem Land zusammengefasst. Die europäischen Emissionskorrekturen sind mit dem u15-Modellgitter berechnet.

4.3 Vergleich der Ergebnisse auf verschiedenen Modellauflösungen

Wie in Kapitel 3.3 einleitend beschrieben, wurden insgesamt drei hochaufgelöste Gebiete in 1x1 km² Auflösung jeweils für einen ausgewählten 14-tägigen Zeitraum simuliert und analysiert. Mit dieser Studie soll untersucht werden, ob sich mithilfe von hochaufgelösten Simulationen charakteristische Emissionskorrekturfaktoren abhängig von den vorherrschenden Emittenten herauskristallisieren lassen. Im Fokus stehen hierbei die Emittenten der Landwirtschaft für das

Modellgebiet über Niedersachsen (ua1), der Industrie für das Modellgebiet in Nordrhein-Westfalen (ub1) und die Emittenten von urbanen Räumen für das Gebiet um Berlin (uc1). Eine detaillierte Modellgebietsbeschreibung ist in Kapitel 3.3 gegeben. Auch wenn alle 1 km-Gitter zum Teil Gebiete anderer europäischer Länder abdecken, wird der Schwerpunkt der Analyse-Auswertung und der Korrekturfaktor ableitung auf die nationalen Emissionen innerhalb der Modellgebiete gelegt.

Die hochauflösten Simulationen umfassen jeweils einen ausgewählten 14-tägigen Zeitraum (siehe auch Tabelle 7) und nutzen für die Randwerte die Analyse des u05-Modellgitters. Zur Vorbereitung der Anfangswerte wurden für jedes Modellgebiet Spin-up-Simulationen von zwei Tagen durchgeführt. Auch für die meteorologischen Simulationen werden die Randwerte der u05-WRF-Simulationen verwendet. Die anthropogenen Emissionen wurden mithilfe von GRETA auf die Modellgitter mit 1km-Auflösung projiziert und verteilt. Alle 1 km-Gitter liegen zum Teil auf Gebieten außerhalb Deutschlands. So wurden, wie auch bei den Emissionsdaten für u05 und u15, für alle innerdeutschen Gitterzellen GRETA-Emissionsdaten verwendet, während für alle Gitterzellen, in denen die Landesgrenze verläuft oder die außerhalb Deutschlands liegen, die TNO-Emissionsdaten auf die 1 km-Auflösung verteilt wurden. Assimiliert wurden in den Analysen mit 1 km-Modellaufösung ausschließlich Daten der CAMS-50-in-situ-Beobachtungen am Boden, die dem Assimilationsdatensatz zugeschrieben sind. Auf Beobachtungen von Satelliten und Profilen wurde verzichtet, da die Repräsentativität der Satellitendaten für die hochauflösten Simulationen nicht gegeben ist bzw. keine Profilmessungen in den ausgewählten Regionen und Perioden vorlagen. Der Validierungsdatensatz der CAMS-50-in-situ-Beobachtungen wird auch hier zur Evaluierung der Analyseergebnisse eingesetzt.

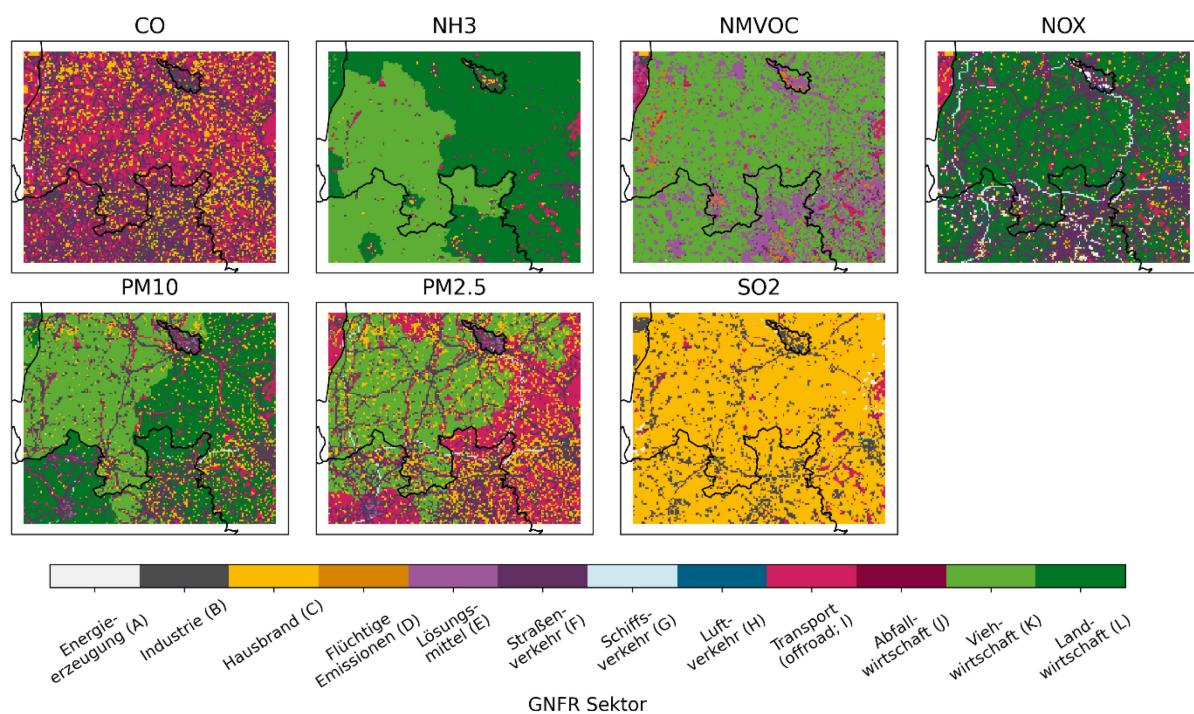
In diesem Kapitel werden die Analysen der 1 km-Gebiete im Vergleich zu den entsprechenden Modellgebieten der u15- und u05-Analysen evaluiert. Zudem werden die ermittelten Emissionskorrekturfaktoren aller Modellaufösungen gegenübergestellt und diskutiert. So können die folgenden Kernfragen untersucht und beantwortet werden:

- ▶ Gibt es spezielle Emissionskorrekturfaktoren in den individuell charakterisierten Regionen?
- ▶ Entsprechen die abgeleiteten Emissionskorrekturfaktoren den Erwartungen bzgl. der regionstypischen Emittenten?
- ▶ Gibt es Unterschiede im Vergleich zu den u15- und u05-Analysen?

4.3.1 Modellregion ua1 – überwiegend landwirtschaftlich geprägt

Abbildung 65 zeigt die dominanten GNFR-Emittenten für alle sieben anthropogenen Emissionsspezies für das Modellgebiet über Niedersachsen, ermittelt aus den Gesamtjahresemissionen des ua1-Gitters. Es ist deutlich erkennbar, dass die Landwirtschaft (Sektoren K und L) die lokalen Emissionen in einem erheblichen Teil der Modellregion beherrscht. Dies gilt insbesondere für die Emissionen von NH₃, NMVOC, NO_x, PM₁₀ and PM_{2.5}. Während die landwirtschaftlichen NMVOC-Emissionen flächendeckend von der Viehwirtschaft (Sektor K) kontrolliert werden, stammen die NO_x-Emissionen weitgehend aus der sonstigen Landwirtschaft (Sektor L). Die landwirtschaftlichen NH₃- und PM-Emissionen teilen sich auf in dominante viehwirtschaftliche Emissionen im westlichen Modellgebiet und sonstige landwirtschaftliche Emissionen im östlichen Modellgebiet.

Abbildung 65: Dominierende GNFR-Sektoren im ua1-Modellgebiet



Dominierende GNFR-Sektoren pro Spezies im ua1-Modellgebiet basierend auf den totalen Jahresemissionen für 2016.
Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Zur Evaluierung des Analyseverhaltens veranschaulicht Abbildung 66 die Differenz zwischen der NO₂-Konzentration der Analyse und des Hintergrundlaufs für die Orte aller Beobachtungsstationen innerhalb des 1 km-Gebietes. Hierbei werden sowohl Assimilations- als auch Validierungsstationen einbezogen und die stündlichen Zeitreihen werden je Station in einer individuellen Farbe dargestellt. Die drei Detailabbildungen visualisieren die Ergebnisse der Simulationen auf den verschiedenen Modellauflösungen (oben – u15, Mitte – u05, unten – ua1). Lücken in den Zeitreihen stehen im Zusammenhang mit Zeitpunkten, zu denen an der entsprechenden Beobachtungsstation keine Beobachtungsdaten vorliegen. Die Korrekturen der NO₂-Konzentrationen an den Beobachtungsorten fallen deutlich stärker auf den beiden groben Modellgittern aus als beim ua1-Gitter (beachte die unterschiedlichen y-Achsen für ua1 gegenüber der y-Achsen für u05 und u15). Dies liegt zum einen daran, dass die NO₂-Konzentrationen des Hintergrundlaufs des ua1-Gitters aufgrund der Randwerte der u05-Analyse bereits deutlich näher an den Beobachtungen liegen. Zum anderen liegen die Beobachtungsstationen im ua1-Gitter zum Teil nahe an der Modellgebietsgrenze, sodass der Gradient im adjungierten Modelllauf aus dem Modellgebiet heraustransportiert wird und die Information über mögliche Korrekturen verloren geht. Dies ist für das u15- und das u05-Gitter für die ausgewählten Stationen innerhalb der ua1-Region nicht der Fall und die Information der Gradienten kann sich außerhalb der ua1-Region auswirken und somit lokale Konzentrationsanpassungen provozieren. Insgesamt ist in den Zeitreihen aller Modellauflösungen erkennbar, dass es einen signifikanten Effekt der Anfangswertoptimierung gibt. Dies erklärt die prominenten Spitzen zu Anfang fast eines jeden Tages. Die NO₂-Korrektur durch die Analyse erscheinen insgesamt sehr ähnlich beim Vergleich der Zeitreihen des u15- und des u05-Gitters, während sich auf dem hochauflösenden ua1-Gitter individuellere Korrekturen abzeichnen, die aber zumeist die Richtung der Korrektur auf den größeren Gittern bestätigt. Somit zeigt sich, dass die Analysen für den analysierten Zeitraum unabhängig von der Modellauflösung untereinander konsistent sind.

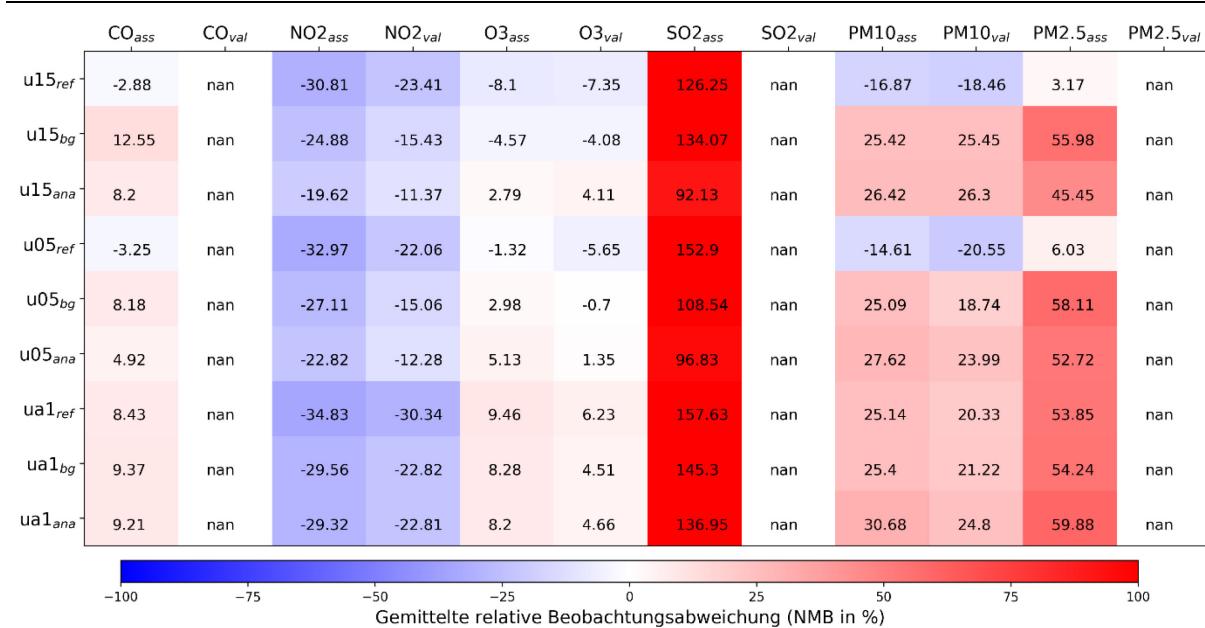
Abbildung 66: Differenz der NO₂-Konzentrationen aus Analyse und Hintergrund an allen Beobachtungsstationen im ua1-Modellgebiet



Stündlich aufgelöste Zeitreihen der Differenz zwischen den NO₂-Konzentrationen der Analyse und des Hintergrundlaufs an allen NO₂-Beobachtungsstationen (farblich unterschieden) innerhalb des ua1-Modellgebietes vom 10.-23. März 2016. Die drei Abbildungselemente repräsentieren jeweils die Ergebnisse unterschiedlicher Modellauflösung (oben: u15, Mitte: u05, unten: ua1). Lücken in den Zeitreihen reflektieren Zeiten, zu denen keine Beobachtungen an der entsprechenden Station vorliegen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

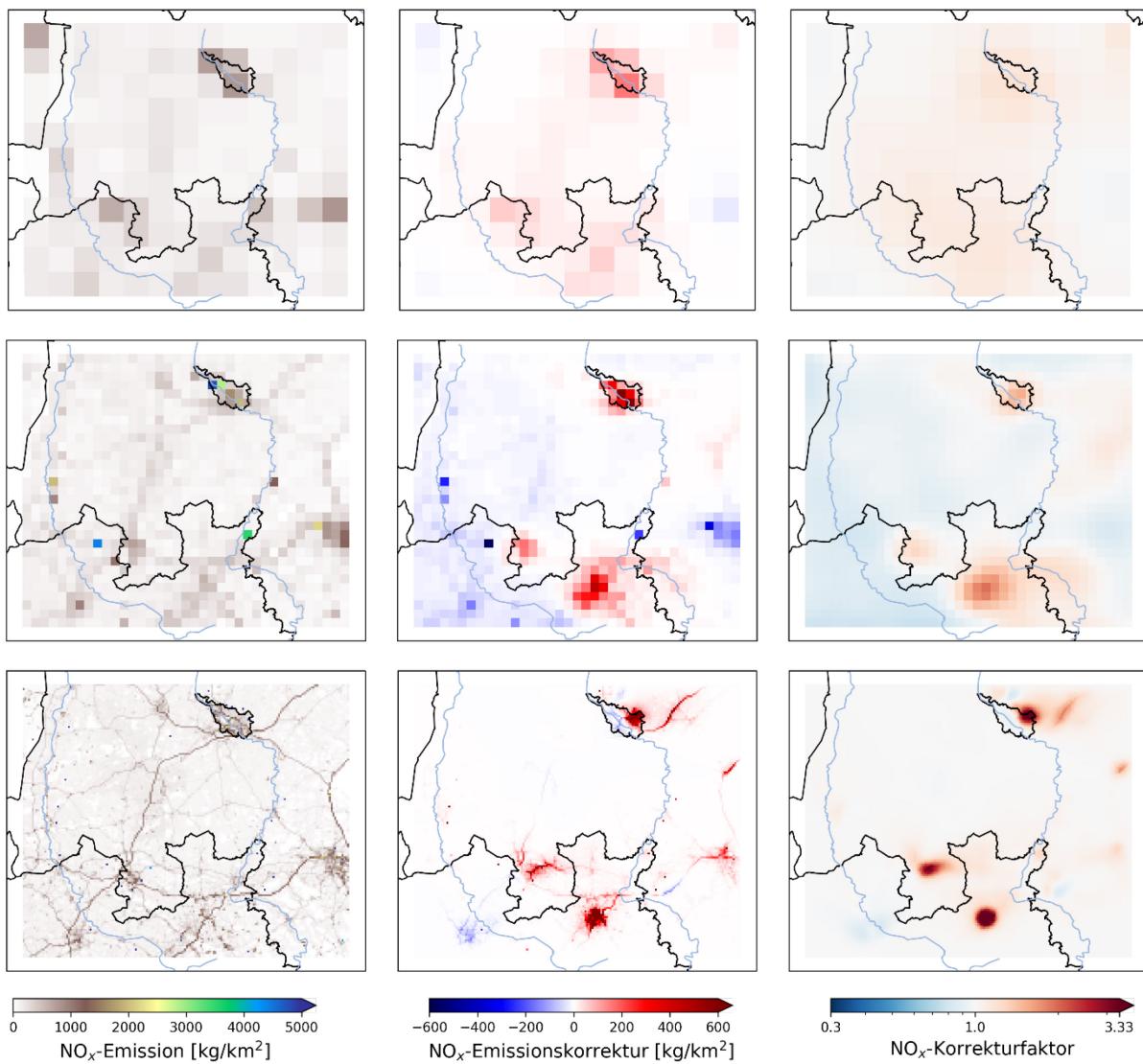
Der gemittelte relative Beobachtungsfehler (oder normalisierter mittlerer Bias) dargestellt in Abbildung 67 liefert eine Übersicht über das Analyseverhalten für alle Modellgitter innerhalb der ua1-Region und Beobachtungsspezies. Hier wird sichtbar, dass der Beobachtungsfehler von NO₂, O₃ und SO₂ auf allen Modellgittern vom Referenzlauf, über den Hintergrundlauf hin zu der Analyse geringer wird. SO₂ wird auf allen Modellgittern überschätzt mit allen Beobachtungsabweichungen größer 90 %. Begründet ist dies mit den geringen beobachteten SO₂-Konzentrationen, die vom Modell überschätzt werden und aufgrund ihrer geringen Konzentration keinen signifikanten Einfluss auf die Kostenoptimierung ausüben. NO₂ hingegen wird auf allen Modellgittern eher unterschätzt mit Beobachtungsabweichungen zwischen -11 % bis -35 %. Die schwache Beobachtungssituation für CO innerhalb der ua1-Modellregion (nur zwei Stationen, vgl. Abbildung 100 im Anhang) trägt dazu bei, dass es für das ua1-Gitter keine signifikante Verbesserung der CO-Konzentrationen zwischen Modellhintergrund und Modellanalyse gibt. Während die Beobachtungsabweichung der Analyse für PM₁₀ zwischen 24-31 % liegt, sind die Abweichungen für PM_{2,5} fast doppelt so hoch (zwischen 45-60 % gemessen am mittleren Beobachtungswert).

Abbildung 67: Normalisierten mittleren Bias aller Simulationen innerhalb des ua1-Modellgebiets



Gemittelte relative Beobachtungsabweichung (oder normalisierter mittlerer Bias, in Zahlen und farblich markiert) für alle Modellsimulationen (u15, u05, ua1) des Referenz- (ref) und Hintergrundlaufs (bg) sowie der Analyse (ana) und alle Beobachtungsspezies an Assimilations- (ass) und Validierungsstationen (val) innerhalb des ua1-Modellgebiets. Fehlende Validierungsmessungen sind mit nan gekennzeichnet. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 68: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NO_x für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets

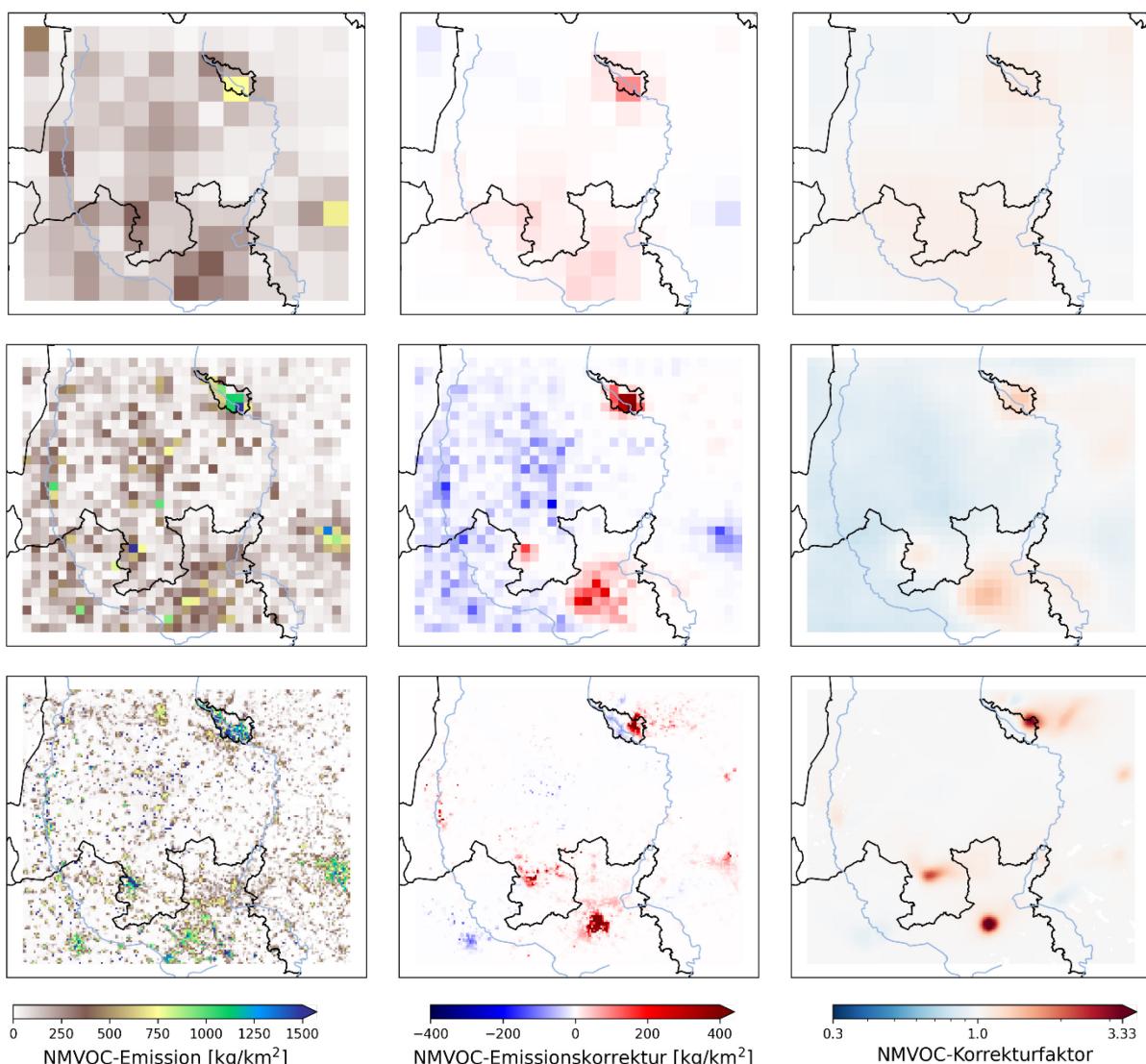


Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von NO_x im ua1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ua1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ua1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 68 und Abbildung 69 zeigen für den 14-tägigen ua1-Analysezeitraum jeweils die Emissionen (linke Spalte), die analysierten Emissionskorrekturen (mittlere Spalte) und die Emissionskorrekturfaktoren (rechte Spalte) von NO_x bzw. NMVOCs. Die obere Abbildungsreihe visualisiert die Ergebnisse unter Verwendung der u15-Modellauflösung, die mittlere Abbildungsreihe die Ergebnisse der u05-Modellauflösung und die untere Reihe stellt die ua1-Ergebnisse dar. Beim Vergleich der Emissionsverteilungen mit den dominanten Emissionssektoren in Abbildung 65 fällt auf, dass die starken NO_x- und NMVOC-Emissionen innerhalb des ua1-Modellgebiets nicht aus landwirtschaftlichen Quellen stammen, sondern dass die NO_x-Emissionen viel mehr von Sektor F (Straßenverkehr) und die NMVOC-Emissionen von Sektoren D und E (flüchtige Emissionen und Lösungsmittel) resultieren. Dies ist konsistent mit den Beobachtungen für ganz Deutschland (siehe auch Abbildung 60 und Abbildung 61). Basierend auf der Emissionsstärke spielen landwirtschaftliche NO_x- und NMVOC-Emissionen in der Modellregion eine untergeordnete Rolle, obwohl einige NO_x-Punktquellen dem landwirtschaftlichen Sektor zuzuordnen sind. Entsprechend finden die stärksten Korrekturen

auch in den Regionen der stärksten Emissionen, die zumeist mit den größten Unsicherheiten verknüpft sind, statt. Die Gegenüberstellung der unterschiedlichen räumlichen Modellaufösungen spiegelt ähnliche Strukturen bzw. Verteilungen der Emissionskorrekturen und Korrekturfaktoren wider. Lediglich im Bereich Hannover zeichnet sich ein Vorzeichenwechsel der Korrekturen ab, wenn man von den groben Auslösungen auf die feine ua1-Auflösung wechselt. Dies steht jedoch damit im Zusammenhang, dass Hannover sehr nahe an der Gebietsgrenze des ua1-Gitters liegt und somit Gradient-Informationen während des adjungierten ua1-Modelllaufs aus dem Modellgebiet heraustransportiert werden, was bei den grob aufgelösten Simulationen nicht der Fall ist. Die hochauflösende Analyse erlaubt eine viel präzisere Zuordnung der Korrekturen zu den genauen Quellregionen bzw. bedingt bereits zu gewissen Quellsektoren. Zu beachten ist jedoch, dass die Regionen starker Korrekturen mit den Orten von Bodenbeobachtungsstationen (vergleiche mit Abbildung 100 im Anhang) korrelieren. Da bei den Simulationen auf den u15- und u05-Modellgebieten auch Satellitenbeobachtungen assimiliert wurden und somit flächendeckende Zusatzinformationen liefern, können hier in den Regionen ohne Bodenbeobachtungsstationen Korrekturen abgeleitet werden.

Abbildung 69: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NMVOC für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets

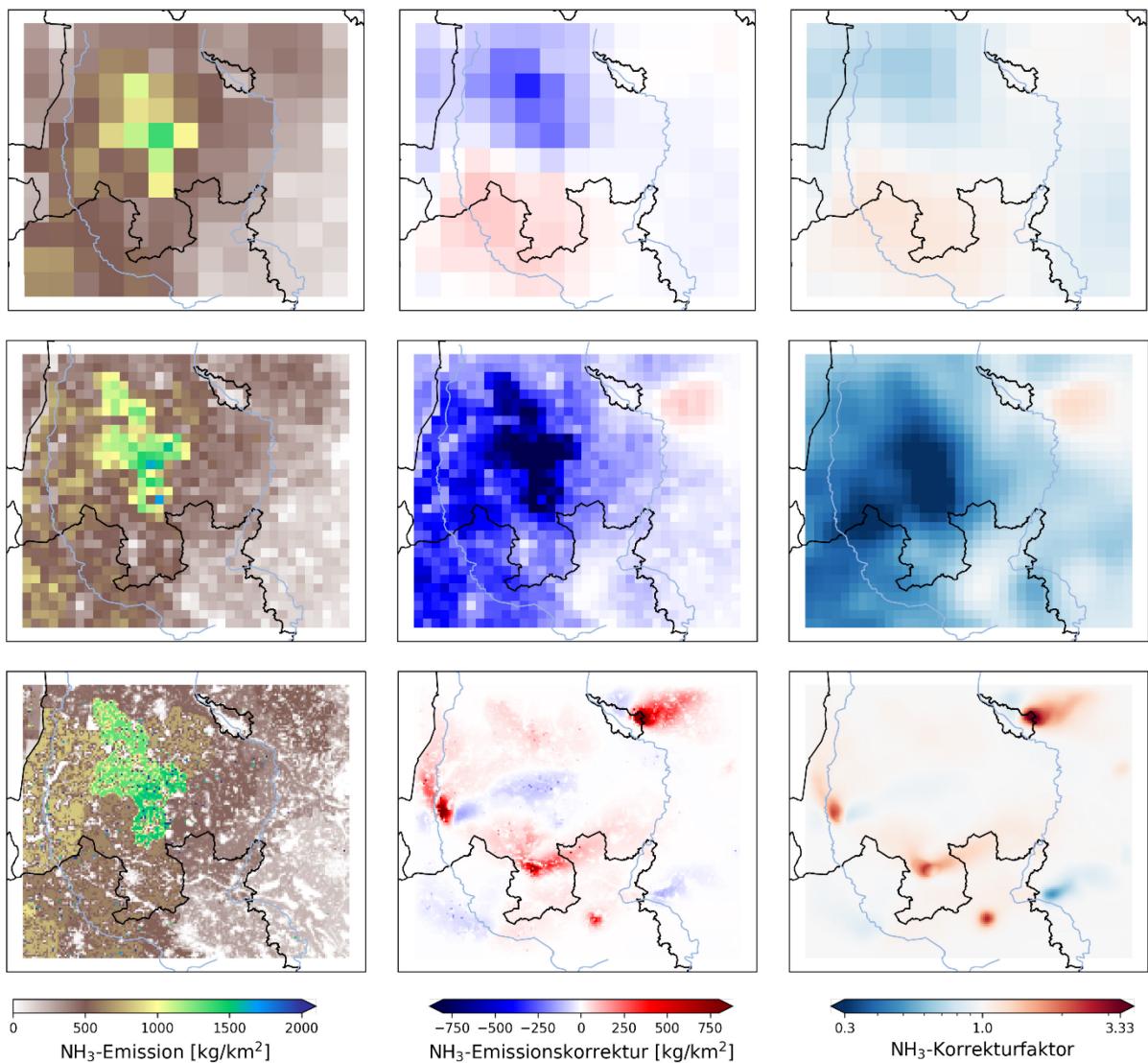


Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von NMVOCs

im ua1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ua1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ua1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

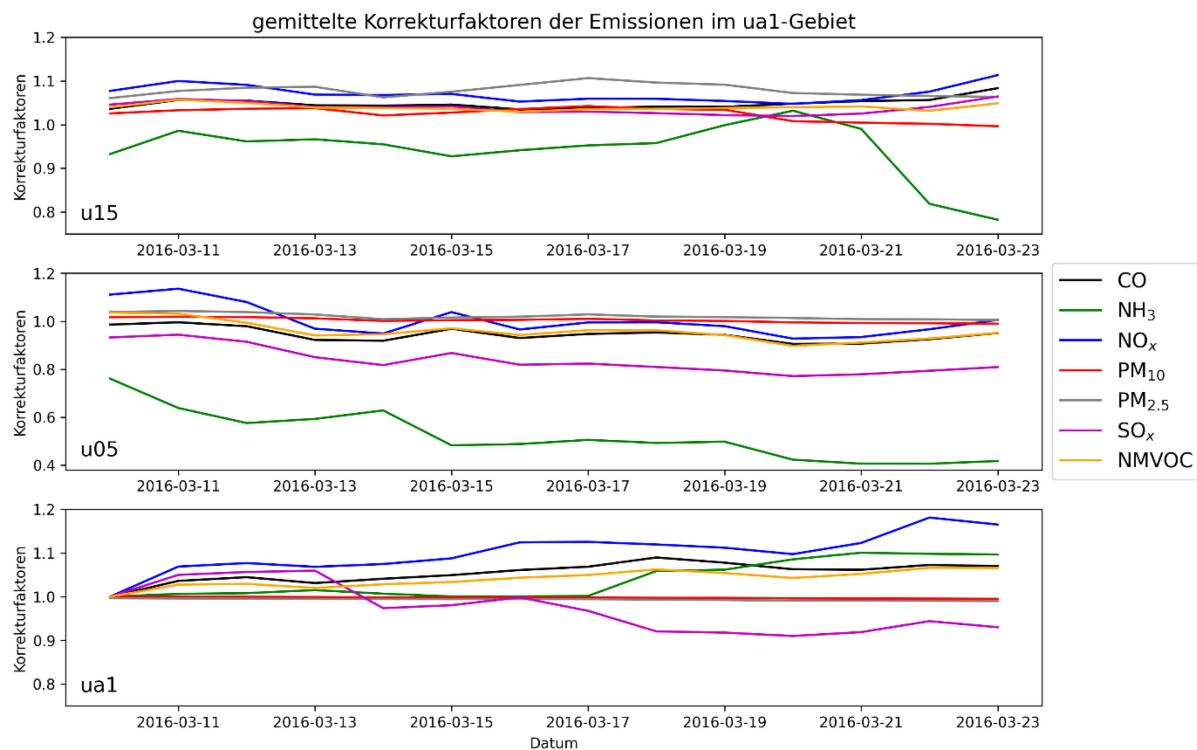
Abbildung 70 zeigt die gleichen Ergebnisse wie Abbildung 68 und Abbildung 69 nur für die NH₃-Emissionen in der ua1-Modellregion. Der Abgleich der räumlichen Emissionsverteilung mit den dominanten Emissionssektoren (Abbildung 65) bezeugt, dass die NH₃-Emissionen mit der landwirtschaftlichen Aktivität korrelieren. Während die Korrekturen mit der u15-Modellauflösung eine Art Dipolverteilung mit Emissionsreduktionen im Norden und Emissionserhöhung im Süden herausstellen, werden bei der u05-Modellaufösung im Wesentlichen Emissions-reduktionen analysiert. Lediglich östlich von Bremen zeigt die u05-Modellaufösung eine Korrektur zu höheren NH₃-Emissionen, was durch die u15-Ergebnisse gestützt wird. Die Verteilung der signifikanten Korrekturen bei der hochauflösten ua1-Simulation deckt sich mit den PM_{2,5}-Bodenbeobachtungsstationen. Außerdem zeigen die ua1-Emissionskorrekturen eine gewisse Abhängigkeit der Korrekturen von der Windrichtung, was sich in den schweifförmigen Korrekturen ausgehend von den Standorten der Beobachtungsstationen widerspiegelt. Im Analysezeitraum zwischen dem 10. und 23. März 2016 gab es in dem ua1-Modellgebiet zwei Phasen mit individuellen dominanten Windrichtungen. So wehte der Wind vom 10.-17. März vornehmlich aus ost-nordöstlicher Richtung, während anschließend vom 18.-23. März kontinuierliche Nordwestwinde vorherrschten.

Abbildung 70: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NH₃ für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets



Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von NH₃ im ua1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ua1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ua1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 71: Räumlich gemittelte Emissionskorrekturfaktoren für alle Modellaufösungen innerhalb des ua1-Modellgebiets



Räumlich gemittelte Emissionskorrekturfaktoren aller anthropogenen Emissionsspezies als Zeitreihen im ua1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ua1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ua1-Analyse (unten). Zu beachten ist, dass die Skalen an den y-Achsen für u15 und ua1 identisch sind, während sich die von u05 davon unterscheidet. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

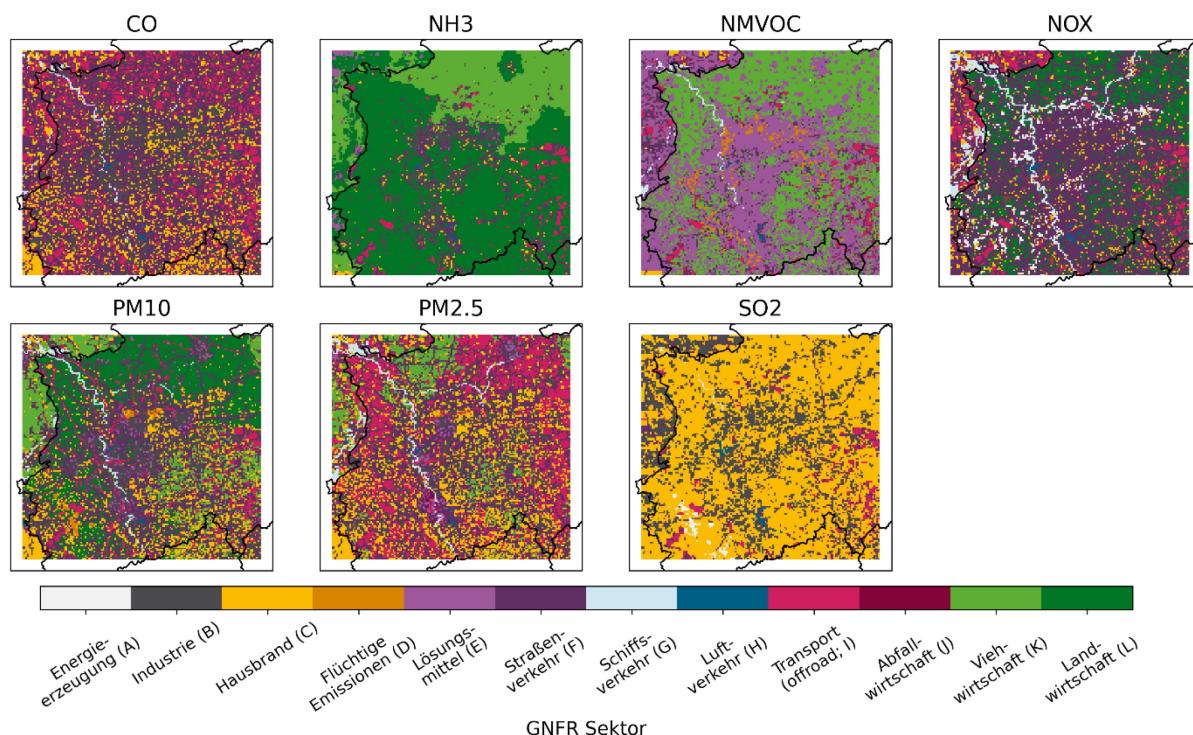
In Abbildung 71 sind die räumlich gemittelten Emissionskorrekturfaktoren für alle anthropogenen Emissionsspezies als Zeitreihe über den 14-tägigen Analysezeitraum dargestellt. Auch hier sind die Ergebnisse aller Modellaufösungen in jeweils einer Detailgrafik abgebildet (oben: u15, Mitte: u05, unten: ua1). Beim Vergleich der Zeitreihen mit unterschiedlicher räumlicher Auflösung wird zunächst deutlich, dass die gemittelten u15- und u05-Emissionskorrekturfaktoren in dem betrachteten Zeitraum mit unterschiedlichen Korrekturfaktoren starten. Dies liegt daran, dass die hier gewählten Korrekturfaktoren der u15- und u05-Modellanalyse aus der Jahresanalyse extrahiert wurden, deren Neustart am 1. März liegt. Die ua1-Analyse umfasst hingegen nur den Analysezeitraum ab 10. März, so dass sich die Korrekturfaktoren nicht einpendeln konnten. Des Weiteren stimmt die Analyse auf dem ua1-Modellgitter am 10. März mit dem Hintergrund überein, so dass die analysierten Emissionskorrekturfaktoren bei 1.0 bleiben. Anschließend entwickeln sich die ua1-Emissionskorrekturfaktoren jedoch auseinander. Das Post-Processing für Feinstaubemissionskorrekturen (siehe Kapitel 4.2.5) erzielt bei der ua1-Modellauflösung keinen verbesserten Beitrag zu den PM-Emissionskorrekturfaktoren, da die Information der Anfangswerte zu schnell aus der kleinen Region heraustransportiert wird. So, bleiben die Feinstaubkorrekturfaktoren in dem betrachteten Zeitraum im räumlichen Mittel konstant bei 1.0. Dieser konstante Korrekturverlauf deckt sich mit denen der Feinstaubkorrekturfaktoren des u05- und u15-Gitters. Die NO_x-Korrekturfaktoren von u15 und ua1 zeigen einen ähnlichen Trend hin zu höheren NO_x-Emissionen, während die entsprechenden Korrekturfaktoren von u05 zeitweise auf leichte NO_x-Emissionsabnahmen hindeuten. CO und NMVOCs entwickeln sich auf allen Gitterauflösungen ähnlich wie NO_x. Während die SO_x-Emissionen bei u15 durchgehend positive Korrekturfaktoren (> 1.0) hervorbringen, resultieren

aus der u05-Analyse ausschließlich Korrekturen hin zu geringeren Emissionen. Auf dem feinsten Modellgitter werden zunächst Korrekturfaktoren größer 1.0 abgeleitet, die sich ab dem 17. März jedoch mit einem klaren Trend zu Korrekturfaktoren kleiner 1.0 entwickeln. Dieses Verhaltensmuster steht im Zusammenhang mit dem Wechsel der Hauptwindrichtung. Die Korrekturfaktoren von NH₃ bei ua1 folgen ebenfalls diesem Trendwechsel, mit Korrekturen um 1.0 vom 10.-17. März und für den Rest des Analysezeitraums mit Korrekturen deutlich größer 1.0. Bei den groben Modellauflösungen werden überwiegend Korrekturfaktoren hin zu geringeren NH₃-Emissionen analysiert.

4.3.2 Modellregion ub1 – überwiegend industriell geprägt

Mit dem Modellgebiet über Nordrhein-Westfalen (ub1) sollen Emissionen in industriell geprägten Regionen untersucht werden. Abbildung 72 visualisiert für das ub1-Modellgebiet den stärksten emittierenden GNFR-Sektor pro Luftschatstoff. Das Modellgebiet ist insbesondere bei den CO-, PM- und SO₂-Emissionen mit Gitterzellen durchzogen, die vom GNFR-Sektor B – Industrie (dunkelgrau) dominieren werden. Nordrhein-Westfalen als größter Ballungsraum Deutschlands ist zudem stark durch Emissionen des Hausbrands (Sektor C, gelb) und des Straßenverkehrs (Sektor F, dunkellila) beeinflusst. Die CO-, NMVOC-, NO_x- und PM-Emissionen zeigen alle deutliche Signale des Schiffsverkehrssektors (G, hellblau) entlang des Rheins und teilweise auch am Wesel-Datteln- und Dortmund-Ems-Kanal.

Abbildung 72: Dominierende GNFR-Sektoren im ub1-Modellgebiet

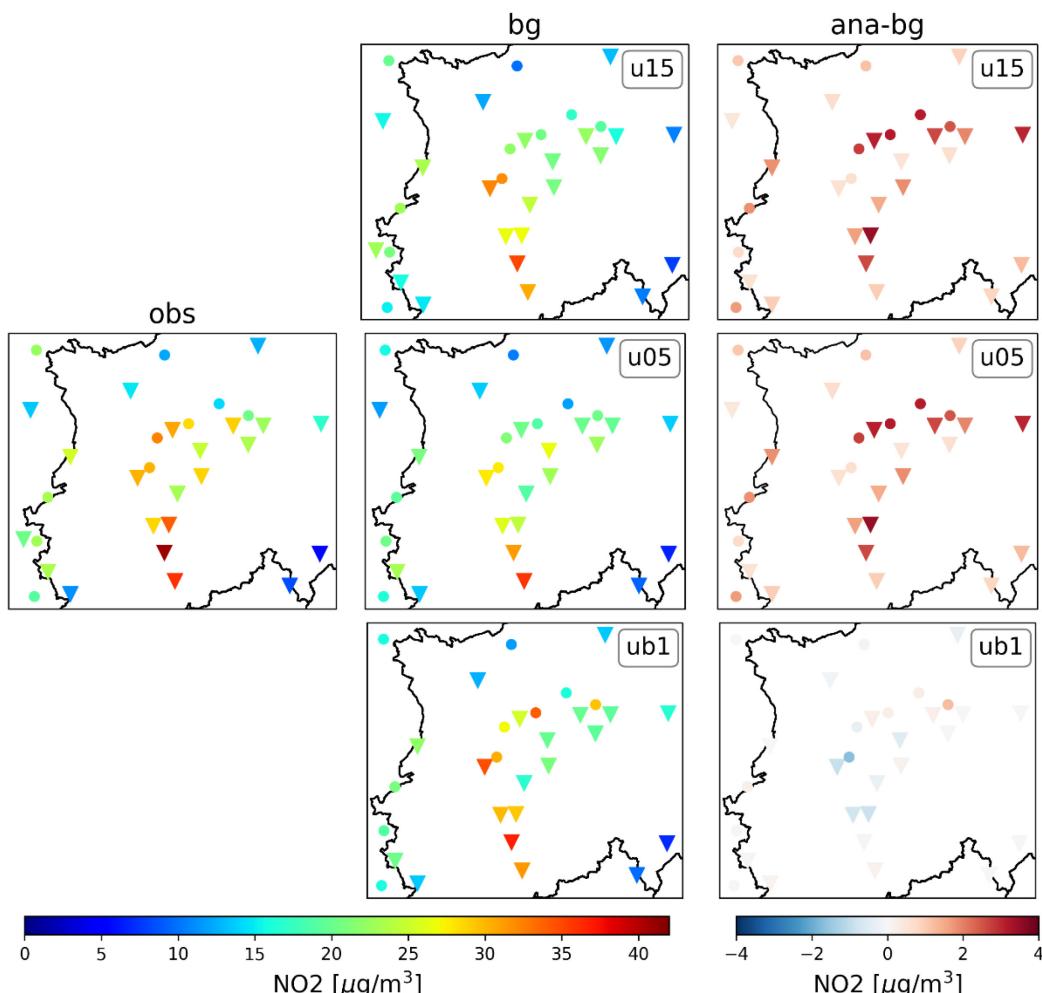


Dominierende GNFR-Sektoren pro Spezies im ub1-Modellgebiet basierend auf den totalen Jahresemissionen für 2016.
Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 73 und Abbildung 74 zeigen das Analyseverhalten für die NO₂- bzw. SO₂-Konzentrationen an den entsprechenden Beobachtungsstationen innerhalb des ub1-Modellgebiets für alle drei Modellauflösungen (oben – u15, Mitte – u05, unten – ub1). Alle Daten sind über den Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 gemittelt. Stationen, die dem Assimilationsdatensatz zugeordnet sind, werden durch Dreiecke repräsentiert, während die Validierungs-

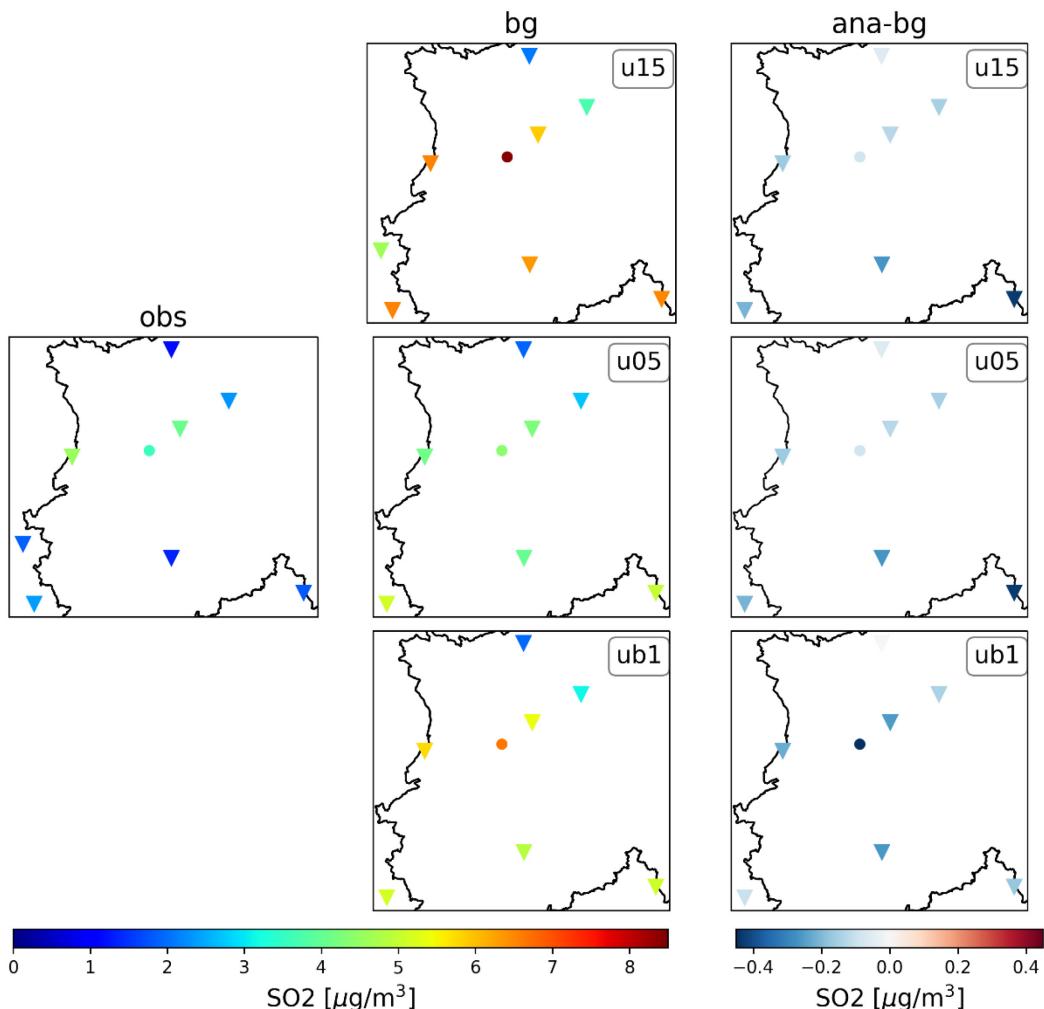
stationen durch Kreise dargestellt werden. Da die Beobachtungen unabhängig von der Modellauflösung sind, sind sie nur einmal auf der linken Seite abgebildet. Die mittlere Spalte gibt die Konzentrationen der Hintergrundläufe an und die rechte Spalte beinhaltet die Differenz zwischen Analyse- und Hintergrundkonzentrationen und spiegelt somit das Analyseinkrement wider. Mit zunehmender Modellauflösung liegt der Modellhintergrund insbesondere im Süden der ub1-Region näher an den Beobachtungen. Die Korrekturen der Modellauflösungen von u15 und u05 bestätigen sich gegenseitig, während sich besonders bei NO₂ in der ub1-Analyse ein anderes Korrekturverhalten herauskristallisiert. Dies hängt damit zusammen, dass nur die betrachtete Region in die Kostenfunktion mit einfließt, während bei u05 und u15 jeweils größere Gebiete in der Analyse berücksichtigt werden. Das bedeutet, dass im ub1-Modellgebiet gegenüber der grob aufgelösten Modellgebiete weniger Informationen verarbeitet werden. Entsprechend wird durch die gewählte Abbildungsart sichtbar, dass die Schadstoffkonzentrationen in der ub1-Analyse nahe der Gebietsgrenzen nur kleine Korrekturen erfahren. Dies steht im Zusammenhang damit, dass die Information, die an den Beobachtungsstationen gesammelt wird, schnell aus dem Modellgebiet heraustransportiert wird. Des Weiteren ist der Einflussradius der Korrekturen auf den größeren Gittern größer, sodass die Korrekturen großflächiger wirken als in der ub1-Analyse.

Abbildung 73: Mittlere NO₂-Konzentration der Beobachtungen und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von NO₂ innerhalb des ub1-Modellgebiets



NO₂-Beobachtungen (links) und entsprechende Modellhintergrundkonzentrationen (mittlere Spalte) und Analyseinkremente (rechte Spalte) gemittelt über den Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016. Die Ergebnisse sind für alle Modellauflösungen abgebildet (oben – u15, Mitte – u05, unten – ub1). Stationen, die dem Assimilationsdatensatz zugeordnet sind, werden durch Dreiecke markiert, Validierungsstationen sind als Punkte dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 74: Mittlere SO₂-Konzentration der Beobachtung und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von SO₂ innerhalb des ub1-Modellgebiets

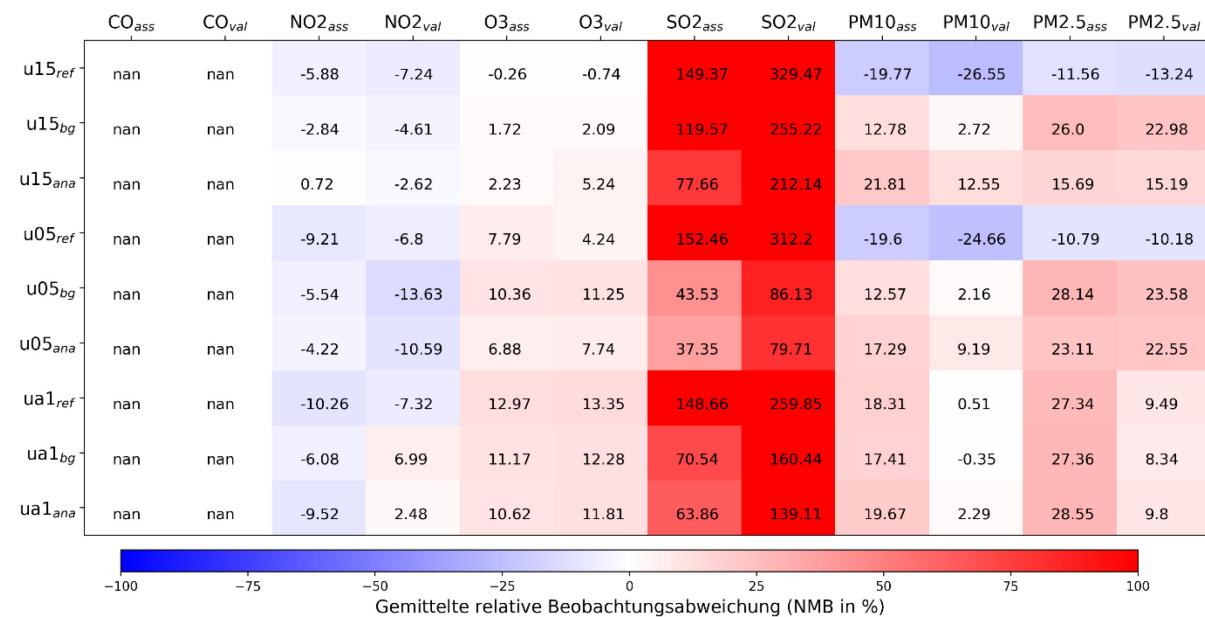


SO₂-Beobachtungen (links) und entsprechende Modellhintergrundkonzentrationen (mittlere Spalte) und Analyseinkremente (rechte Spalte) gemittelt über den Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016. Die Ergebnisse sind für alle Modellauflösungen abgebildet (oben – u15, Mitte – u05, unten – ub1). Stationen, die dem Assimilationsdatensatz zugeordnet sind, werden durch Dreiecke markiert, Validierungsstationen sind als Punkte dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Eine Gesamtübersicht des Analyseverhaltens aller Spezies bei unterschiedlichen Modellauflösungen ist in Abbildung 75 in Form des gemittelten normalisierten Bias zwischen Simulationen und Beobachtungen dargestellt. Hier wird deutlich, dass es insbesondere bei SO₂ in der Analyse zu einer deutlichen Reduktion der Beobachtungsabweichung kommt. Dies gilt sowohl für die Assimilationsstationen als auch für die Validierungsstationen. Dennoch sind die prozentualen Beobachtungsabweichungen hoch, was an den geringen SO₂-Konzentrationen liegt. Die sekundäre Spezies O₃ scheint hier mit zunehmender Modellauflösung im Mittel weiter von den Beobachtungen weg zu liegen. Dies kann im Zusammenhang mit der begünstigenden

Diffusität lokaler Emissionen bei größerer Modellaufösung stehen. Gleches lässt sich bei PM-Beobachtungen erkennen, wo der mittlere normierte Bias im ub1-Modellgitter das Vorzeichen wechselt und somit im starken Kontrast zu den groben Gittern steht. Die Industrie-dominierten CO-Konzentrationsverteilungen werden in NRW leider nicht beobachtet und können somit ausschließlich durch Beobachtungen anderer chemisch-gekoppelter Spezies korrigiert werden.

Abbildung 75: Normalisierten mittleren Bias aller Simulationen innerhalb des ub1-Modellgebiets

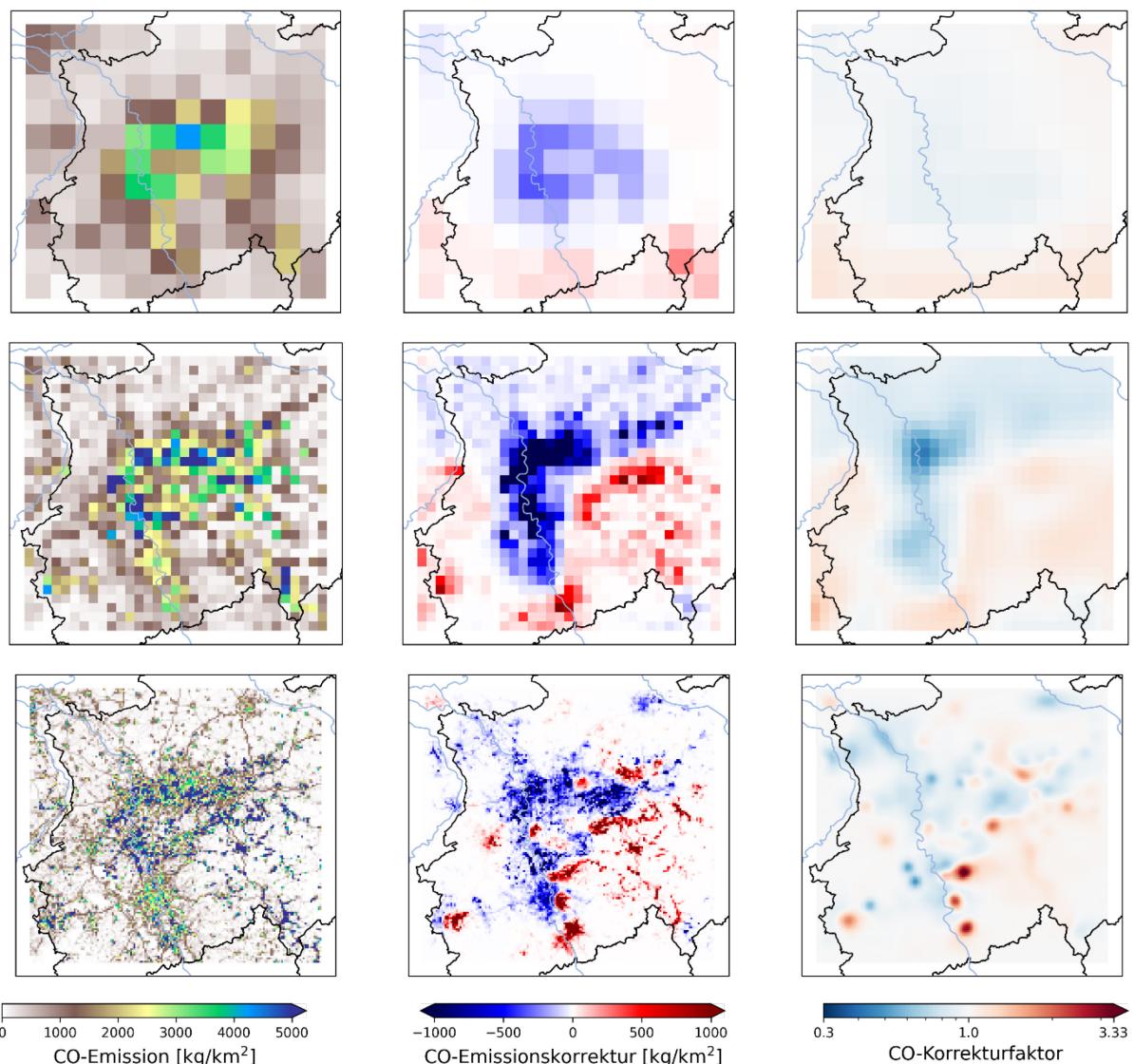


Gemittelte relative Beobachtungsabweichung (oder normalisierter mittlerer Bias, in Zahlen und farblich markiert) für alle Modellsimulationen (u15, u05, ub1 und ref-Referenzlauf, bg-Modellhintergrund, ana-Analyse) und alle Beobachtungsspezies an Assimilations- (ass) und Validierungsstationen (val) innerhalb des ub1-Modellgebiets. Fehlende Beobachtungen sind mit nan gekennzeichnet. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Die erzielten Emissionskorrekturen von CO sind unter anderem in Abbildung 76 dargestellt. Bei allen Modellaufösungen sind trotz fehlender CO-Beobachtungen in diesem Gebiet signifikante Emissionskorrekturfaktoren in den Analysen abgeleitet worden. Die originalen CO-Emissionen (linke Spalte in Abbildung 76) korrelieren stark mit den Ballungszentren, aber auch der Beitrag des Straßenverkehrs wird insbesondere in den hochaufgelösten Daten (untere Zeile in Abbildung 76) sichtbar durch die Wiedergabe des Straßennetzes. Abbildung 77 und Abbildung 78 geben die gleiche Übersicht über die Emissionen und die in den Analysen erzielten Emissions-korrekturen für SO_x bzw. NO_x wieder. Während die Emissionskorrekturen aller betrachteten Spezies auf der groben u15-Modellaufösung noch recht homogen erscheinen, werden die Emissionskorrekturen mit zunehmender horizontaler Modellaufösung immer heterogener und detaillierter. Die groben Strukturen der Emissionskorrekturen sind aber über alle Modellaufösungen hinweg ähnlich. Generell zeigen alle betrachteten Schadstoffe Emissions-reduktionen von Köln aus entlang des Rheins flussabwärts, im Ruhrgebiet und nördlich davon. Sowohl bei den NO_x- als auch bei den SO_x-Emissionen werden mit zunehmender Auflösung auch die individuellen und emissionsstarken Punktquellen sichtbar. Diese erfahren durch die Analyse überwiegend negative Korrekturen hin zu schwächeren Emissionen. Hierbei kann es einen Zusammenhang mit schlecht abgeschätzten Profilen bei der vertikalen Emissionsverteilung geben (siehe auch Abschnitt 4.2.2). Im Süden und Südwesten des ub1-Gebietes resultieren positive Emissionskorrekturen. Diese Regionen beschreiben die Mittelgebirgsregionen der Nordeifel, des Bergischen Lands und des Sauerlands und sind weniger industriell belastet. Zudem werden mit erhöhter horizontaler Modellaufösung auch einige Städte innerhalb des

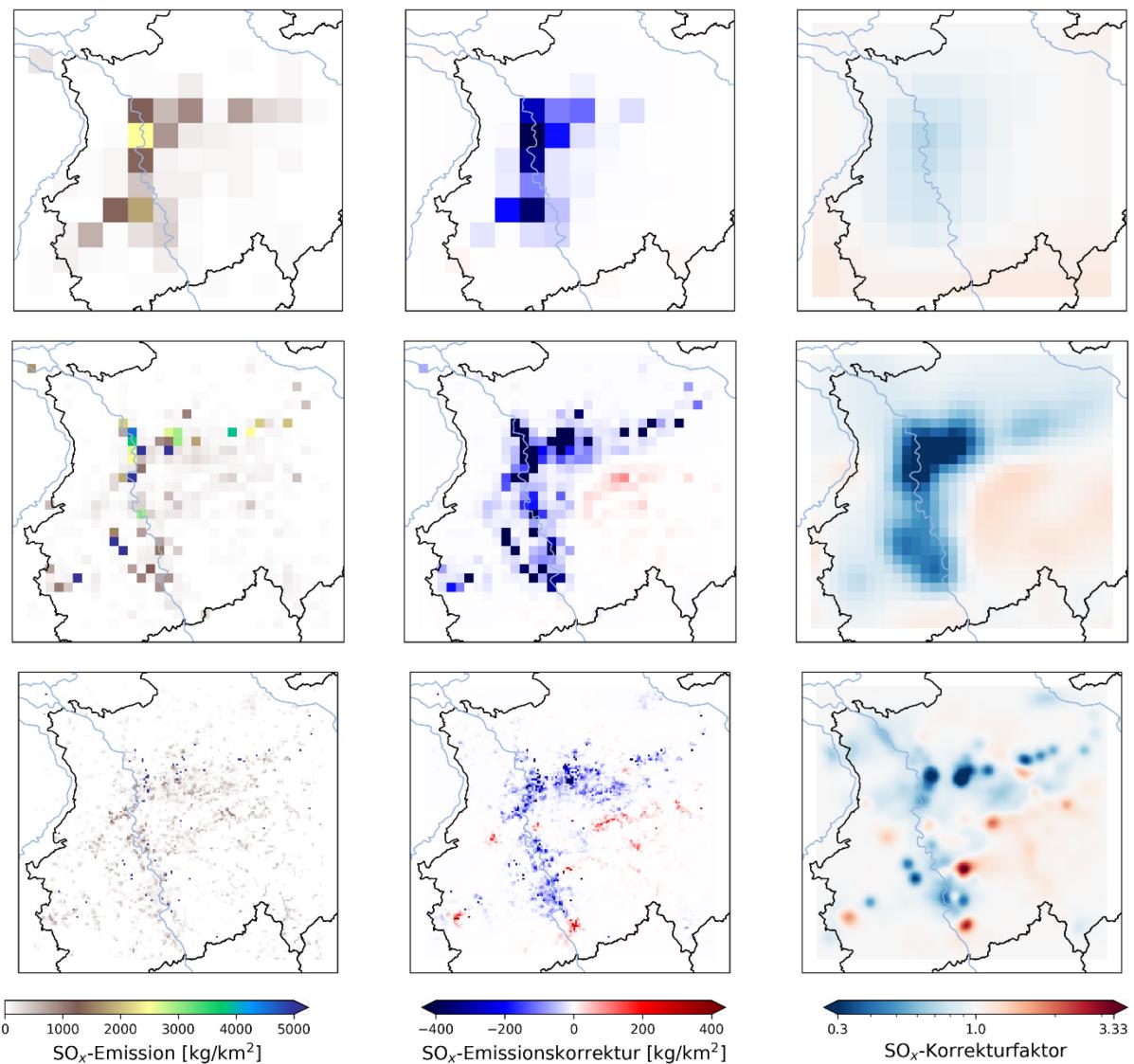
Ruhrgebietes mit Korrekturfaktoren > 1.0 für NO_x und CO analysiert. Dazu zählen beispielsweise Gelsenkirchen, Herne und Düsseldorf-Nord und Ratingen. Insbesondere bei den analysierten NO_x-Emissionskorrekturen zeigen sich starke Signale für gewisse Emissionssektoren. So wird beispielsweise das Autobahnnetz in NRW in den Emissionskorrekturen von NO_x sichtbar. Hier erfahren die Autobahn A4 zwischen Aachen und Köln, sowie der Autobahnring um Köln oder die Autobahn A3 im Norden von Oberhausen Emissionsreduktionen, während die Autobahn A45 zwischen Hagen und Siegen (Sauerlandlinie) tatsächlich auf deutlich höhere NO_x-Emissionen schließen lässt. Auch Schiffverkehrsemisionen erhalten prägnante Korrekturen. Von Düsseldorf rheinabwärts zeigt sich, dass die Schiffsemisionen im aktuellen Emissionskataster deutlich überschätzt werden.

Abbildung 76: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für CO für alle Modellauflösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets



Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von CO im ub1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ub1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ub1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 77: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für SO_x für alle Modellaufösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets



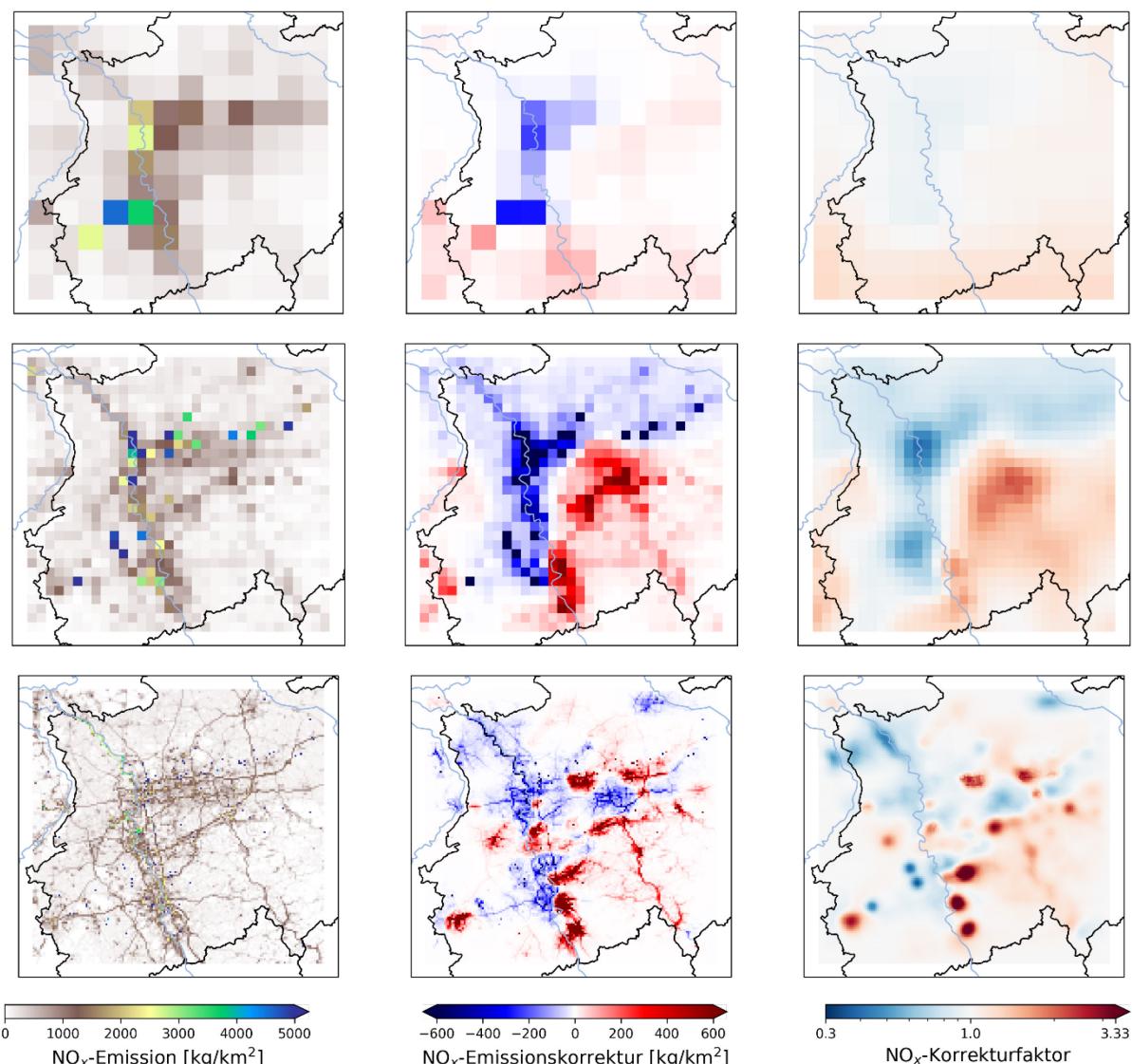
Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von SO_x im ub1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ub1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ub1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 79 visualisiert die räumlich gemittelten Emissionskorrekturfaktoren für alle anthropogenen Emissionsspezies als Zeitreihe über den ub1-Analysezeitraum für alle Modellaufösungen. Wie zuvor schon mehrfach diskutiert, fallen die PM-Korrekturen insgesamt nur minimal aus. Bei den beiden groben Modellaufösungen ermöglicht das Post-Processing der PM-Korrekturfaktoren die Ableitung von leichten Emissionszunahmen. Für die im ub1-Gebiet unbeobachteten Emissionsspezies CO, NH₃ und NMVOCs zeigen sich im Verlauf des Analysezeitraums vergleichbare Trends zwischen den unterschiedlichen Modellaufösungen. Während die NO_x- und SO_x-Korrekturen bei der u15-Modellaufösung insgesamt relativ gering ausfallen, erkennt man in den höher aufgelösten Analysen stärkere Emissionskorrekturfaktoren. Insbesondere die zuvor diskutierten starken Überschätzungen der SO₂-Konzentrationen im Modell gegenüber den Beobachtungen (vergleiche Abbildung 74) erfahren bei höherer Modellauflösung stärkere Korrekturen und kommen somit näher an die beobachteten Konzentrationen (vergleiche Abbildung 75). Es gilt aber an dieser Stelle zu beachten, dass die

räumliche Mittelung aller Emissionskorrekturfaktoren speziell bei den höher aufgelösten Emissionsdaten mit Vorsicht zu diskutieren sind, da die Emissionskorrekturen räumlich sehr heterogen verteilt sind. Somit ist es kritisch für hochauflöste Daten einen regionalen Emissionskorrekturfaktor abzuleiten.

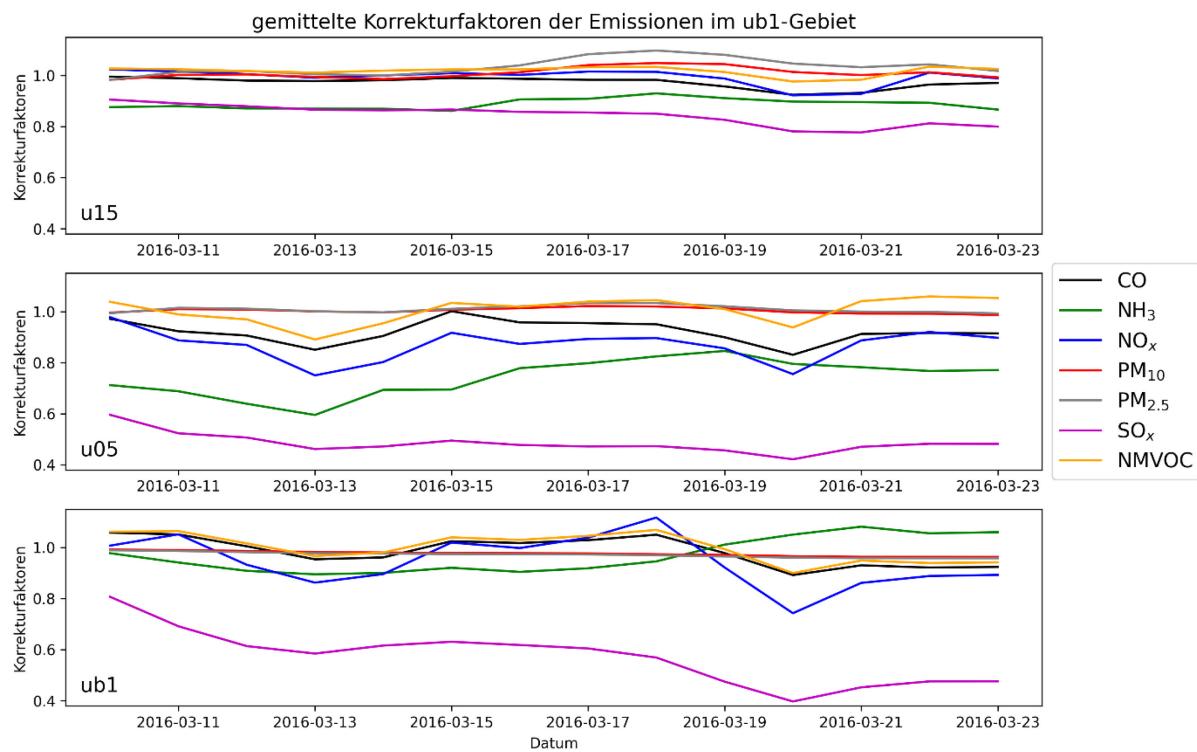
Wie auch in der ua1-Analyse gab es im ub1-Analysezeitraum in NRW am 18. März 2016 einen Wechsel der vorherrschenden Windrichtung von Ost-Nord-Ost-Winden zu Nord-West-Winden. Ein gewisser Einfluss des Windes auf die Emissionskorrekturfaktoren wird hier im Zusammenhang mit den Gasphasen-Emissionen beobachtet, da hier besonders bei den höher aufgelösten Analysen deutliche Sprünge in den Zeitreihen zu erkennen sind. Für eine genauere Untersuchung dessen, müssten die räumlichen Emissionskorrekturen zeitlich aufgelöst über einen längeren Analysezeitraum betrachtet werden. Die detaillierte Analyse von zeitlich fein aufgelösten Korrekturfaktoren ist jedoch nicht in den Zielen des Projektvorhabens vorgesehen.

Abbildung 78: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NO_x für alle Modellaufösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets



Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von NO_x im ub1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ub1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ub1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 79: Räumlich gemittelte Emissionskorrekturfaktoren für alle Modellaufösungen innerhalb des ub1-Modellgebiets



Räumlich gemittelte Emissionskorrekturfaktoren aller anthropogenen Emissionsspezies als Zeitreihen im ub1-Analysezeitraum vom 10.-23. März 2016 innerhalb der ub1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die ub1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

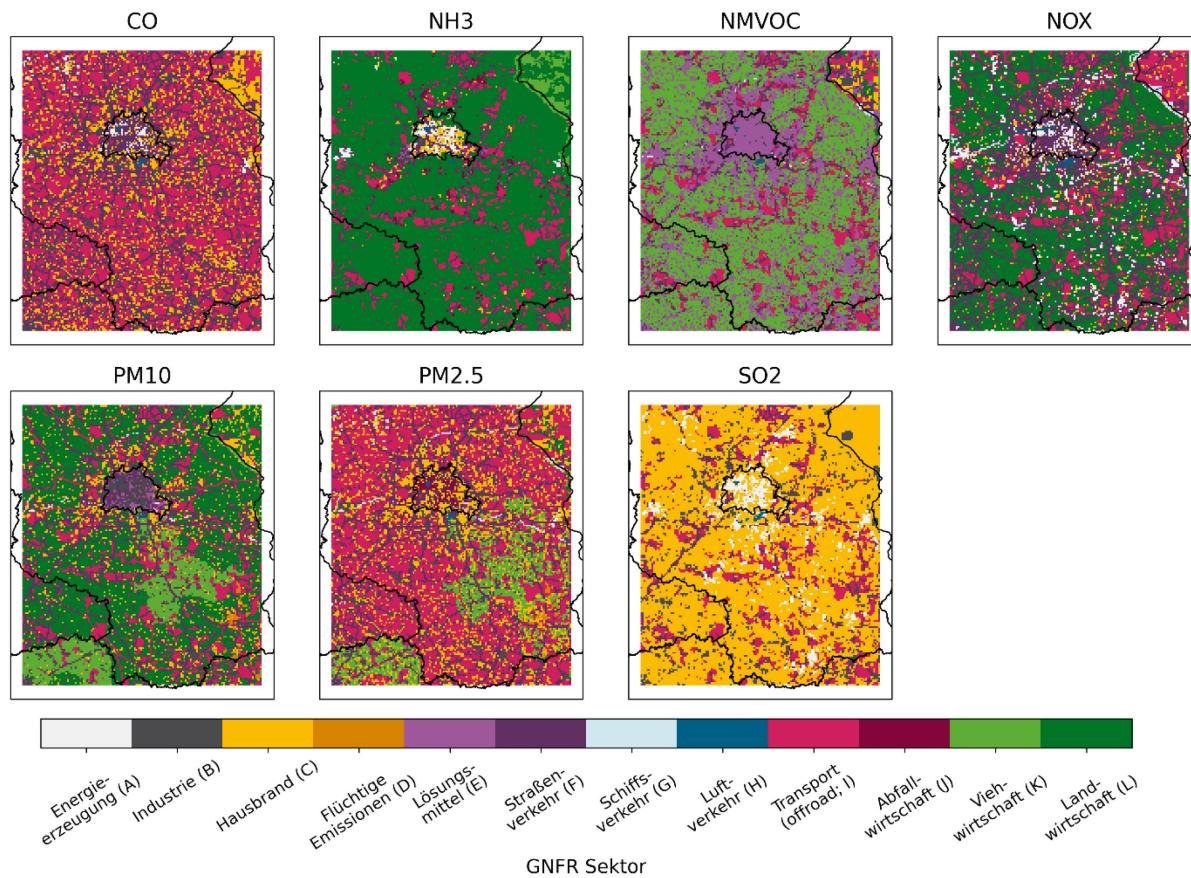
4.3.3 Modellregion uc1 – überwiegend urban geprägt

Repräsentativ für Emissionen im urbanen Raum wird die Region um Berlin untersucht. Hier repräsentiert Berlin die emissionsintensive Stadt in der teilweise sehr ländlich geprägten Region Brandenburgs. Der gewählte Analysezeitraum für das uc1-Modellgebiet erstreckt sich vom 1.-14. April 2016. In Abbildung 80 ist der am stärksten emittierende GNFR-Sektor pro Gitterzelle für alle anthropogen emittierten Spezies innerhalb des uc1-Modellgebiets dargestellt. Anhand der Verteilung der dominierenden GNFR-Sektoren ist für alle Schadstoffe die Lage Berlins klar zu identifizieren. Erkennbar ist einerseits das verdichtete Verkehrsnetz innerhalb der Hauptstadt, das in den Verteilungen des Straßenverkehrssektors F bei CO, NO_x und Feinstaub deutlich wird. Andererseits treten die Emissionen des Hausbrands (Sektor C) bei CO, NH₃ und Feinstaub im Bereich der Metropole flächendeckender hervor. Der Hausbrandsektor dominiert die SO₂-Emissionen innerhalb der gesamten uc1-Region mit gewissen Anteilen im straßenunabhängigen Transport und der Energieerzeugung. Der Unterschied zwischen städtischen und ländlichen Emissionen ist hierbei jedoch nicht sehr prägnant. Für die NMVOC-Emissionen überwiegt innerstädtisch der Anteil von Lösungsmitteln (Sektor E) gegenüber viehwirtschaftlichen Emissionen (Sektor K) im ländlichen Umland.

Zur Evaluierung des Analyseverhaltens auf den unterschiedlichen Skalen der Modellaufösungen ist in Abbildung 81 die Übersicht aller gemittelten relativen Beobachtungsabweichungen von den Modellsimulationen abgebildet. Für den CO-Vergleich zwischen Modell und Beobachtung ist zu beachten, dass es innerhalb der uc1-Region nur eine CO-Beobachtungsstation gibt (vgl. Abbildung 104 im Anhang). Der mittlere normalisierte Bias von NO₂ und O₃ wird durch die Assimilation der Beobachtungsdatensätze bei allen Modellaufösungen von Referenzlauf über

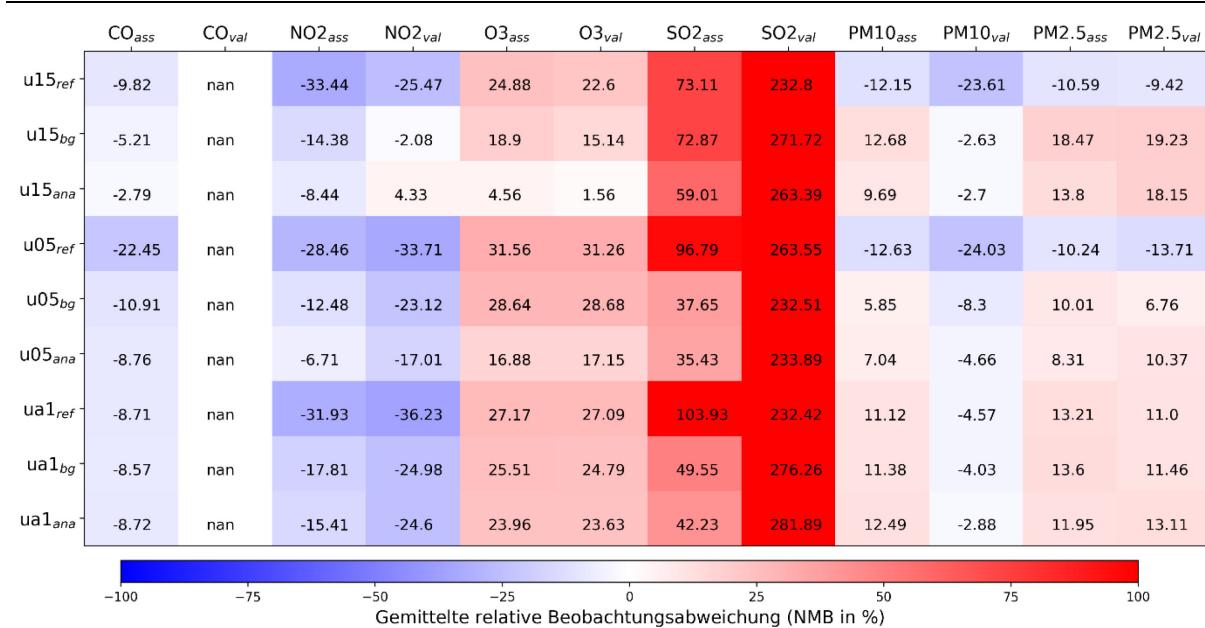
Hintergrund-simulation zur Analyse geringer. Dies lässt auf eine erfolgreiche Analysemethode schließen. An den Assimilationsstationen von SO₂ und PM_{2,5} ist das gleiche Verhalten erkennbar. Generell bestätigen sich in der uc1-Modellregion die für andere Regionen ebenso geltenden Modellunterschätzungen der NO₂-Konzentrationen und Überschätzungen von SO₂.

Abbildung 80: Dominierende GNFR-Sektoren im uc1-Modellgebiet



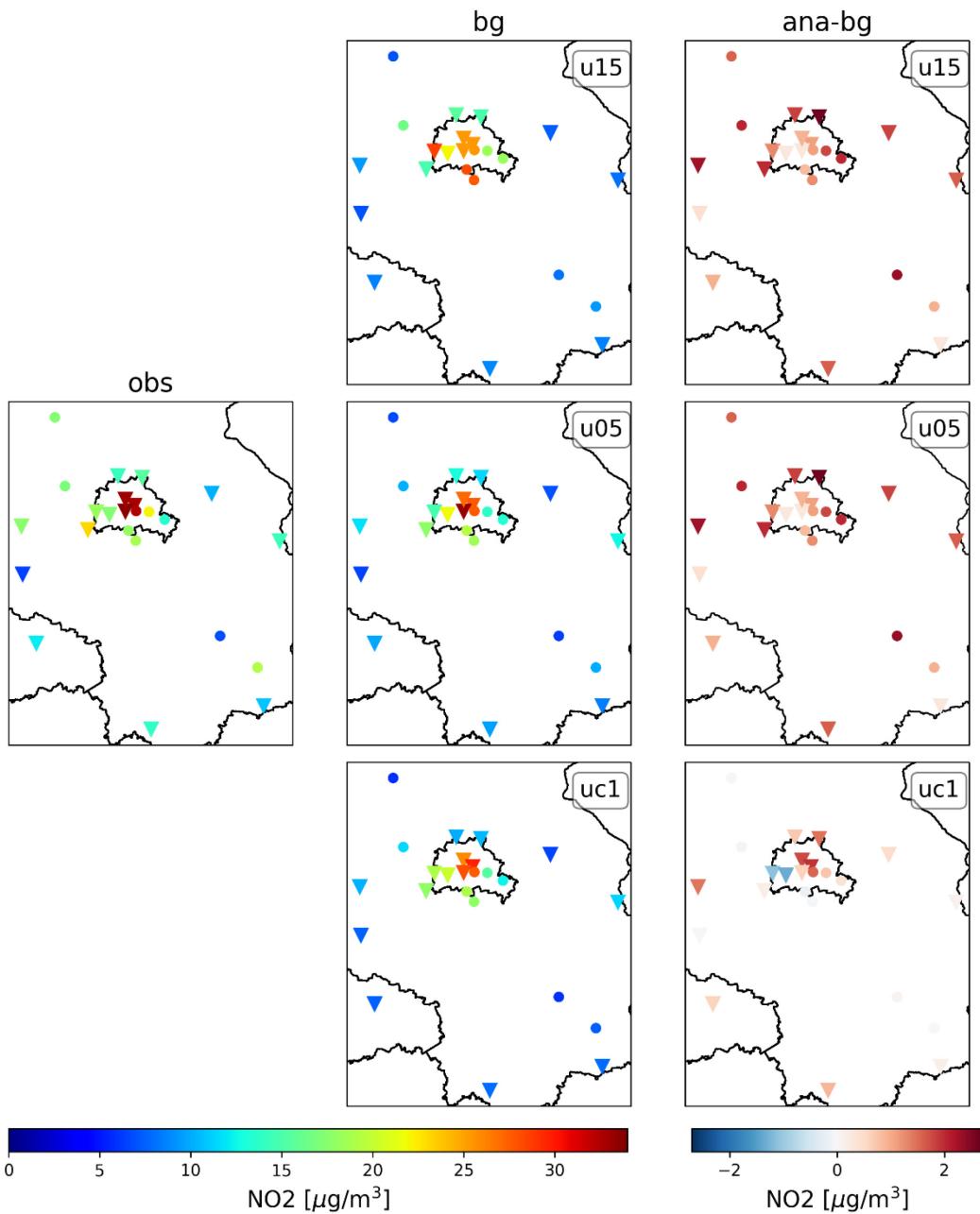
Dominierende GNFR-Sektoren pro Spezies im uc1-Modellgebiet basierend auf den totalen Jahresemissionen für 2016.
Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 81: Normalisierten mittleren Bias aller Simulationen innerhalb des uc1-Modellgebiets



Gemittelte relative Beobachtungsabweichung (oder normalisierter mittlerer Bias, in Zahlen und farblich markiert) für alle Modellsimulationen (u15, u05, uc1 und ref-Referenzlauf, bg-Modellhintergrund, ana-Analyse) und alle Beobachtungsspezies an Assimilations- (ass) und Validierungsstationen (val) innerhalb des uc1-Modellgebiets. Fehlende CO-Validierungs-beobachtungen sind mit nan gekennzeichnet. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 82: Mittlere NO₂-Konzentration der Beobachtung und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von NO₂ innerhalb des uc1-Modellgebiets

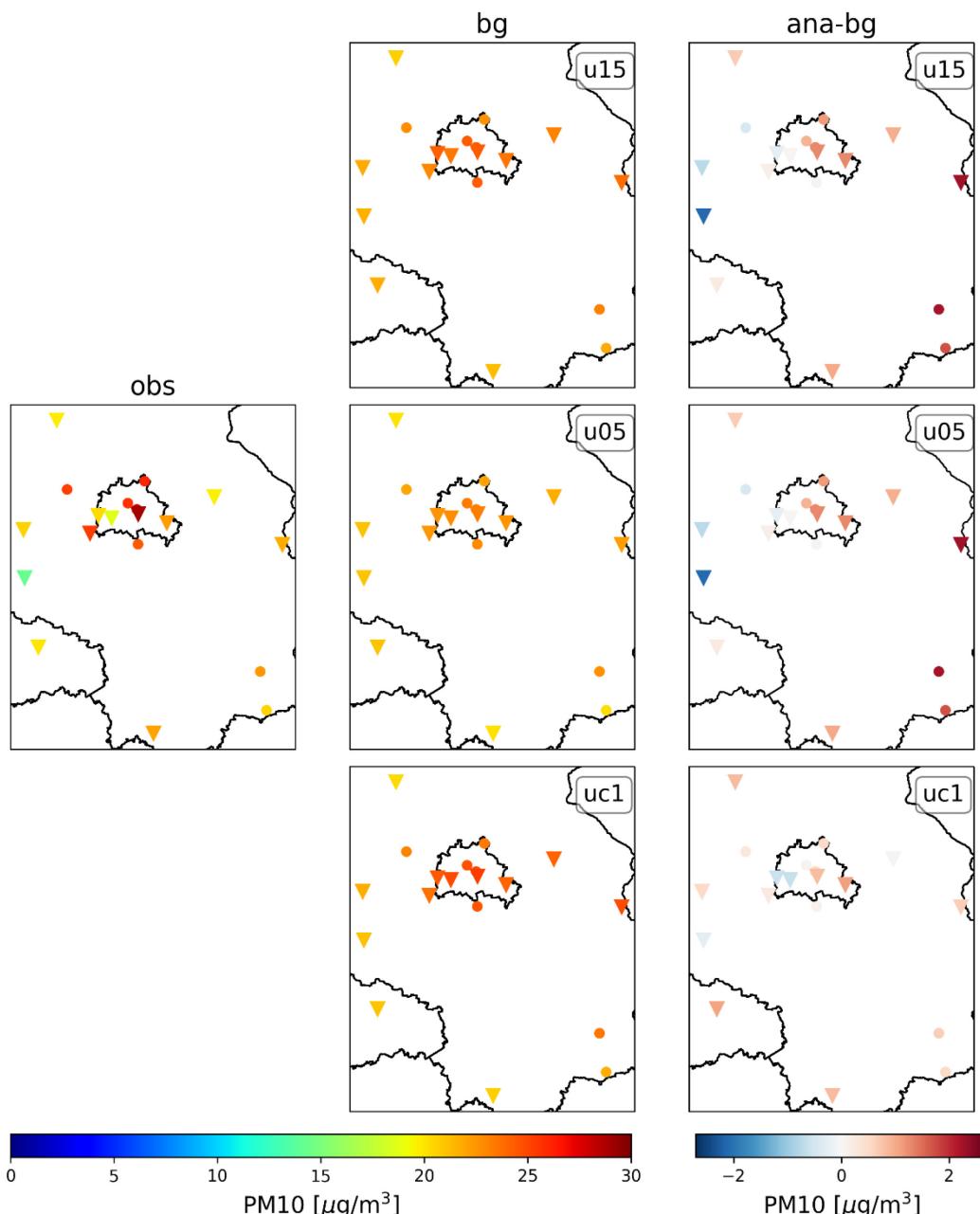


NO₂-Beobachtungen (links) und entsprechende Modellhintergrundkonzentrationen (mittlere Spalte) und Analyseinkreme (rechte Spalte) gemittelt über den Analysezeitraum vom 1.-14. April 2016. Die Ergebnisse sind für alle Modellaufösungen abgebildet (oben – u15, Mitte – u05, unten – uc1). Stationen, die dem Assimilationsdatensatz zugeordnet sind, werden durch Dreiecke markiert, Validierungsstationen sind als Punkte dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 82 und Abbildung 83 zeigen die mittlere gemessene NO₂- bzw. PM₁₀-Konzentration an den Beobachtungsstationen innerhalb der uc1-Region und die entsprechenden Hintergrundwerte der Modellsimulationen aller Auflösungen. Zudem ist das Analyseinkrement an den Stationen angegeben. Für beide Schadstoffe gilt, dass die höchsten Konzentrationen im Bereich der Stadt Berlin auftreten. Im Zentrum Berlins sind die NO₂-Beobachtungen besonders hoch. Die Hintergrundkonzentrationen der Simulationen korrelieren mit den Beobachtungen,

auch wenn sie die Stärke der Konzentrationen nicht widerspiegeln. Insbesondere bei NO₂ wird sichtbar, dass bei höchster Modellauflösung nur bedingt Korrekturen in der Nähe der Gebietsgrenzen möglich sind. Jedoch erlaubt die hohe Auflösung aber auch differenziertere Korrekturen innerhalb Berlins sodass beispielsweise ganz im Südwesten der Stadt bei beiden Schadstoffen Korrekturen hin zu geringeren Schadstoffkonzentrationen analysiert werden. Der allgemeine Eindruck den Abbildung 81 vermittelt, dass die PM₁₀-Konzentrationen an den Validierungsstationen flächen-deckend unterschätzt werden, bestätigt sich bei Betrachtung der räumlich aufgelösten Konzentration nicht.

Abbildung 83: Mittlere PM₁₀-Konzentration der Beobachtung und des Hintergrundlaufs sowie das Analyseinkrement an den Beobachtungsstandorten von PM₁₀ innerhalb des uc1-Modellgebiets

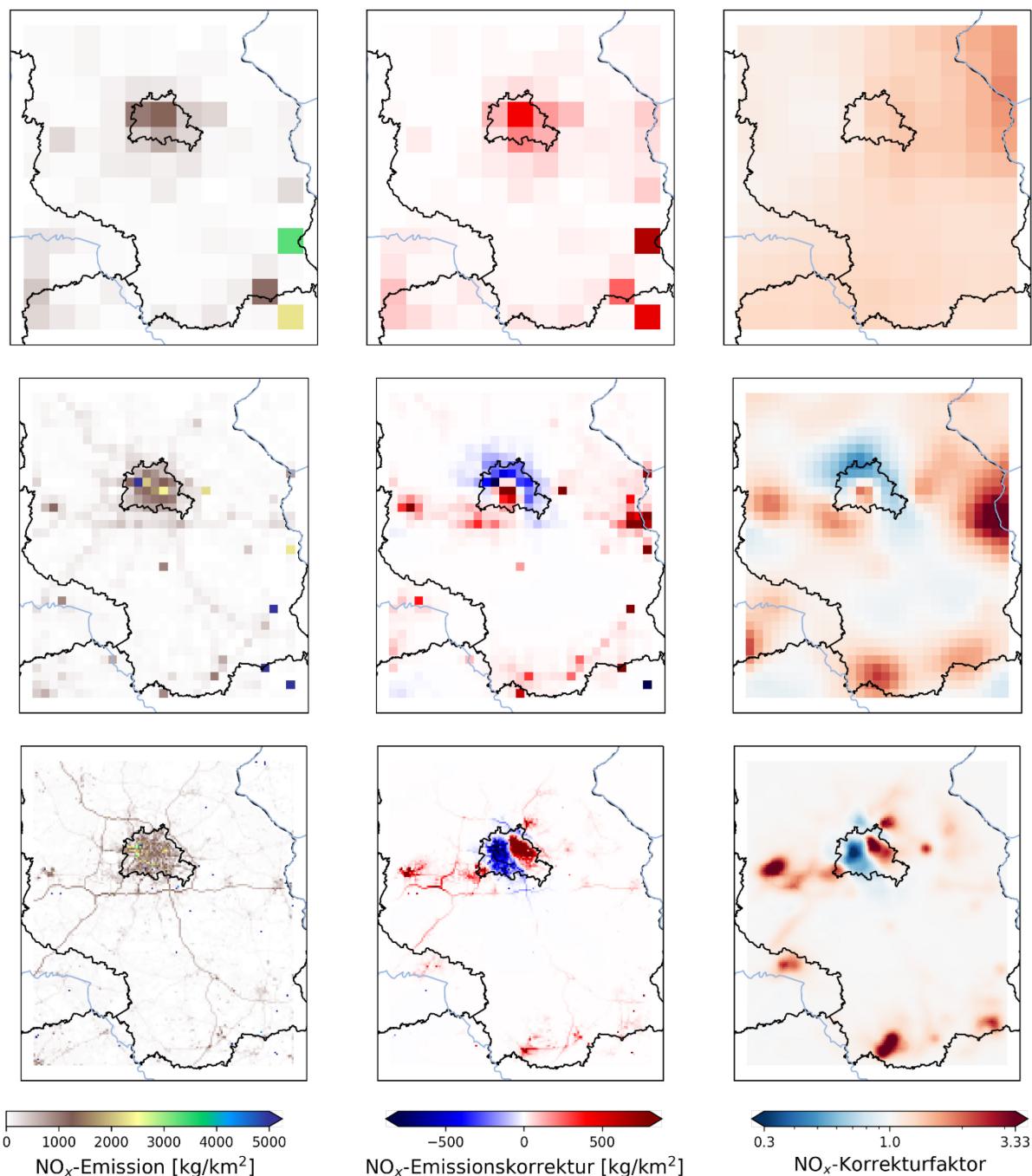


PM₁₀-Beobachtungen (links) und entsprechende Modellhintergrundkonzentrationen (mittlere Spalte) und Analyseinkreme (rechte Spalte) gemittelt über den Analysezeitraum vom 1.-14. April 2016. Die Ergebnisse sind für alle

Modellaufösungen abgebildet (oben – u15, Mitte – u05, unten – uc1). Stationen, die dem Assimilationsdatensatz zugeordnet sind, werden durch Dreiecke markiert, Validierungsstationen sind als Punkte dargestellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

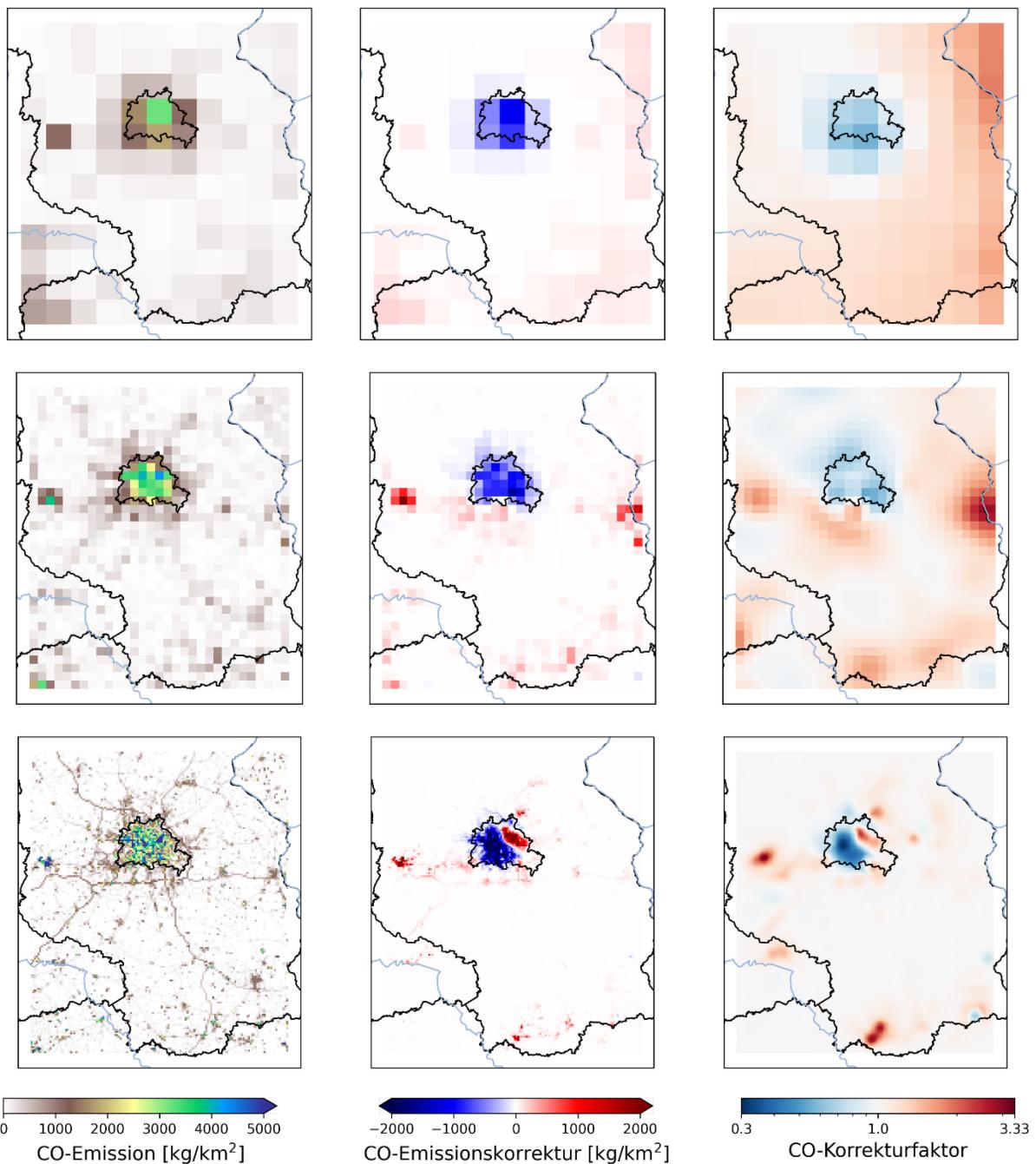
In den Abbildung 84 und Abbildung 85 sind die Emissionen und Emissionskorrekturen der anthropogenen NO_x und CO-Emissionen repräsentativ für die uc1-Region dargestellt. Für beide Schadstoffe kristallisieren sich die stärksten Korrekturen im Bereich der stärksten Emissionen heraus, nämlich in Berlin. Bei den NO_x-Emissionskorrekturen treten die Punktquellen vereinzelt deutlich in Erscheinung. Dies gilt auch für die grob aufgelösten u15-Simulationen im Südwesten der uc1-Modellregion. Sowohl bei den NO_x- als auch bei den CO-Emissionskorrekturen treten die Autobahnen im ländlichen Umland Berlins nur bei mindestens 5 km horizontaler Auflösung in Erscheinung. Deutliche Emissionskorrekturen gibt es für die Stadt Brandenburg sowohl in der uc1-Analyse als auch in der u05-Analyse, während die Korrekturfaktoren für Frankfurt an der Oder nur im Zusammenhang mit der u05-Analyse sichtbar hervortreten. Bei der u15-Analyse von NO_x werden im zeitlichen Mittel alle Gitterzellen mit Emissionskorrekturen hin zu stärkeren Emissionen ermittelt, während für CO-Emissionsreduktionen in Berlin und ganz leichte Emissionsanhebung im Umland festgestellt werden. Bei den höher aufgelösten Modellanalysen bildet sich in Berlin eine dipolartige Struktur für beide betrachteten Spezies heraus. Bei der u05-Analyse werden Emissionszunahmen im Südwesten der Stadt analysiert und im restlichen Berliner Stadtgebiet werden Emissionsabnahmen vorgeschlagen. Interessanterweise dreht sich dieser Dipol bei der uc1-Analyse um. Hier resultieren Emissionsreduktionen in der westlichen Hälfte Berlins und Zunahmen in der östlichen Hälfte.

Abbildung 84: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für NO_x für alle Modellaufösungen innerhalb des uc1-Modellgebiets



Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von NO_x im uc1-Analysezeitraum vom 1.-14. April 2016 innerhalb der uc1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die uc1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 85: Emissionen, Emissionskorrekturen und Emissionskorrekturfaktoren für CO für alle Modellaufösungen innerhalb des uc1-Modellgebiets

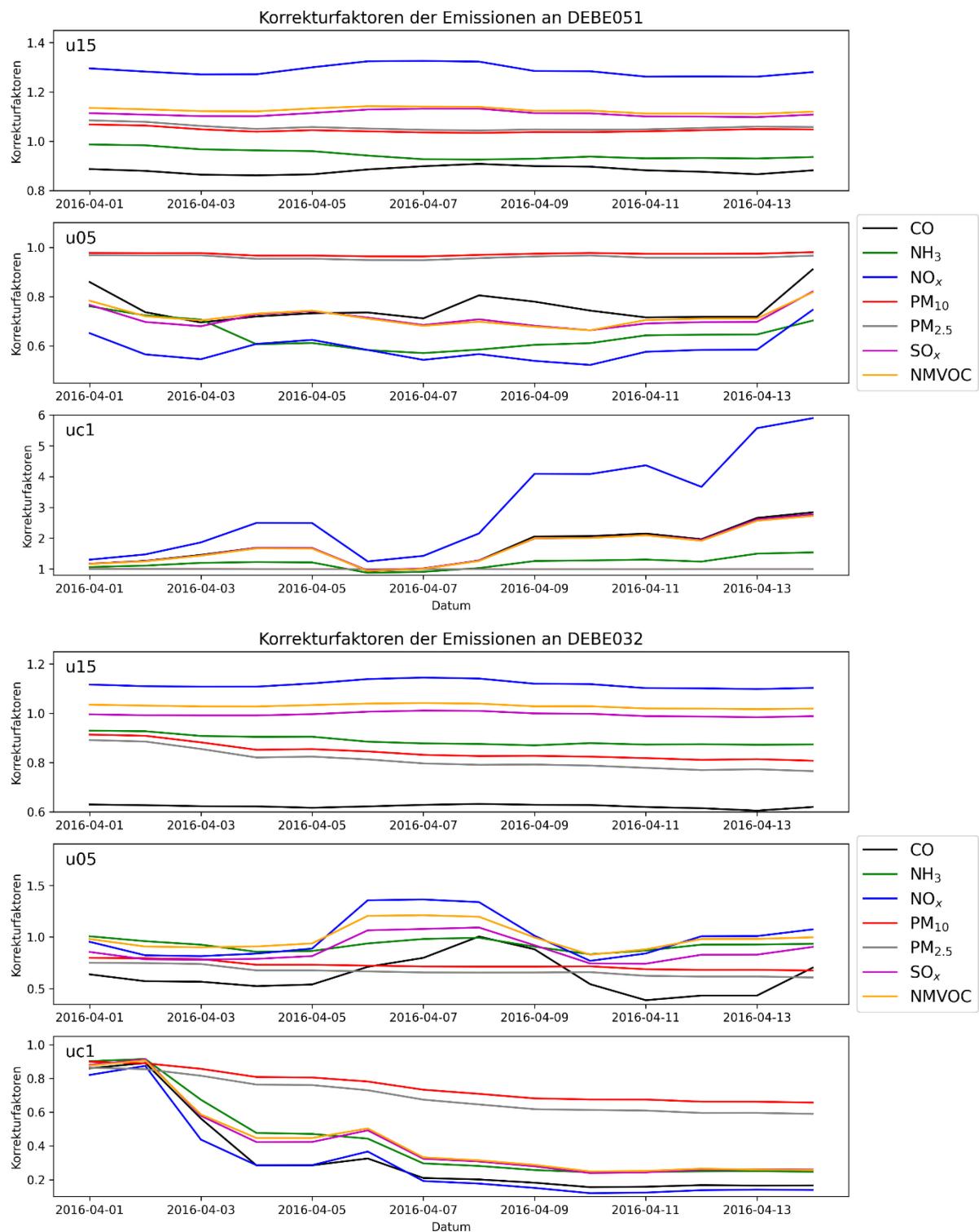


Gesamtemissionen (links), Emissionskorrekturen (Mitte) und gemittelte Emissionskorrekturfaktoren (rechts) von CO im uc1-Analysezeitraum vom 1.-14. April 2016 innerhalb der uc1-Modellregion für die u15-Analyse (oben), u05-Analyse (Mitte) und die uc1-Analyse (unten). Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Um dieses Verhalten etwas genauer zu untersuchen, werden in Abbildung 86 die Zeitreihen der Emissionskorrekturfaktoren aller anthropogener Emissionsspezies an zwei Beobachtungsstationen in Berlin visualisiert. Alle Emissionskorrekturverläufe sind für die drei Modellaufösungen abgebildet (u15 – oben, u05 – Mitte, uc1 – unten), oben für die Beobachtungsstation DEBE051 im Norden der Stadt und unten für DEBE032 im Südwesten (vergleiche Abbildung 104 im Anhang). Innerhalb des uc1-Analysezeitraums herrschten innerhalb der Modellgebiets Berlin-Brandenburg insgesamt relativ schwache aber häufig drehende Winde. Wie stark der

Einfluss meteorologischer Effekte auf die Emissionskorrekturfaktoren ist, ist schwierig abzuschätzen. Dennoch treten an beiden Stationen bei den höher aufgelösten Analysen gewisse Sprünge im Korrekturverlauf auf, die im Zusammenhang mit der Strömungsrichtung stehen können. Der Verlauf der Korrekturfaktoren mit u15-Modellauflösung gestaltet sich an beiden Stationen sehr ähnlich, nur dass die Startwerte verschoben sind. Daher kommt es beispielsweise dazu, dass die Feinstaub-Emissionen bei DEBE032 kontinuierlich reduziert und bei DEBE051 angehoben werden. Mit der u05-Modellauflösung liegen an der Station DEBE051 alle Emissionskorrekturfaktoren kontinuierlich unter 1.0. An der Station DEBE032 starten alle Korrekturfaktoren bei Werten kleiner als 1.0. Im Laufe des hier betrachteten Analysezeitraums kommt es aber für NO_x, NMVOC, und SO_x zwischenzeitlich zu Korrekturfaktoren größer 1.0. Bei der uc1-Modellanalyse entwickeln sich an der DEBE051 Messstation extrem stark ansteigende Emissionskorrekturfaktoren für alle Gasphasenspezies im Gegenteil zu den Korrekturfaktoren an DEBE032, wo es zu sehr starken Emissionsreduktionen kommt. Für eine weitere Analyse der Ursache von den stark voneinander abweichenden Emissionskorrekturen empfiehlt es sich die Verteilung der lokalen Emissionsquellen zu betrachten und meteorologische Effekte genauer zu untersuchen. Eine solch detaillierte Analyse geht jedoch über die Zielsetzung des Projektvorhabens hinaus.

Abbildung 86: Emissionskorrekturfaktoren für alle Modellaufösungen an den Beobachtungsstandorten von DEBE051 und DEBE032



Zeitreihen der Emissionskorrekturfaktoren aller anthropogenen Emissionsspezies im uc1-Analysezeitraum vom 1.-14. April 2016 an den Messstationen DEBE051 (oben) und DEBE032 (unten). In den Teilabbildungen werden die Resultate der u15-Analyse oben, der u05-Analyse in der Mitte und der uc1-Analyse unten aufgezeigt. Zu beachten ist, dass die Skalen an den y-Achsen für alle Detailgrafiken variieren. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

4.3.4 Fazit zur hochauflösten Analyse

Als Schlussfolgerung aus den hochauflösten Modellanalysen hinsichtlich der Emissionskorrekturabschätzung gegenüber der grober aufgelösten Modellsimulationen lassen sich folgende Punkte zusammenfassen:

- ▶ Es gibt gewisse Grenzen in der Analyse aufgrund der limitierten Beobachtungen in den fein aufgelösten Modellgebieten. Des Weiteren schränkt die Lage von Beobachtungsstandorten nahe der Gebietsgrenzen den Informationsgehalt im adjungierten Signal sehr ein. Flächendeckende Beobachtungen aller anthropogen emittierter Spezies versprechen großes Potenzial, da dadurch die Emissionskorrekturen genauer beschränkt werden könnten.
- ▶ Die Feinstaubkorrekturen sind auch bei hochauflösten Analysen nur bedingt aussagekräftig, da die Anfangswertoptimierung einen deutlich stärkeren Anteil gegenüber der Emissionsoptimierung im Datenassimilationssystem beansprucht.
- ▶ Ungenauigkeiten in der Vertikalverteilung von Punktquellen können insbesondere bei hochauflösten Simulationen zu Unsicherheiten führen.
- ▶ Im Umfang der zweiwöchigen Analysezeiträume kann keine eindeutige Empfehlung ausgesprochen werden, welche Modellauflösung die besten Abschätzungen von Emissionskorrekturfaktoren liefert. Grundsätzlich scheinen die Ergebnisse auf unterschiedlichen Modellauflösungen mit wenigen Ausnahmen zu korrelieren und sich somit untereinander zu stützen. Erstrebenswert wäre es, einerseits den Analysezeitraum für einen solchen Vergleich zu verlängern und unter anderem mit dem gleichen Emissionskorrekturfaktor auf allen Analysen unterschiedlicher Modellauflösung zu starten. Andererseits wäre auch die Ausweitung der 1 km-Modellgebiete wertvoll, da sich das adjungierte Signal dann länger in der Modellregion aufhalten kann und somit mehr Information in der Analyse verwertet würde.
- ▶ Die bei den 1 km-Analysen ermittelten Emissionskorrekturfaktoren sind nach jetzigem Stand ausschließlich für den betrachteten Analysezeitraum gültig und können voraussichtlich nicht einfach auf Monats- oder Jahreskorrekturen hochgerechnet werden. Eine solche Gültigkeitsprüfung steht noch aus, übersteigt aber den Rahmen des Projektvorhabens.
- ▶ Allgemein ist die räumliche Heterogenität der Emissionskorrekturfaktoren insbesondere bei den hochauflösten Analysen deutlich stärker ausgeprägt als die zeitliche Variabilität. Dies bestärkt den Ansatz des Projektvorhabens, den Fokus auf die räumliche Verteilung der Emissionskorrekturen zu legen.
- ▶ Die Analyse zeigt, dass es gerade bei hochauflösten und räumlich limitierten Analysen Einflüsse meteorologischer Bedingungen auf die abgeleiteten Emissionskorrekturen geben kann.
- ▶ Durch die hochauflösten Analysen ergibt sich das Potenzial gewisse Emissionskorrekturfaktoren auch GNFR-Sektor-spezifisch ohne Erweiterung des 4D-var-Algorithmus zu bestimmen. Anhand der Kenntnis lokal dominanter Emittenten können Korrekturen gewissen GNFR-Sektoren zugeordnet werden, wenn beispielsweise die Struktur der Korrekturfaktoren mit dem Muster von Straßennetzen oder Wasserstraßen übereinstimmt.

4.4 Einschränkungen der Analyse

Die Analyse, die im Forschungsvorhaben durchgeführt wird, bedingt die Zuhilfenahme bestimmter Annahmen. Diese sind zum einen auf die Natur der 4D-var Analysemethode zurückzuführen, zum anderen werden Annahmen zur Verringerung der Komplexität des Optimierungssystems benötigt. Grundlage der 4D-var Methode ist, dass die größte Unsicherheit die Verteilung von Luftschatstoffen richtig in Modellen zu simulieren in ungenauen Anfangswerten und den Emissionsabschätzungen liegt. Die Physik und Chemie, die im Modell implementiert ist, wird hingegen als korrekt betrachtet. Die Assimilationsmethode beschreibt eine statistische Methode, in der eine „globale“ Kostenfunktion (räumlich und zeitlich gesehen) minimiert wird und nicht die Kosten an jedem individuellen Beobachtungsstandort, bzw. -Zeitpunkt. In der Minimierung wird nach der besten Anpassung zwischen Beobachtungen und Modellhintergrund (bestimmt durch die Anfangswerte und die Emissionen) unter Berücksichtigung der Unsicherheiten der Beobachtungen und der Hintergrundsimulation gesucht. Daher wird nicht das Ziel verfolgt, dass die Analyse die Beobachtungen exakt trifft.

Da durch die Analyse keine Optimierung der tageszeitlichen und vertikalen Emissionsverteilung erfolgte, sich die Ergebnisse durch Fehler im simulierten Tagesgang der Emissionen und durch Abweichungen der Emissionsprofile zum Beispiel durch die Meteorologie beeinflusst. Aufgrund des umfangreichen Zustandsvektors für die Optimierung in einer Größenordnung von 10^9 ist eine Beschränkung der Freiheitsgrade des Systems jedoch unumgänglich.

Aufgrund der fehlenden Modellroutinen zur adjungierten nassen Deposition wird das Gradientsignal in Niederschlag-beeinflussten Regionen vernachlässigt. In diesem Fall geht von den Beobachtungen gewonnene Information verloren und nur die Gradientsignale, die nicht durch Regen entfernt werden, tragen zur Emissionskorrekturabschätzung bei.

Für die Interpretation der Analyseergebnisse ist es wichtig zu wissen, dass aufgrund der Zusammenstellung der Kostenfunktion große Modell-Beobachtungsdiskrepanzen die Optimierung kleiner Modell-Beobachtungsunterschiede abschwächen kann. Dies kann insbesondere beim Vergleich der Korrekturen unterschiedlicher Spezies geltend werden, wenn die Spezies in verschiedenen Größenordnungen konzentriert auftreten. Auch räumlich betrachtet können große Modell-Beobachtungsunterschiede Korrekturen in Regionen mit kleinen Diskrepanzen verhindern bzw. abschwächen. Große Modellhintergrund-, Beobachtungs- oder Emissionsfehler bewirken gleiches Verhalten der Analyse gegenüber kleinen Fehlern.

Eine weitere Grenze der Analysemethode ist dadurch gegeben, dass die Optimierung auf die Anfangswerte und Emissionen begrenzt ist. Es findet keine Optimierung der Randwerte statt, so dass das Gradientsignal, welches die Ränder der gewählten Modellgebiete erreicht, verloren geht. So können Emissionsquellen, die für Modell-Beobachtungsdiskrepanzen verantwortlich sind, außerhalb der Modellregion liegen und nicht optimiert werden. Des Weiteren findet keine Optimierung der Depositionsraten statt, die zu den wesentlichen Senken der Modellkonzentrationen zählen.

5 Ausblick

Die Evaluierung der Analyseergebnisse hat gezeigt, dass die Assimilation von in-situ und Fernerkundungsbeobachtungen zu einer realistischeren Simulation der Luftqualität in Deutschland, aber auch in Europa, für das Jahr 2016 geführt hat. In der Regel zeigte die Analyse eine gute Reduktion der Kostenfunktion von über 30 % auf dem u15-Modellgitter (siehe Anhang B.8. Unter Berücksichtigung der Vielzahl der Beobachtungen, die teilweise die Analyse gegenteilig beeinflussen, sowie der nicht zu korrigierenden Fehler in den Tagesgängen der verschiedenen Spezies, ist die Analyse mit einer Kostenreduktion von mehr als 30 % als erfolgreich zu bewerten. Vor allem die Reduktion der CO- sowie der IAGOS-Kosten erreichen deutlich mehr als 50 %. Geringere Reduktionen sind entsprechend der Erwartungen für Bodenbeobachtungen zu identifizieren. Dies ist durch die große Anzahl der Beobachtungstationen und der stündlichen Beobachtungen an jeder Station zu begründen. Solche bedingen, dass die Signale der Beobachtungsstationen sich teilweise gegenseitig beeinflussen (z. B. durch Diskrepanzen in den Zeitreihen der Simulationen und Beobachtungen verschiedener Spezies/Beobachtungsstationen) und somit weitere Korrekturen verhindern. Ferner haben methodisch bedingt kleinere Modell-Beobachtungsabweichungen einen geringeren Einfluss und bleiben zum großen Teil in der Optimierung unberücksichtigt. Dennoch zeigt die Analyse und der Hintergrundlauf (als Maß für die Vorhersagegüte der Analyse), dass die Fehler der Simulationen durch die Assimilation zum Teil deutlich reduziert werden konnten, was zu einem großen Maße auch auf die Emissionskorrekturen zurückzuführen ist. So zeigen zum Beispiel regionale Trends (z. B. die SO₂-Simulation in Nordrhein-Westfalen) eine deutliche Verbesserung der Modellkonzentrationen, welches in Einklang mit den analysierten Emissionskorrekturen ist. Die Reduktion des Simulationsfehlers im Hintergrundlauf zeigt das große Potenzial der 4D-var Methodik für die Vorhersage der Luftqualität und somit eine valide Korrektur der Emissionsdaten.

Vor allem der Datensatz der in-situ Bodenbeobachtungen hat einen großen Einfluss auf die Assimilationsergebnisse. Hierbei wurde festgestellt, dass die Auswahl der Beobachtungsdaten für die Assimilation und die Validierung, die von der CAMS-Re-Analyse übernommen wurden, nicht überall optimal erfolgte und stichprobenartig Stationen identifiziert werden konnten, die eine geringe Repräsentativität zeigen. Die geringe Repräsentativität bezieht sich hierbei sowohl auf die räumliche Verteilung der Stationen (vor allem bei SO₂- und CO-Stationen), als auch auf die Lage und Klassifizierung einzelner Beobachtungsstationen (vor allem bei der nächtlichen Umwandlung von O₃ über NO_x). Ferner muss die Erweiterung des Beobachtungsdatensatzes unter den in Haben (2011) ermittelten Gesichtspunkten erfolgen. Eine bloße Erweiterung der Beobachtungsdaten führt aber nicht zwangsläufig zur Verbesserung der Analyse. Die Repräsentativität der verschiedenen Beobachtungen ist aktueller Bestandteil der Forschung und wird im IEK-8 des Forschungszentrums Jülich in einem neuen Projekt adressiert. Es wird zukünftig angeraten, die Beobachtungsdaten statistisch zu evaluieren und einen sowohl räumlich als auch hinsichtlich der beobachteten Konzentrationen repräsentativen Datensatz für die Assimilation und Validierung zu wählen. Dies erhöht die Aussagekraft der Analyse in Bezug auf die räumliche Verteilung von Emissionskorrekturen.

Durch die Verteilung der Beobachtungsstationen und in Abhängigkeit von der vorherrschenden Windrichtung werden Emissionen einzelner Regionen nur selten beobachtet. Die dadurch berechneten Emissionskorrekturen stammen von einzelnen Tagen oder Episoden. Weitere Korrekturen außerhalb dieser Episoden sind durch Beobachtungen anderer Spezies verursacht. Dies liegt vor allem bei CO-Emissionskorrekturen vor, da sich die Beobachtungslage von CO-Konzentrationen in Zentraleuropa nur schwach gestaltet. Eine detaillierte Analyse ermöglicht weitere Einblicke in die Repräsentativität der CO-Beobachtungen (Beobachtbarkeit) und in die

Güte der Emissionskorrekturen von CO über Beobachtungen anderer Spezies. Die Ergebnisse geben somit Aufschluss über die Güte des Beobachtungsnetzes und erlauben Rückschlüsse auf dessen Optimierung. Derartige Studien können auch für andere Spezies durchgeführt werden, sind jedoch wegen der unterschiedlichen Beobachtungslagen umfangreicher und komplexer in der Durchführung. Diese Beobachtbarkeitsstudien sind jedoch unerlässlich, um die Emissionskorrekturen abschließend und vollumfänglich bewerten zu können und gleichzeitig das Beobachtungsnetz in Deutschland und Europa zu evaluieren und zu optimieren.

Trotz regional großer Unsicherheiten ist die Analyse in der Lage regionale Unterschiede in den Emissionskorrekturen herauszustellen. So zeigt zum Beispiel das Ruhr-Gebiet in der Regel negative Emissionsänderungen. Durch die räumliche Variabilität lassen sich bedingt auch einzelne Verursachergruppen identifizieren, in denen die Emissionskorrekturen ausgeprägter sind und einer gemeinsamen Tendenz folgen. Generell sind die Emissionskorrekturen jedoch nicht verursachergruppenspezifisch. Die Abhängigkeit von Verursachergruppen ist hier eher auch unter einem räumlichen Aspekt zu betrachten. Es stellte sich in der Studie zum Beispiel heraus, dass ein Großteil der Autobahnen in Süddeutschland negative Emissionskorrekturen erhalten haben. Allerdings ist dies nicht durchgehend der Fall, denn zum Beispiel an der Autobahn A5 nahe der französischen Grenze sind zum Beispiel positive Emissionskorrekturen zu sehen. Ferner lassen sich in der Analyse einige Punktquellen identifizieren, die markante Emissionskorrekturen erhalten. Diese Emissionskorrekturen müssen systematisch mit regionalen Beobachtungen analysiert werden, um deren Güte auch witterungsbedingt zu evaluieren. Die Rückführung der Emissionskorrekturen auf die Verursachergruppen ist ein neues Forschungsgebiet, das vom Forschungszentrum Jülich im Rahmen des Vorhabens initiiert wurde und das in Anhang A vorgestellt wird.

Die Assimilation zeigt gleiche Tendenzen in den verschiedenen Modellauflösungen für die jeweiligen Modellgebiete und Episoden. Kleinräumige Strukturen in den Emissionskorrekturen lassen sich mit höherer Auflösung besser herausarbeiten, jedoch sind die feineren Auflösungen um ein Vielfaches rechenintensiver. Dadurch ist die Größe des Modellgebiets beschränkt was zum Teil die Emissionskorrekturen beeinflusst. Beispielsweise können Signale der Beobachtungen aus dem Modellgebiet heraustransportiert werden, was den Verlust dieser Signale zur Folge hat. Außerdem ist in kleineren Modellgebieten die Anzahl der zur Verfügung stehenden Beobachtungen beschränkt und kann wegen der geringeren Repräsentativität nicht ohne weiteres durch Satellitenbeobachtungen ergänzt werden. Generell können hier Beobachtungen aus der neuen Generation hochauflösender Satellitendaten (etwa von der Sentinel-Satellitenfamilie) die Beobachtungslage verbessern. Wegen der groben vertikalen Auflösung vor allem in Bodennähe ist der Gebrauch neuer Satellitenprodukte jedoch individuell und Speziesabhängig zu evaluieren. Zudem Bedarf die Einbindung der neuen Satelliten angepasste Beobachtungsoperatoren, die den Modell-Satelliten-Vergleich ermöglichen.

Die Analysen für die 1 km-Modellgebiete erfolgten in bestimmten Episoden, die den meteorologischen Einfluss durch Niederschlag, solare Einstrahlung und Wind minimieren sollten. Im Vergleich der verschiedenen Modellsimulationsauflösungen ist es denkbar, die Analysen auf den größeren Modellgittern separat für die gleichen Episoden zu berechnen, damit die Emissionskorrekturen nicht durch vorangegangene Zeiträume und damit verbundenen Korrekturen beeinflusst werden. Ferner ist es trotz der erhöhten Rechenzeit ratsam, die 1 km-Modellregionen zu erweitern, sodass größere Gebiete (etwa 300 km x 300 km) in hoher Auflösung analysiert werden können.

Die Analyse zeigt ebenfalls das große Potenzial in der Korrektur von Emissionen unbeobachteter Spezies, im vorliegenden Fall speziell für NH₃-Emissionen. Zwar haben die Korrekturen von unbeobachteten Spezies generell höhere Freiheitsgrade, die Ergebnisse haben jedoch gezeigt,

dass die NH₃-Konzentrationen realistischere Ergebnisse lieferten. Gerade bei der Evaluierung unbeobachteter Spezies sind die Unsicherheiten groß und eine erweiterte Auswertung der Ergebnisse ist erforderlich, um die Emissionskorrekturen besser zu interpretieren. Eine entsprechende Auswertung mit Satellitenprodukten schließt sich an das Forschungsvorhaben an und konnte aufgrund der Komplexität nicht in die vorliegende Evaluierung aufgenommen werden.

Die Analyse erfolgte unter Verwendung von Annahmen, u. a. auch unter der Annahme, dass die vertikale Verteilung von Emissionen fehlerfrei ist. Dies ist insbesondere bei Punktquellen bzw. Industrieanlagen nicht immer gegeben, da die Abgasfahnen generell abhängig von der Meteorologie sind. Sensitivitätsstudien zu dieser Problematik sind recht aufwendig und die Verallgemeinerung der Ergebnisse, die zu einer Optimierung der vertikalen Verteilung der Emissionen führen könnte, sind fraglich, da optimalerweise unbekannte Parameter der Industrieanlagen (z. B. Austrittsgeschwindigkeit und -temperatur in der Abgasfahne) erforderlich sind. Des Weiteren haben Sensitivitätsstudien gezeigt, dass der mittlere Einfluss auf die meisten Spezies gering ist. Einzig SO₂-Konzentrationen zeigen eine höhere Abhängigkeit von der vertikalen Emissionsverteilung.

Die Analyse zeigt stellenweise und episodenweise Einfluss von Ungenauigkeiten in der meteorologischen Vorhersage. Diese Ungenauigkeiten korrelieren mit synoptischen Störungen, die turbulentes Wetter mit konvektiven Ereignissen verursachten. Diese Situationen sind in der groben Auflösung nicht repräsentiert. Um den Einfluss der Meteorologie zu minimieren, sollte in vergleichbaren Studien das meteorologische Modell WRF mit der Nudging-Methode genutzt werden. Nudging bezeichnet eine einfache Datenassimilationsmethode, die die Modellsimulation in Richtung von Beobachtungen verändert (to nudge = schupsen).

Neben den oben genannten Studien, die Ergebnisse der Analyse detailliert evaluieren zu können, schließen sich folgende Forschungsmöglichkeiten an das Vorhaben direkt an: Die berechneten Emissionskorrekturen sollten als Berechnungsgrundlage weiterer Simulationen dienen. Die Folgesimulationen können auch Folgejahre umfassen, was Aufschluss über die Allgemeingültigkeit der Emissionskorrekturen liefert. Dazu ist ein Vergleich mit anderen Emissionsinventaren und die Einordnung der Emissionskorrekturen ratsam. Die vorliegende Studie ist ohne weiteres auf andere Emissionsdaten (andere Bezugsjahr oder andere Berichterstattungen) durchführbar. Die oben erwähnten Optimierungen der Meteorologie und des Beobachtungsdatensatzes sollten für diese Zwecke jedoch zunächst umgesetzt werden. Ferner ist eine Anpassung und Erweiterung der 1 km-Modellgebiete ratsam. Die gemeinsame Optimierung von Emissionen und Anfangswerten für die Gasphase und Aerosole ist ein neues Forschungsgebiet und aktueller Stand der Forschung. Um bessere Aufschlüsse über die Aerosolemissionen zu erhalten, sollte die Koppelung der Gasphasen und der Aerosole genauer evaluiert werden. Für eine effiziente Assimilation ist es unerlässlich, dass die verschiedenen Komponenten optimal aufeinander abgestimmt sind. Eine Skalierung des Modellzustandsvektors bietet hierbei großes Potenzial die Skalenprobleme zwischen den verschiedenen Spezies und Regionen zu lösen. Nicht zuletzt sollten die hohen Emissionskorrekturen gerade in Ost- und Südeuropa evaluiert werden. Die Analyse zeigt zum Teil starke Abweichungen zwischen den Beobachtungen und Modellsimulationen. Dementsprechend sind die Emissionskorrekturen stark. Die Ursachen der großen Modell-Beobachtungsdiskrepanz sowie die Berücksichtigung anderer Simulationsergebnisse (zum Beispiel aus dem CAMS Projekt) können hierbei zur Identifikation von systematischen Emissionsfehlern und deren Ursache dienen.

6 Schlussfolgerung

In den vorangegangenen Kapiteln wurden die Ergebnisse der Analyse sowie die berechneten Emissionskorrekturen evaluiert. Im Folgenden werden die wesentlichen Ergebnisse der Analyse zusammengefasst dargestellt.

- ▶ Die CO-Konzentrationen werden in Europa systematisch unterschätzt, mit größeren Fehlern in Südost- und Osteuropa. In Deutschland konnten der Bias der CO-Konzentrationen trotz nur weniger Beobachtungen reduziert werden. Obwohl die Assimilationsstationen für CO teilweise nicht repräsentativ ausgewählt wurden, liefert die Analyse in der Regel realistische CO-Konzentrationskorrekturen.
- ▶ Die Analyse berechnet für CO-Emissionen eine Abnahme der Emissionen in Ballungszentren von zum Teil mehr als 300 t/a. In ländlichen Regionen wird hingegen eine Zunahme der Emissionen von zum Teil ebenfalls mehr als 300 t/a berechnet. Für die Autobahnen in Süddeutschland (mit Ausnahme der A5 südlich von Karlsruhe) sind in der Regel Emissionsreduktionen berechnet worden. Generell korreliert die Abnahme der relativen Fehler CO-Konzentrationen mit den Emissionskorrekturen.
- ▶ Die Fehler (RMSE) in den simulierten SO₂-Konzentrationen werden in Deutschland um bis zu 50 % reduziert. Einzelne beobachtete hohe Konzentrationen werden in den Simulationen nicht repräsentiert, was vermutlich an meteorologischen Ereignissen liegt, die eine veränderte vertikale Verteilung der SO₂-Konzentrationen begünstigt und im Modell nicht aufgelöst wird.
- ▶ Die SO_x-Emissionen werden im Deutschlandmittel um ca. 30 % reduziert, was vor allem in industriell geprägten Regionen mit bis zu -30 t/a zu erkennen ist. Die Korrekturen von Punktquellen sind relativ heterogen und im Norden Deutschlands eher positiv, in der Mitte eher negativ und im Süden gemischt. Obwohl die vertikale Verteilung der Emissionen, vor allem der Punktquellen, im Vorlauf der Analyse genau untersucht wurde, ist deren Einfluss gerade bei SO_x-Emissionen groß, sodass nicht ausgeschlossen werden kann, dass sich Unsicherheiten in der vertikalen Verteilung der SO_x-Emissionen direkt auf die Emissionskorrekturen auswirken.
- ▶ Wie CO werden auf die NO₂-Konzentrationen in Europa systematisch im Referenzlauf unterschätzt, wobei der RMSE in Zentraleuropa geringer ist als in Südost- und Osteuropa. Die Analyse reduziert den RMSE in Zentraleuropa um mehr als 45 %. Die Analyse zeigt, dass die Straßenverkehrsemissionen die größte Unsicherheitsquelle für die NO₂-Konzentrationen darstellen.
- ▶ Die NO_x-Emissionen werden in Deutschland um 20 % - 30 % erhöht, wobei die Erhöhung im Sommer etwas geringer ausfällt. Dabei sind die Korrekturen der NO_x-Emissionen in Ballungszentren in der Regel positiv (Erhöhung der Emissionen), während vor allen die Emissionen an den Autobahnen in Süddeutschland eher reduziert werden, was einer Verschiebung der Straßenverkehrsemissionen von Autobahnen auf Ballungszentren entsprechen würde.
- ▶ VOC-Emissionen werden durch die Analyse in Deutschland leicht reduziert. Die Emissionskorrekturen zeigen in Ballungszentren Emissionsreduktionen, in mittelgroßen Städten eher Emissionssteigerungen an. Allerdings sind die Emissionskorrekturen wegen fehlender Beobachtungen und einem größeren Einfluss biogener Emissionen (vor allem im Sommer) mit größeren Unsicherheiten behaftet.

- Die simulierten PM₁₀- und PM_{2,5}-Konzentrationen konnten durch die Analyse zum Teil deutlich verbessert werden, allerdings ist dies hauptsächlich auf die Anfangswertkorrekturen zurückzuführen. Neben den Zeitreihen für PM₁₀- und PM_{2,5}-Konzentrationen konnte auch der Anteil von PM_{2,5} an den PM₁₀-Konzentrationen durch die Analyse verbessert werden.
- Durch die zu starken Anfangswertkorrekturen der PM₁₀- und PM_{2,5}-Konzentrationen sind die Emissionskorrekturen der Aerosole nachträglich korrigiert worden. Die Analyse berechnet generell eine Emissionserhöhung von bis zu 20 % (PM_{2,5}) bzw. 15 % (PM₁₀) im August. Lediglich im April und im Mai wird eine geringe Emissionsreduktion von bis zu 5 % berechnet. Allerdings lässt sich durch die Unsicherheit, die durch das Nachbearbeiten der Emissionskorrekturen entstehen, keine genaue Zuordnung der räumlichen Verteilung der Emissionskorrekturen ableiten.
- Die Analyse spiegelt die Emissionsänderungen in den verschiedenen Berichterstattungen wider, auch wenn die Analyse in der Regel stärkere Korrekturen berechnet. Lediglich VOC-Emissionen werden in der Analyse reduziert, während sie in den Berichterstattungen erhöht werden.

Im Folgenden wird nun eine Einschätzung über weitere Nutzungsmöglichkeiten der Ergebnisse gegeben.

Die Emissionskorrekturen wurden im Rahmen der Studie für jede Gitterbox und jeden Tag berechnet. Hierbei erfolgte lediglich die Korrektur der Emissionsamplitude. Der Tagesgang sowie die Vertikalverteilung der Emissionen wurde nicht korrigiert. Die Analyse zeigte ein kontinuierliches Anpassen der Emissionskorrekturen an einen optimalen Wert. Dieser Anpassungsprozess wurde gelegentlich durch meteorologische Einflüsse gestört. Ferner lassen sich monatliche bzw. jahreszeitliche Unterschiede in den Emissionskorrekturen (auch auf Europa bezogen) erkennen. Daher wird angeraten, die berechneten Emissionskorrekturen als Monatsmittel- (für beobachtete Spezies, nämlich CO, SO_x, NO_x, PM₁₀, PM_{2,5}) bzw. Jahresmittelwerte (für unbeobachtete Spezies, wie NH₃, VOC) zu nutzen. Durch dieses Vorgehen werden kurzzeitige Effekte durch die Meteorologie reduziert. Ferner kann so einer etwaigen Überanpassung, wie sie zum Beispiel bei NH₃ zu beobachten war, entgegengewirkt werden.

Zunächst dienen die Ergebnisse für eine bessere Emissionsgrundlage von Modellsimulationen des Jahres 2016 mit dem EURAD-IM. Da das EURAD-IM im Rahmen des CAMS-Projektes im ständigen Vergleich zu europäischen Chemie-Transportmodellen steht, ist eine Nutzung über das EURAD-IM hinaus sehr wahrscheinlich, muss im Einzelfall jedoch evaluiert werden. Ebenso ist die Nutzung der Emissionskorrekturen für die Simulation der Luftqualität in Folgejahren sehr wahrscheinlich von Vorteil. Auch hierbei ist jedoch der Einzelfall zu evaluieren.

Über die Nutzung der Emissionskorrekturen zur besseren Repräsentativität der Emissionsdaten hinaus wird geraten, die Emissionskorrekturen mittels geeigneter Software (zum Beispiel Geoinformationssysteme) mit verschiedenen Verteilparametern räumlich zu verschneiden. Durch dieses Vorgehen können die Emissionskorrekturen Unsicherheiten in den Verteilparametern identifizieren und die Emissionskorrekturen können für eine Optimierung der räumlichen Emissionsverteilung genutzt werden. Hierbei sollte insbesondere auf Unterschiede in den Emissionskorrekturen in verschiedenen Monaten Rücksicht genommen werden, um die Zusammensetzung der Emissionen (genauer: das Zusammenspiel der verschiedenen Verursachergruppen) besser evaluieren zu können.

Die nachprozessierten Emissionskorrekturen von Feinstaub zeigen nur geringe räumliche Strukturen. Die PM-Emissionsreduktionen im Bereich des Ruhr-Gebiets können auf die

Überkorrektur der Anfangswerte zurückgeführt werden. Auch damit verbundene Effekte auf die Emissionskorrekturen sind nicht auszuschließen, sodass die PM-Emissionsreduktion somit nicht als realistisch angesehen werden kann. Dennoch war die Assimilation von Aerosolbeobachtungen und deren Optimierung im Modell von Vorteil, um ein realistischeres chemisches Regime zu generieren, auf dessen Grundlage alle Emissionskorrekturen (für Aerosole und reaktive Spurengase) berechnet wurden. Auch wenn die räumliche Struktur der Emissionskorrekturen der Aerosole fehlerbehaftet ist, sind die jährlichen Gesamtsummen der Emissionen realistisch und eher als untere Grenze zu verstehen. Die gemeinsame Assimilation von Gasphase und Aerosolen ist ein aktuelles Forschungsthema und die Studie hilft, die Balance zwischen den verschiedenen Spezies in der Assimilation besser zu verstehen und zu optimieren.

Ferner können die Ergebnisse zur Evaluierung systematischer Fehler in Emissionsdaten genutzt werden. Vor allem die starken Korrekturen für NO_x-Emissionen, die mitunter auf die unberücksichtigten Verkehrsemissionen von Dieselfahrzeugen zurückzuführen sind, belegen die Möglichkeit mit der Analyse die systematischen Fehler zu identifizieren. Diese Analyse ist vor allem in Ost- und Südeuropa im Austausch mit den Instituten, die für die Emissionsinventare (zum Beispiel TNO) verantwortlich sind, durchzuführen. Des Weiteren belegt die Analyse, dass trotz systematischer Fehler in den Emissionsdaten räumliche Strukturen herausgearbeitet werden können und somit die Verteilparameter optimiert werden können. Rückschlüsse auf den Jahresgang der Emissionen lassen sich ebenfalls ableiten, jedoch sind die Emissionen zum Teil witterungsabhängig und im Einzelfall von individuellen gesellschaftlichen Entscheidungen (zum Beispiel Nutzung von Auto/Bahn) abhängig. Daher ist eine Nutzbarkeit der jahreszeitlichen Verteilung der Emissionen über das Jahr 2016 hinaus fraglich und muss mittels Sensitivitätsstudien evaluiert werden.

Danksagung

Die Autoren danken dem Earth System Modelling Project (ESM) für die Finanzierung dieser Arbeit durch die Bereitstellung der Rechenzeit auf der ESM-Partition des Supercomputers JUWELS am Jülich Supercomputing Centre (JSC). Des Weiteren erkennen die Autoren dankbar der Rechenzeit auf dem Supercomputer JURECA am Forschungszentrum Jülich an, die durch JARA bewilligt wurde.

A Sektorspezifische Emissionskorrekturen als Erweiterung des EURAD-IM

A.1 Motivation

Die Analyse, die diesem Projekt zugrunde liegt, befasst sich unter anderem mit der Korrektur von anthropogenen Emissionen, die aus Beobachtungen von Schadstoffkonzentrationen abgeleitet werden. Die Emissionskorrekturen werden hierbei sektorübergreifend für einzelne Spezies abgeleitet. Die Anwendung durch das Umweltbundesamt leitet jedoch die Fragestellung ab, inwieweit die Emissionskorrekturen einzelnen Sektoren (Verursachergruppen) zugeordnet werden können. Mit der Aufteilung der Emissionskorrekturen auf die Verursachergruppen kann direkt auf die zugrunde liegenden Daten, die zur Berechnung der Emissionsverteilung im GRETA-Tool genutzt werden, zurück geschlossen werden. Diese Berechnung der sektorspezifischen Emissionskorrekturen ist in der wissenschaftlichen Literatur methodisch nicht abgedeckt. Daher wurde die Analyse durch eine Promotionsarbeit begleitet, in der die Möglichkeiten und Limitierungen der Berechnung sektorspezifischer Emissionskorrekturen genauer untersucht werden. Die vorläufigen Ergebnisse werden im Folgenden näher beschrieben und erläutern.

Die Anpassung der Emissionen erfolgt im EURAD-IM für jede emittierte Spezies und jede Gitterzelle der Modellregion. Die Folge ist, dass innerhalb einer Gitterzelle die Emissionen aller Verursachergruppen denselben Korrekturfaktor erhalten. Dies entspricht oft nicht der realen Situation, da beispielsweise eine Industrieanlage ihre Emissionen reduzieren kann, während gleichzeitig die Emissionen durch Straßenverkehr an nahegelegenen Straßen steigen. Selbst wenn in diesem Fall das Modell die Gesamtemissionen für den betreffenden Tag richtig korrigiert, kann der korrekte Tagesverlauf der Emissionen nicht wiedergegeben werden: Während die realen Emissionen ihren Tagesverlauf in Richtung von Straßenverkehrsemissionen ändern, bleibt der Tageszyklus im Modell erhalten. Dies führt auch dazu, dass vorhergesagte und gemessene Konzentrationen voneinander abweichen.

Der hier vorgestellte Ansatz ermöglicht eine verursachergruppenspezifische Korrektur von Emissionen. Neben dem Erkenntnisgewinn über die Herkunft von Spurengas- und Aerosol-Emissionen hat diese Methode das Potenzial auch den Tagesverlauf der Emissionen zu korrigieren. Potenziell können damit die Ergebnisse des Modells weiter verbessert werden.

A.2 Methode zur Berechnung der sektorspezifischen Emissionskorrekturfaktoren

A.2.1 Allgemeine Veränderungen

Hier werden die wesentlichen Veränderungen im Vergleich zur in Kapitel 2.2 vorgestellten 4D-Var-Methode dargelegt, die für die Berechnung der sektorspezifischen Emissionskorrekturfaktoren notwendig sind.

Die Einführung von sektorspezifischen Emissionskorrekturfaktoren verändert zunächst die Kostenfunktion:

$$\begin{aligned}
 J(x, u_1, u_2, \dots, u_{GNFR+1}) \\
 = \frac{1}{2} \left[(x_0 - x_b)^T \mathbf{B}^{-1} (x_0 - x_b) \right. \\
 + \sum_{j=0}^N (H_j M(x_0) - y_j)^T \mathbf{R}_j^{-1} (H_j M(x_0) - y_j) \\
 \left. + \sum_{s=1}^{N_{GNFR}+1} (e_s - e_{s,b})^T K_s^{-1} (e_s - e_{s,b}) \right]
 \end{aligned} \tag{25}$$

wobei e_s und $e_{s,b}$ die Emissionskorrekturfaktoren und deren Hintergrundwert des jeweiligen GNFR-Sektors sind, $GNFR+1$ die Anzahl der GNFR-Sektoren zusätzlich zum biogenen Sektor und K_s die Emissionskovarianzmatrix für den Sektor s ist. Erweitert wurde der Zustandsvektor insofern, dass die Emissionskorrekturen aller GNFR-Sektoren einbezogen werden. Außerdem wird für die Emissionskosten nun über alle Sektoren summiert, wobei spezifische Kovarianzmatrizen K_s für die verschiedenen Sektoren angewandt werden.

Im Vorwärtslauf des Modells wird nun zur Berechnung der Gesamtemissionen $emis_{tot}$ eines Zeitschritts t_i über alle Sektoren summiert

$$emis_{tot,t_i} = \sum_{s=1}^{N_{GNFR}+1} e_s emis_{s,t_i}. \tag{26}$$

Hier ist e_s der Emissionskorrekturfaktor für den Sektor s und $emis_{s,t_i}$ die Emissionen für den entsprechenden Sektor, berechnet aus den Emissionsdaten, zum jeweiligen Zeitpunkt t_i .

Im adjungierten Lauf der n -ten Iteration werden wie im „normalen“ 4D-Var-Modell die adjungierten Emissionsraten für die emittierten Spezies, $ademis_n$, bestimmt. In jedem adjungierten Zeitschritt werden die sektorspezifischen adjungierten Emissionskorrekturfaktoren ade_s folgendermaßen „rückwärts in der Zeit“ entwickelt, bis der Startzeitpunkt des Assimilationsfensters erreicht ist:

$$ade_{s,t_i,n} = ade_{s,t_{i+1},n} + \frac{ademis_{s,t_i,n} emis_{s,t_i,n}}{e_{s,n-1}}. \tag{27}$$

Im Unterschied zum „normalen“ 4D-Var-Modell sind nun die in der Formel verwendeten Emissionen und Emissionskorrekturfaktoren sektorspezifisch. Dies führt dazu, dass die adjungierten Emissionsraten immer mit den Emissionen des jeweiligen Sektors gewichtet werden. So findet im adjungierten Lauf eine Aufteilung zwischen den Sektoren und somit auch die Berücksichtigung der unterschiedlichen zeitlichen Verteilungen statt.

Die adjungierten Emissionskorrekturfaktoren werden zur Berechnung des Gradienten der Kostenfunktion benötigt (vergleiche Formel (8)):

$$\nabla_{(v,w)} = \begin{pmatrix} v \\ w \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} B^{1/2} & 0 \\ 0 & K^{1/2} \end{pmatrix} \times \sum_{j=0}^N M_j^T H_j^T R_j^{-1} (dx_j - y_j), \tag{28}$$

wobei $K^{1/2}$ hier die erweiterte, blockdiagonale Emissionskovarianzmatrix ist, mit den sektorspezifischen Matrizen K_s als Blöcken. Der Vektor w , der sich auf die Emissionskorrekturen bezieht, ist hier ebenfalls erweitert:

$$w = \begin{pmatrix} w_1 \\ \vdots \\ w_{GNFR+1} \end{pmatrix}, w_s := K_s^{-1/2} \delta u_s, \tag{29}$$

wobei δu_s die (skalierten) adjungierten Emissionskorrekturfaktoren in Sektor s darstellt. Bis auf diese Erweiterungen wurde an der Berechnung des Gradienten nichts geändert.

A.2.2 Optimierung der sektorspezifischen Emissionskorrekturfaktorberechnung

Mit den Änderungen in A.2.1 sind bereits sektorspezifische Korrekturen der Emissionen möglich. Es sind aber Erweiterungen durchgeführt worden, die die Korrelation der Spezies innerhalb eines Sektors, räumliche Korrelationen (vor allem entlang von Straßen) und die verschiedenen Tageszyklen ausnutzen. Weitere Optimierungen sind derzeit Gegenstand der Evaluierung. Im Folgenden werden drei Optionen vorgestellt, die bereits im Modell verfügbar sind. Die Auswirkungen der Optionen auf die Ergebnisse der Datenassimilation werden später diskutiert.

Volle Korrelation zwischen den Spezies innerhalb eines Sektors

Die Verursachergruppen sind neben einem Tageszyklus auch durch eine stoffliche Zusammensetzung der Emissionen charakterisiert. So enthalten Straßenverkehrsemissionen kaum Schwefelverbindungen, während sie in industriellen Emissionen häufig enthalten sind. Zudem wird angenommen, dass die Emissionen einer Verursachergruppe eine hohe Korrelation aufweisen. Zur Vereinfachung wird angenommen, dass diese Korrelation 100% beträgt. Dies ist gleichbedeutend mit einer festen stofflichen Zusammensetzung innerhalb einer Verursachergruppe.

Zur Umsetzung wird eine Option im Modell eingeführt, die sektorspezifische Emissionskorrelationsmatrizen statt einer allgemeinen definiert (vgl. Kapitel 2.2.4 zur Emissionskorrelationsmatrix im bisherigen Modell). Um eine volle Korrelation zu erreichen, werden die Matrizen Γ folgendermaßen definiert:

$$\Gamma = \frac{1}{\sqrt{N}} O, \quad (30)$$

wobei N die Anzahl der emittierten Spezies ist und O eine $N \times N$ - Matrix, in der alle Einträge 1 sind. Diese Matrix wird mit der Matrix K_s multipliziert. Dies ermöglicht, dass die Spezies innerhalb eines Sektors voll korreliert sind, sich der Emissionsfehler jedoch nicht ändert.

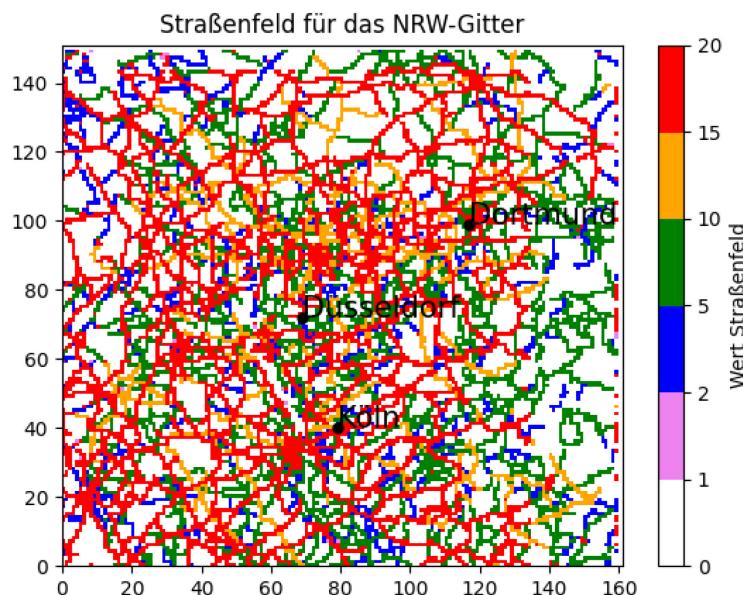
Streckung des Gradient entlang von Straßen

Die Emissionen im Straßenverkehrssektor können per Definition nur an Straßen stattfinden und sind stark mit dem Verkehrsaufkommen korreliert. Außerdem weist das Verkehrsaufkommen an verschiedenen Abschnitten ein und derselben Straße ebenfalls eine hohe Korrelation auf.

Dieser Sachverhalt wird durch eine zusätzliche Option genutzt, in der der Gradient entlang von stark befahrenen Straßen gestreckt wird. Hierfür wird zunächst für das betreffende Gitter ein Straßenfeld definiert, das jeder Gitterzelle einer Straßenkategorie zuordnet. Diese Kategorie wird durch die „Größe“ der größten Straße in der jeweiligen Gitterzelle bestimmt. Jeder Kategorie wird ein Wert zugeordnet, der umso höher ist, je größer die in der Gitterzelle enthaltene Straße ist. Zur Kategorisierung werden bisher Daten von Open Street Map verwendet, die allerdings teilweise keine eindeutige Zuordnung zulassen. Ein Beispiel für ein Straßenfeld in NRW wird in Abbildung 87 gezeigt.

Dies ermöglicht die Korrelation der Korrekturen für Straßenverkehrsemissionen entlang der Straßen, wobei die Korrelation entlang von großen Straßen (Autobahnen und Bundesstraßen) am stärksten ist.

Abbildung 87: Straßenfeld in NRW



Straßenfeld für das NRW-Gitter, verwendet für die Streckung des Gradienten des Straßenverkehrssektors entlang von Straßen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Skalierung der Gradienten zur verschiedenen Gewichtung der Spezies

Wie erwähnt, wird der Gradient im adjungierten Lauf auf die Verursachergruppen aufgeteilt. Diese Aufteilung hängt, wie in Kapitel A.2.1 dargelegt, von der Größe der Emissionen in den Emissionsdaten ab. Der Gradient kann daher auf Sektoren verteilt werden, in denen sich die Emissionen nicht geändert haben, obwohl er ausschließlich von einem dominanten Sektor verursacht wurde.

Wenn bspw. die Straßenverkehrsemissionen ansteigen, erzeugt dies einen starken NO_x -Gradienten, der auch z. B. auf den Industriesektor verteilt wird. Das passiert auch dann, wenn die Industrieemissionen nicht ebenfalls gestiegen sind. Dass ein NO_x -Gradient im Industriesektor eine tatsächliche Änderung der Industrieemissionen bedeutet, ist also in vielen Fällen unsicher. Dagegen würde sich ein SO_2 -Gradient vom Straßenverkehrssektor abgrenzen lassen, da SO_2 -Emissionen dort vernachlässigbar sind.

Ein Ansatz, um diesen Effekt auszugleichen, ist, die Gradienten der Spezies im Industriesektor unterschiedlich zu gewichten - z. B. NO_2 abzuschwächen, SO_2 zu verstärken. Allgemein könnte für jeden Sektor eine solche Skalierung eingeführt werden, die die charakteristischen Spezies eines Sektors stärker gewichtet als die anderen.

A.3 Vorläufige Ergebnisse

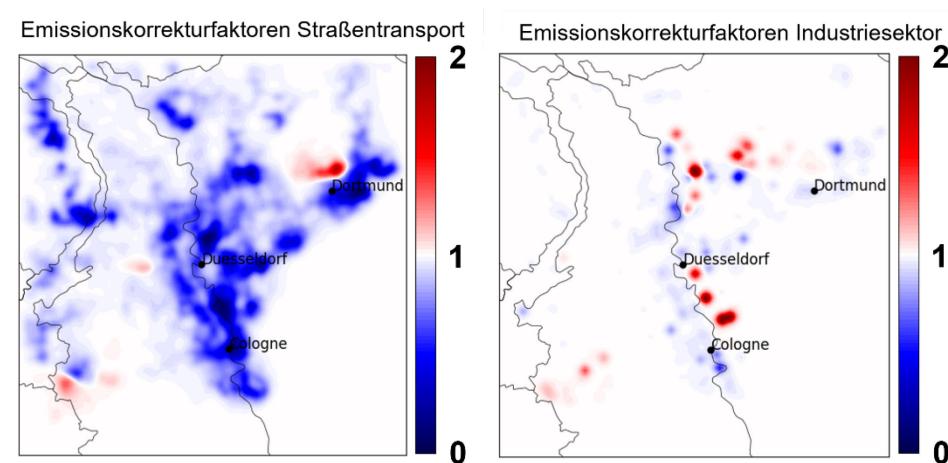
Die Modellentwicklung wurde in vielen Identical Twin-Experimenten und einigen Experimenten mit realen Beobachtungsdaten getestet. Die wichtigsten Ergebnisse werden in diesem Kapitel vorgestellt.

A.3.1 Ergebnisse aus Identical Twin Experimenten

Bei Identical Twin-Experimenten wird mit einem sogenannten "nature-run" der "wahre" Zustand der Atmosphäre erzeugt, von dem synthetische Beobachtungen abgeleitet werden. Dieser nature-run kann beispielsweise in den Anfangswerten oder in den Emissionswerten gestört sein. Die synthetischen Beobachtungen ersetzen dann bei der Datenassimilation reale Beobachtungen. Der Vorteil hierbei ist, dass die „tatsächliche“ Veränderung der Emissionen bekannt ist und mit den Ergebnissen der Datenassimilation verglichen werden kann. Das System kann somit in einer vollkontrollierten Modellumgebung getestet werden.

Im vorgestellten Identical Twin-Experiment wurde ein Szenario konstruiert, in der die Industrieemissionen verdoppelt und die Straßenverkehrsemissionen halbiert wurden. Im optimalen Fall sollten somit die Emissionskorrekturfaktoren für Straßenverkehr überall 0.5, für den Industriesektor 2 und für alle anderen Sektoren 1 betragen. Dafür wurde ein 1 km x 1 km-Gitter in Nordrhein-Westfalen und als Tag der 18. Juli 2016 gewählt. Aus Effizienzgründen beträgt das Assimilationsfenster nur 18h. Die synthetischen Beobachtungen wurden an realen Beobachtungskoordinaten aus dem Nature-run extrahiert, um ein möglichst realistisches Szenario darzustellen.

Abbildung 88: Emissionskorrekturfaktoren im Identical Twin-Experiment



Emissionskorrekturfaktoren im Identical Twin-Experiment, mit vollständiger Korrelation der Spezies und Skalierung des Gradienten. Ideal wäre ein Faktor von 0.5 für Straßenverkehr und 2 für den Industriesektor. Lineare Skala. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

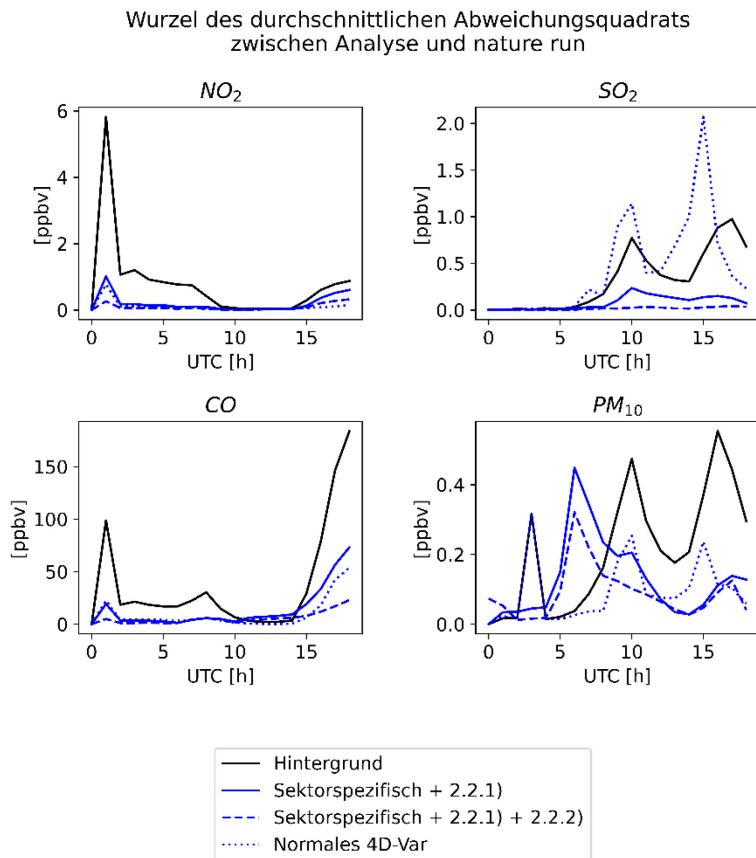
Die in Abbildung 88 gezeigten Emissionskorrekturfaktoren zeigen, dass eine Separation zwischen den Korrekturen des Industrie- und des Straßenverkehrssektors in diesem Identical Twin-Experiment möglich ist. Die Straßenverkehrsemissionen werden bis auf wenige Ausnahmen nach unten korrigiert, während die Industrieemissionen tendenziell erhöht werden. Die häufigen Abweichungen im Industriesektor werden durch die Dominanz des Straßenverkehrssektors verursacht, dessen Verringerung der Emissionen fälschlicher Weise teilweise auf den Industriesektor übertragen werden. Die Skalierung des Gradienten im Industriesektor kann dies nur teilweise ausgleichen.

Die in Abbildung 89 gezeigten Abweichungen zwischen der Analyse und den synthetischen Beobachtungen zeigen eine Verbesserung zum „normalen“ 4D-Var, insbesondere nach der Skalierung des Gradienten.

In allen Versionen werden die Konzentrationen im Vergleich zum Hintergrund verbessert, mit Ausnahme der SO₂-Konzentrationen durch das normale 4D-var Modell. Während die

Optimierungen bei NO_2 ähnlich gut sind, gibt es bei SO_2 deutliche Unterschiede: Hier sind die Abweichung in den sektorspezifischen Versionen deutlich niedriger als für das bestehende 4D-var-Modell. Auch die CO-Konzentrationen werden in den sektorspezifischen Versionen mit Streckung der Fehlervarianzen entlang von Straßen deutlich besser wiedergegeben als in der normalen 4D-var Version. Bei den Aerosolen ist die Performance bei den sektorspezifischen Modellen bis ca. 8 UTC schlechter als im normalen 4D-var Modell, nach 8 UTC hingegen sind die Ergebnisse der Versionen ähnlich.

Abbildung 89: Durchschnittliches Abweichungsquadrat zwischen Analyse und nature run



Über alle Gitterzellen gemitteltes Abweichungsquadrat zwischen den Konzentrationen des Hintergrundlaufs bzw. der Analyse und dem nature run (konstruierte "Wahrheit"). Vergleich verschiedener Modellversionen: „normales“ 4D-var versus sektorspezifisch mit verschiedenen Optionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

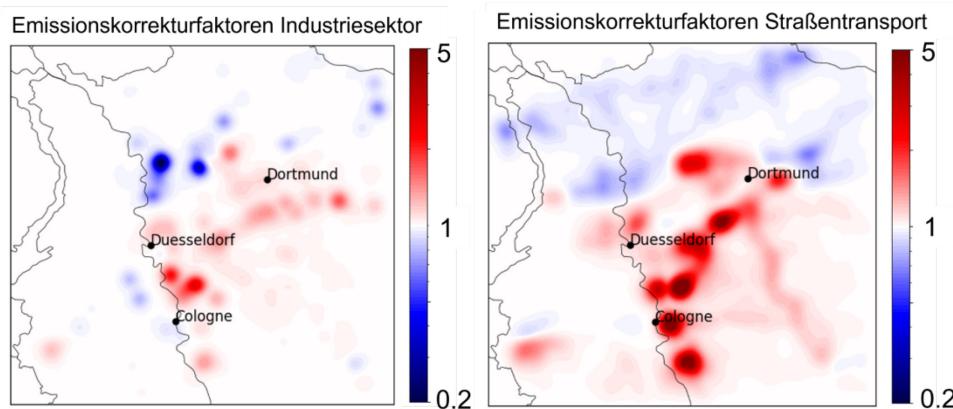
Die Verbesserungen bei CO und SO_2 sind in erster Linie auf die volle Korrelation zwischen allen Spezies innerhalb eines Sektors zurückzuführen. Für beide Spurengase existieren deutlich weniger Beobachtungen als für NO_2 . Die angepassten Emissionskorrelationsmatrizen führen dazu, dass beispielsweise auch ohne CO-Beobachtungen die CO-Emissionen korrigiert werden können, und zwar mit demselben Faktor wie die NO_2 -Emissionen im jeweiligen Sektor.

Das Identical Twin-Experiment zeigt somit das Potenzial auf, mittels der Entwicklung hin zu sektorspezifischen Emissionskorrekturen die Ergebnisse des 4D-var-Modells zu verbessern. Zu beachten ist hier jedoch, dass die Annahme der vollen Korrelation aller Spezies innerhalb eines GNFR-Sektors in diesem Experiment per Definition erfüllt ist. Diese Annahme muss hingegen in der Analyse von realen Situationen überprüft werden.

A.3.2 Ergebnisse mit realen Beobachtungen für den 10. März 2016 in Nordrhein-Westfalen

Im Folgenden werden erste Ergebnisse der sektorspezifischen Emissionskorrekturen mit realen Beobachtungen gezeigt. Das 1 km x 1 km-Modellgitter beinhaltet große Teile von NRW und der Testtag ist der 10. März 2016. Dieser Tag ist auch im Vorhaben auf dem 1 km-Gitter analysiert worden. Daher kann die sektorspezifische Korrektur mit den Ergebnissen im Vorhaben verglichen werden. Der einzige Unterschied zur im Vorhaben genutzten Modellkonfiguration besteht in der Verwendung der sektorspezifischen Datenassimilation und den jeweils gewählten Optionen (siehe Kapitel A.2.2).

Abbildung 90: Sektorspezifische Emissionskorrekturfaktoren für den 10. März 2016 in NRW.



Sektorspezifische Emissionskorrekturfaktoren für den 10. März 2016 in NRW. Option: Volle Korrelation zwischen allen Spezies innerhalb der Verursachergruppen. Logarithmische Skala. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

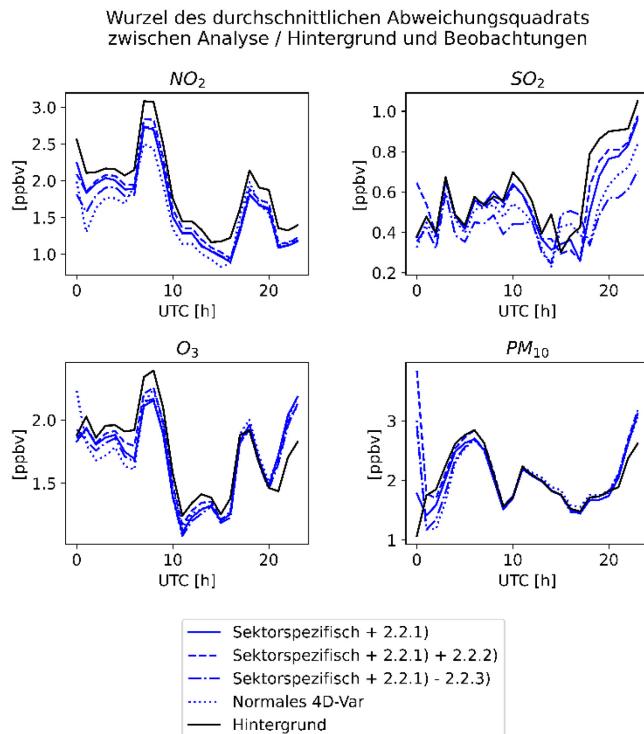
Die Emissionskorrekturfaktoren aus Abbildung 90 legen folgende Situation nahe: Die Emissionen im Straßenverkehrssektor müssen im Gegensatz zu den Emissionsdaten deutlich erhöht werden, insbesondere in der durch Straßenverkehr dominierten Umgebung der Großstädte Köln, Düsseldorf und Dortmund. Die leichte Reduzierung der Emissionen im nördlichen Teil des Gitters können auch durch andere Einflüsse verursacht sein, z. B. durch niedrigere Emissionen in anderen Sektoren wie Landwirtschaft. Die Industrieemissionen nördlich von Düsseldorf, östlich des Rheins, müssen deutlich reduziert werden.

Aussagekräftig sind die sektorspezifischen Emissionskorrekturfaktoren also in jenen Bereichen, in denen der jeweilige Sektor dominanter Emittent ist. Umgekehrt sind Korrekturfaktoren für Sektoren, die einen kleinen Anteil an den Gesamtemissionen haben, unsicher.

In Abbildung 91 ist das mittlere Abweichungsquadrat zwischen Modell und Beobachtungen für die verschiedenen Modellversionen gezeigt. Bei den NO₂-Konzentrationen stimmt das bestehende 4D-var-Modell am besten mit den Beobachtungen überein, insbesondere für die ersten 15 Stunden des Assimilationsfensters. Die SO₂-Konzentrationen werden durch das bisherige Modell und das sektorspezifische Modell mit allen verfügbaren Zusatzoptionen ähnlich gut an die Beobachtungen angepasst, während die anderen sektorspezifischen Versionen höhere Abweichungen zeigen. Die O₃-Konzentrationen werden auch durch das „normale“ 4D-var-Modell am besten wiedergegeben, jedoch sind die Unterschiede zwischen den Modellversionen ab 9 Uhr gering. Bei PM₁₀ ist die Anpassung an die Beobachtungen sehr ähnlich, außer für die ersten 6 Stunden des Assimilationsfensters. Hier verschlechtert die Datenassimilation die Anfangswerte im Gegensatz zum Hintergrundlauf, insbesondere für das „normale“ 4D-var-Modell und der sektorspezifischen Version mit voller Korrelation aller Spezies, mit Streckung entlang der Straßen und ohne Skalierung des Gradienten.

Insgesamt ist am simulierten Tag die Anpassung der Konzentrationen durch die sektorspezifischen Versionen etwas schlechter als im „normalen“ 4D-var-Modell. Dies ist wesentlich darauf zurückzuführen, dass die Emissionskorrekturen im sektorspezifischen Modell tendenziell schwächer ausfallen. Ob dies ein generelles Problem des sektorspezifischen Modells ist oder ob es sich an anderen Tagen oder durch veränderte Einstellungen anders verhält, kann mit dem aktuellen Stand der Untersuchungen noch nicht beantwortet werden.

Abbildung 91: RMSE des Hintergrundlaufs und der Analyse



Wurzel des über alle Beobachtungen gemittelten Abweichungsquadrat zwischen den Konzentrationen des Hintergrundes bzw. der Analyse und den Bodenbeobachtungen. Vergleich verschiedener Modellversionen: „normales“ 4D-Var versus sektorspezifisch mit verschiedenen Optionen. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

A.4 Ausblick: Potenzial und Limitierung der Methode

Sofern eine hinreichende räumliche Trennung von verschiedenen Sektoren vorliegt und ihre emittierten Spezies hinreichend beobachtet werden, sind die sektorspezifischen Emissionskorrekturen aussagekräftig. Dies gilt insbesondere häufig für die Trennung von Straßenverkehrs-, Industrie- Landwirtschafts- und Schifffahrtsemisionen sowie von Emissionen von Kraftwerken. Wenn jedoch in einem Bereich mehrere Sektoren Spurengase und Aerosole emittieren, dann wird tendenziell jener Sektor bevorzugt, in dem die Emissionen am höchsten sind. Zum Beispiel werden in Städten in einer Gitterbox des Modells Emissionen des Straßenverkehrs und durch Hausbrand emittiert. In der Regel sind die Straßenverkehrsemisionen höher, was zu höheren Emissionskorrekturen führt. Beispiele für mangelnde Beobachtungen sind die GNFR-Sektoren D (flüchtige Stoffe) und E (Lösungsmittel), da für die von ihnen ausgestoßenen VOCs keine Beobachtungsdaten vorliegen.

In einem Identical Twin-Experiment wurde gezeigt, dass eine gleichzeitige Erhöhung der Industrie- und Verringerung der Straßenverkehrsemisionen grundsätzlich erfasst werden

kann. Dies kann durch Auswählen zusätzlicher Optionen im sektorspezifischen 4D-var-Modell verbessert werden. Auch eine Weiterentwicklung des Modells würde sich diesem Problem widmen.

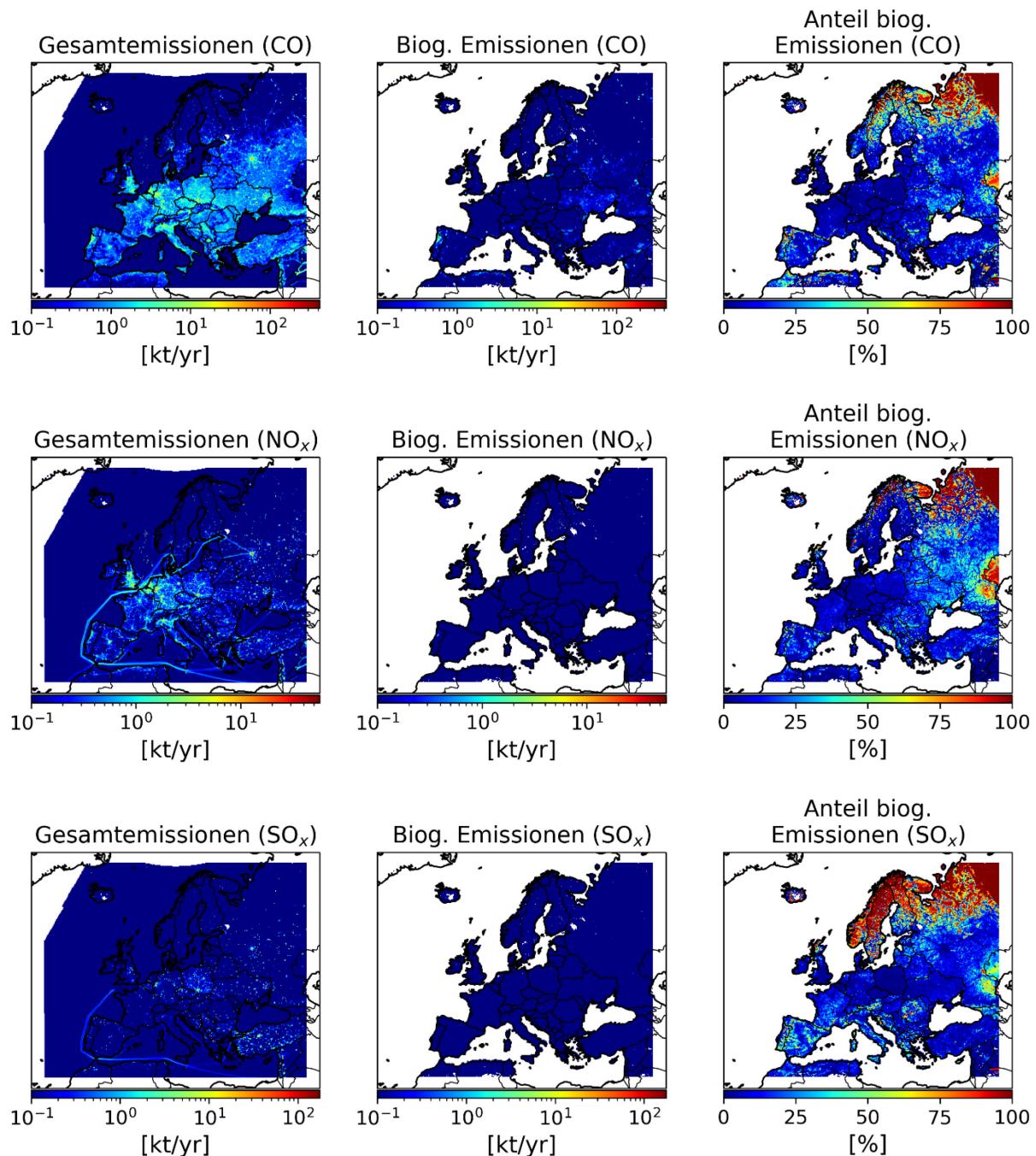
Eine wichtige Option ist die Herstellung einer 100%-Korrelation zwischen allen emittierten Spezies eines Sektors, der zu einem speziesübergreifenden Emissionskorrekturfaktor pro Sektor führt. Wie gut diese Annahme mit realen Situationen übereinstimmt und wie diese die Modellergebnisse beeinflusst, muss in Sensitivitätstests weiter evaluiert werden und kann derzeit noch nicht beurteilt werden.

In einer nächsten Studie wird das Modell für eine Periode von 7 bis 14 Tagen für Nordrhein-Westfalen und ggf. eine andere Region in Deutschland ausgeführt. Dabei werden die Ergebnisse mit denen des „normalen“ 4D-var-Modells verglichen. Aus diesen und weiteren Simulationen sollen weitere Schlussfolgerungen über Potential, Limitierungen und Verbesserungsmöglichkeiten des sektorspezifischen 4D-var-Modells gezogen werden.

B Anlage zur Auswertung des Projektvorhabens

B.1 Biogener Anteil an Gesamtemissionen

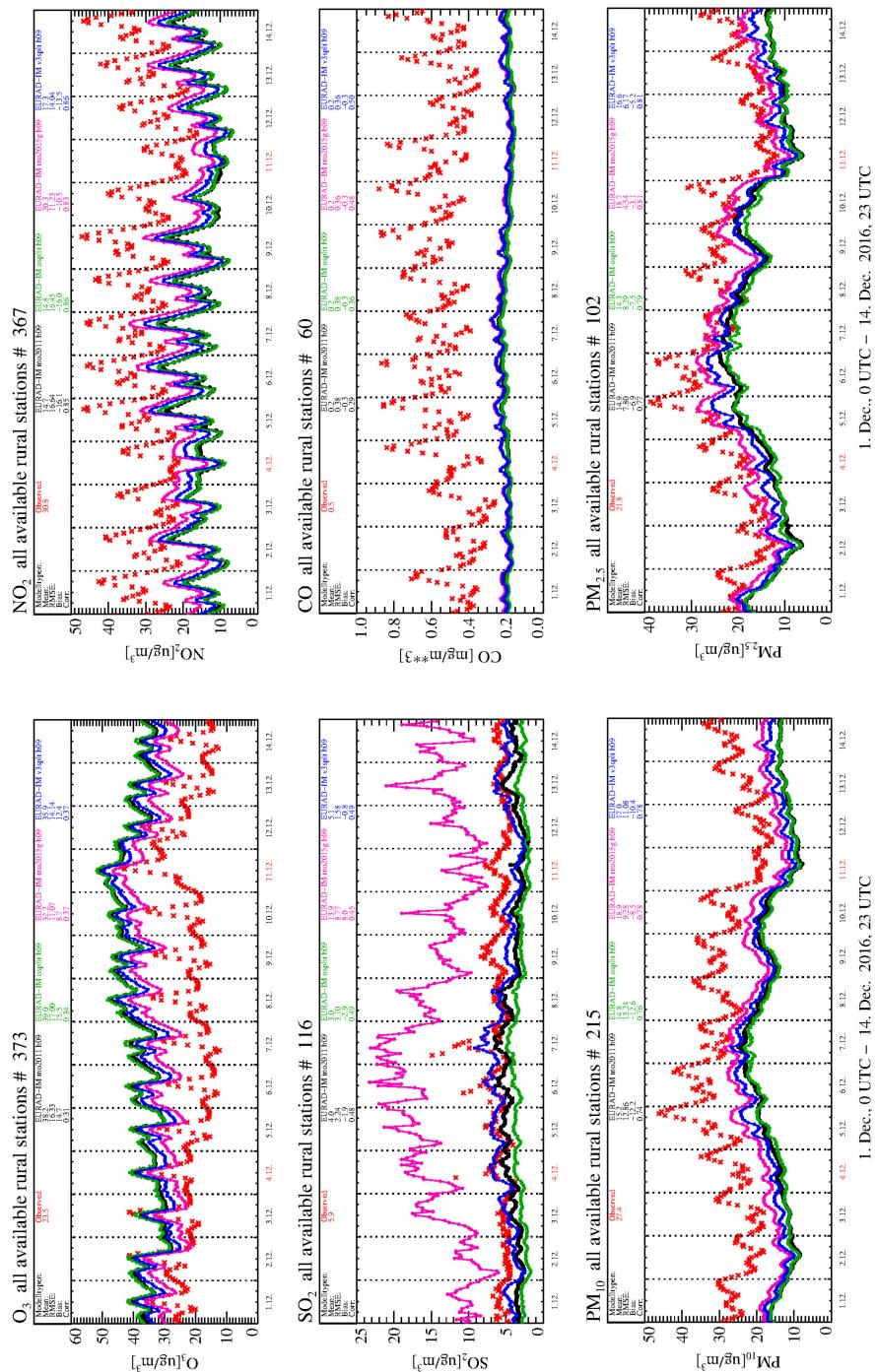
Abbildung 92: Biogener Anteil an Gesamtemissionen



Links: CO, NO_x und SO_x Gesamtemissionen (von oben) für 2016; Mitte: biogene Emissionen für 2016, berechnet mit dem EURAD-IM Emissionsmodul (siehe Kapitel 2.4); Rechts: Relativer Anteil biogener Emissionen an den Gesamtemissionen für 2016. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

B.2 Test der vertikalen Verteilung der Emissionen

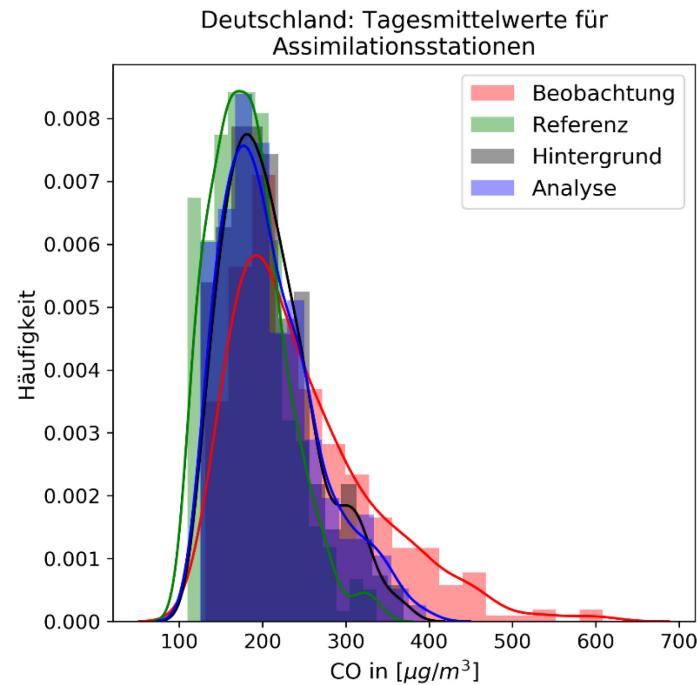
Abbildung 93: Vergleich der Simulationen mit verschiedenen vertikalen Emissionsverteilungen im Rahmen des CAMS Projektes



Vergleich der gemittelten Zeitreihen des EURAD-IM mit verschiedenen Vertikalverteilungen der Emissionen mit den ruralen Beobachtungsstationen in Deutschland für verschiedene Spezies vom 1. Dezember bis 14. Dezember 2016. Rot: Beobachtungen; schwarz: Referenzlauf mit TNO Emissionen für 2011 und der entsprechenden vertikalen Verteilung der Emissionen. Grün: wie schwarz, nur mit Emissionen von TNO für das Jahr 2015. Magenta: wie grün, nur mit der von TNO zum 2015er Datensatz herausgegebenen vertikalen Verteilung. Blau: Wie magenta, nur mit optimierter vertikaler der Emissionen, die auch im Vorhaben genutzt wurde. Das Modellsetup dieser Tests entspricht dem Setup im CAMS-Projekt und unterscheidet sich daher teilweise von dem Setup in dem Vorhaben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

B.3 CO Konzentrationen

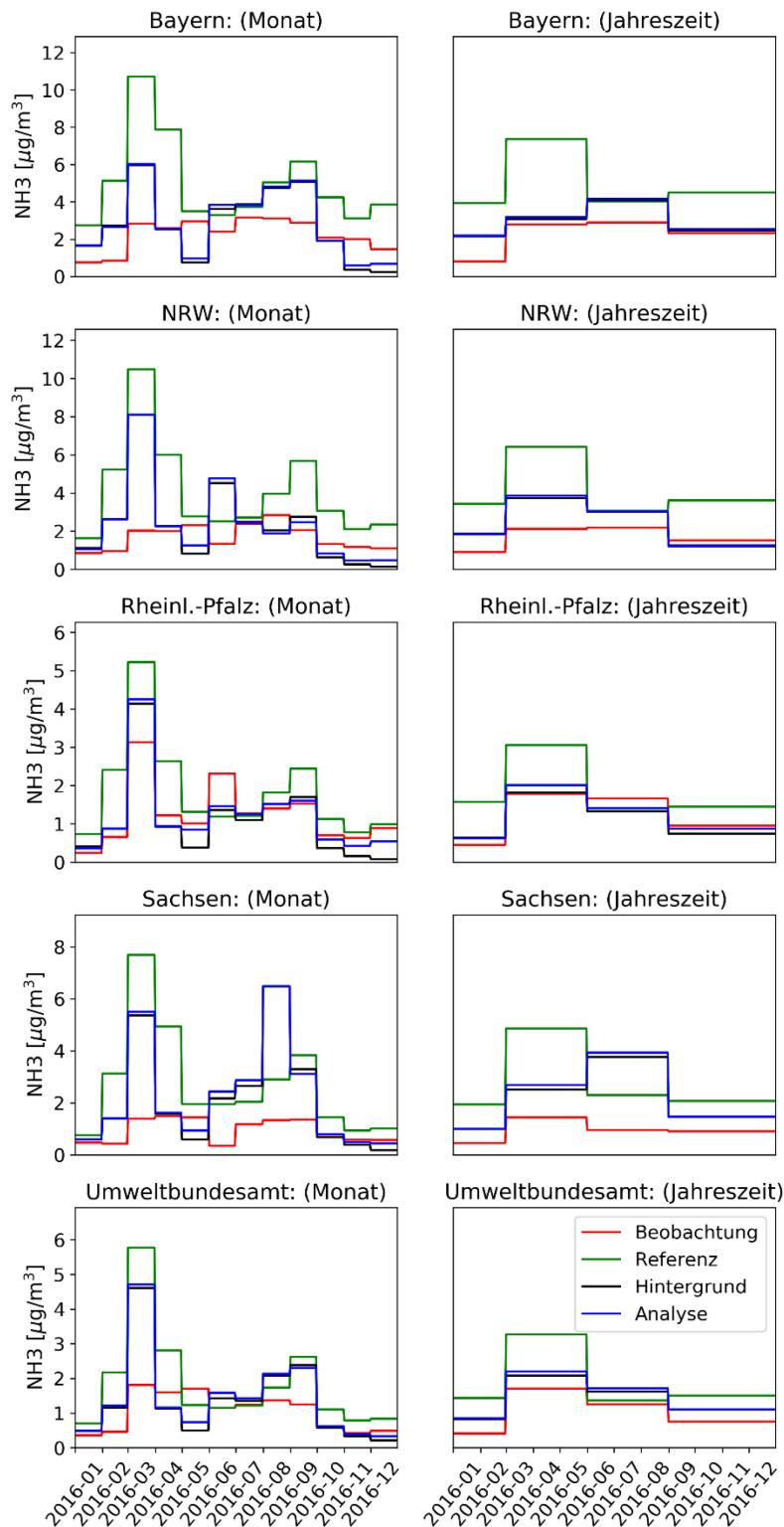
Abbildung 94: Häufigkeitsverteilung der CO-Konzentrationen an Assimilationsstationen



Vergleich der Häufigkeitsverteilung der simulierten (u05 Modellgitter) und beobachteten CO Tagesmittelkonzentrationen des Assimilationsdatensatzes deutscher Stationen für 2016. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

B.4 NH₃ Konzentrationen

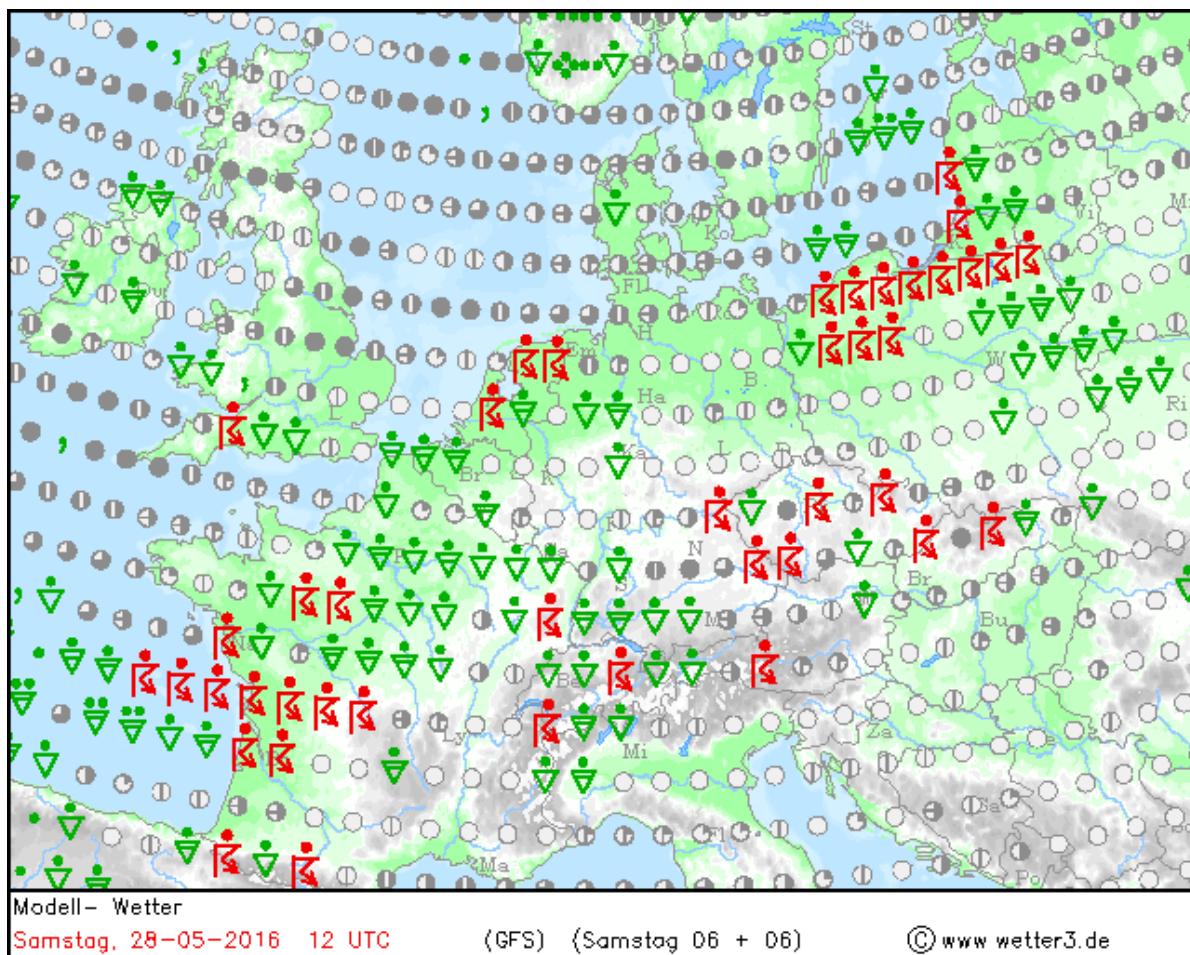
Abbildung 95: Vergleich der je Bundesland gemittelten NH₃-Konzentrationen



Vergleich der beobachteten NH₃ – Konzentrationen (rot) mit den simulierten Zeitreihen des Referenz- (grün), Background- (schwarz) und Analyselaufs (blau) mit dem 5 km Modellgitter für das Jahr 2016. Von oben: Mittelwert über alle Stationen in Bayern, Nordrhein-Westfalen, Rheinland-Pfalz, Sachsen und des Umweltbundesamtes; links: Monatsmittelwerte; rechts: Mittelwerte der vier Analyseabschnitte wie in Kapitel 3.4 beschrieben. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

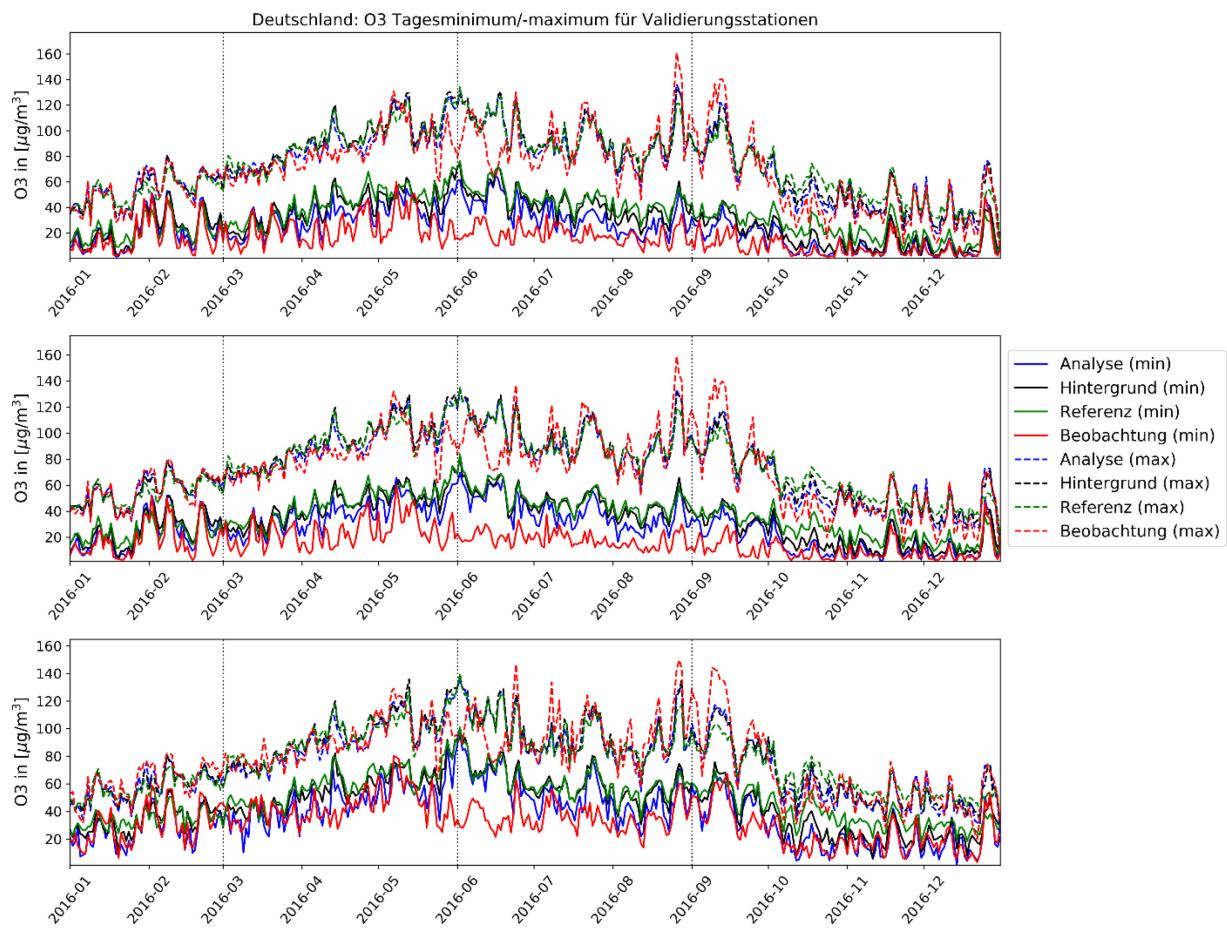
B.5 O₃ Konzentrationen

Abbildung 96: Modellwetter am 28.05.2016, 12 UTC



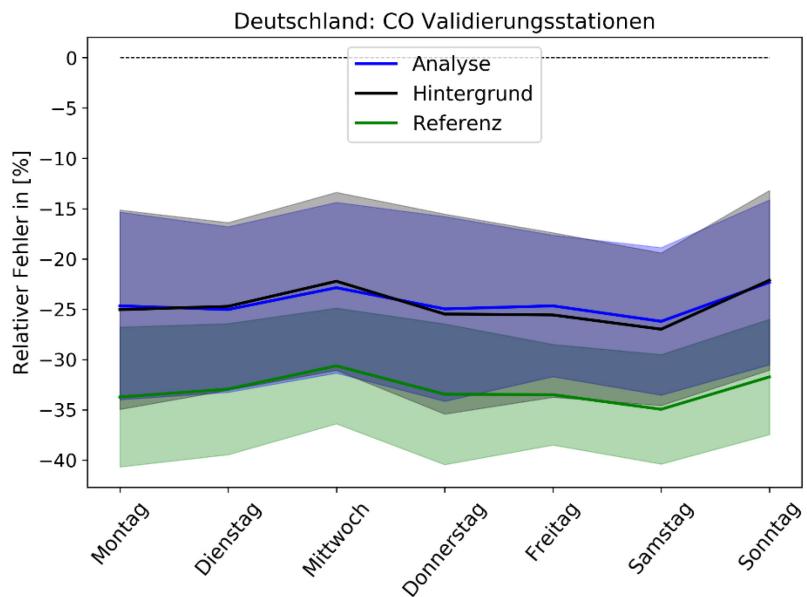
Modellwetter Analyse des GFS-Modells am 28.05.2016, 12 UTC. Quelle: [wetter3.de](http://www.wetter3.de) (Abgerufen: 28.03.2022).

Abbildung 97: Tägliche Minima und Maxima der O₃-Konzentration



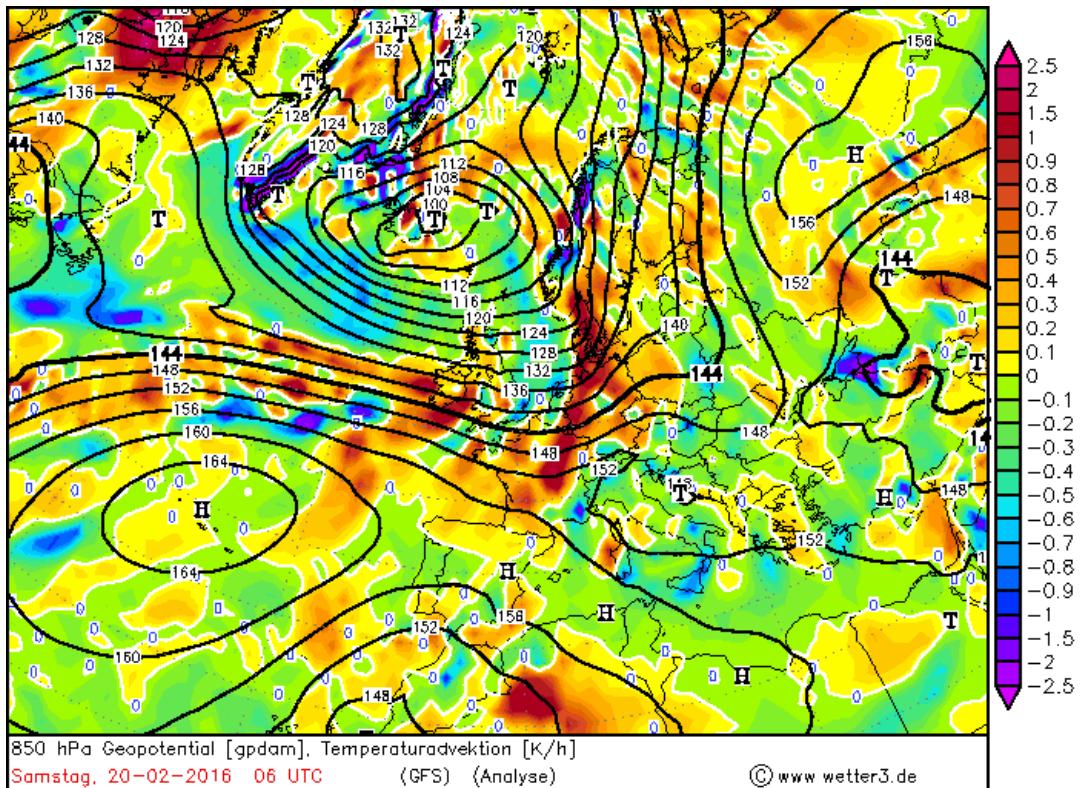
Vergleich der simulierten O₃-Tagesminimum- (durchgezogene Linie) und -Tagesmaximumkonzentrationen (gestrichelte Linie) in Deutschland des u05-Modellgitters mit den Beobachtungen des Validierungsdatensatzes (rot) für das Jahr 2016. Gezeigt sind die simulierten Konzentrationen des Referenz- (grün) und des BG-Laufs (schwarz) sowie der Analyse (blau). Oben: Mittel über alle urbanen Stationen in Deutschland. Mitte: Mittel über alle suburbanen Stationen in Deutschland. Unten: Mittel über alle rural-regionalen Stationen in Deutschland. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 98: Mittlerer Wochengang der CO Konzentrationen



Mittlerer Wochengang des relativen Fehlers der CO-Konzentrationen in Bezug auf die Validierungsstationen für 2016. Die Schattierung zeigt die Standardabweichung um den Mittelwert an. Die Modellsimulationen des Referenz- (grün) und Hintergrundlaufs (schwarz) sowie der Analyse (blau) sind mit dem 5 km Modellgitter erstellt. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

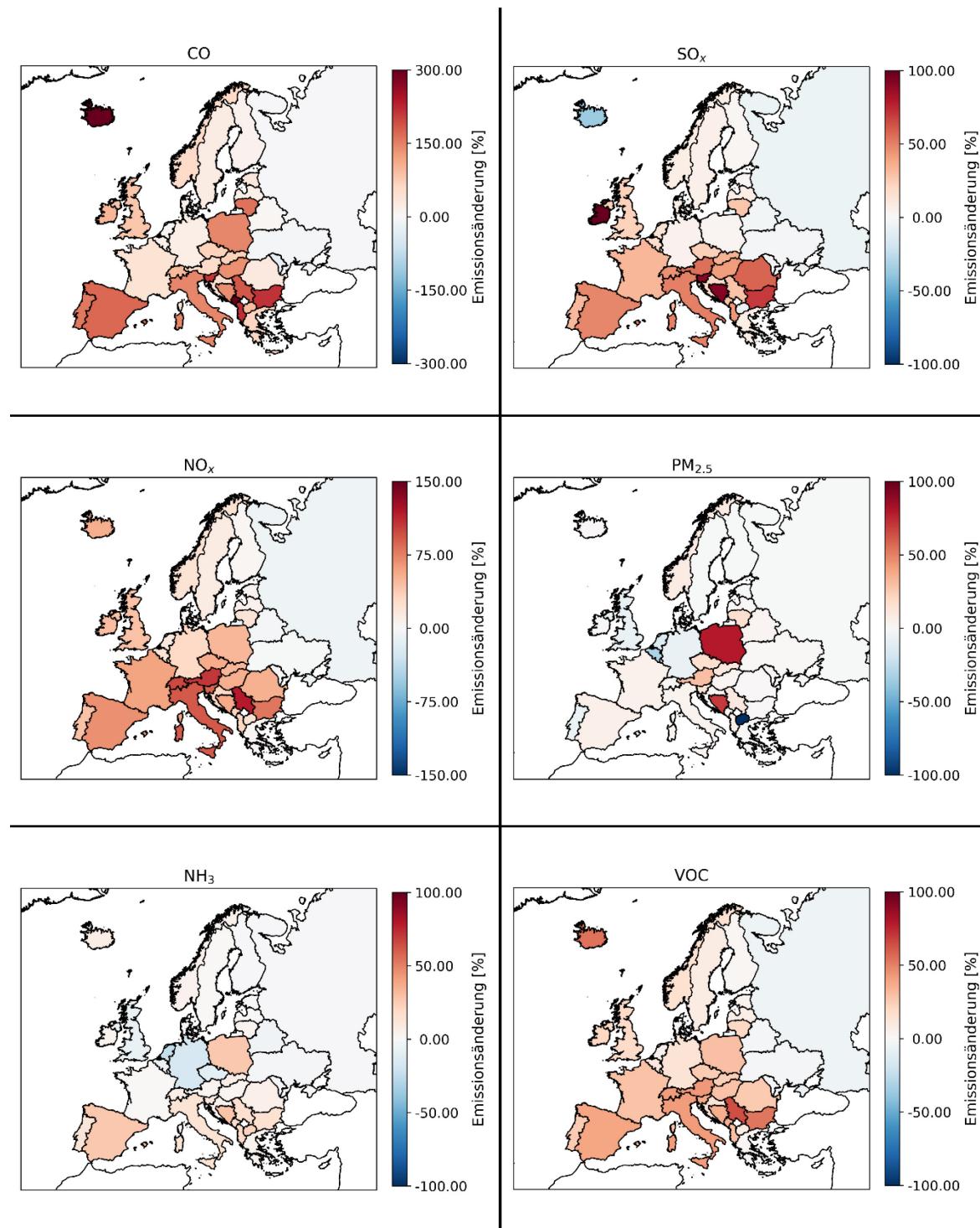
Abbildung 99: Temperaturadvektion am 20.02.2016, 6 UTC



Temperaturadvektion in 850 hPa, simuliert mit dem GFS-Modell am 20.02.2016, 6 UTC. Quelle: [wetter3.de](http://www.wetter3.de) (Abgerufen: 28.03.2022).

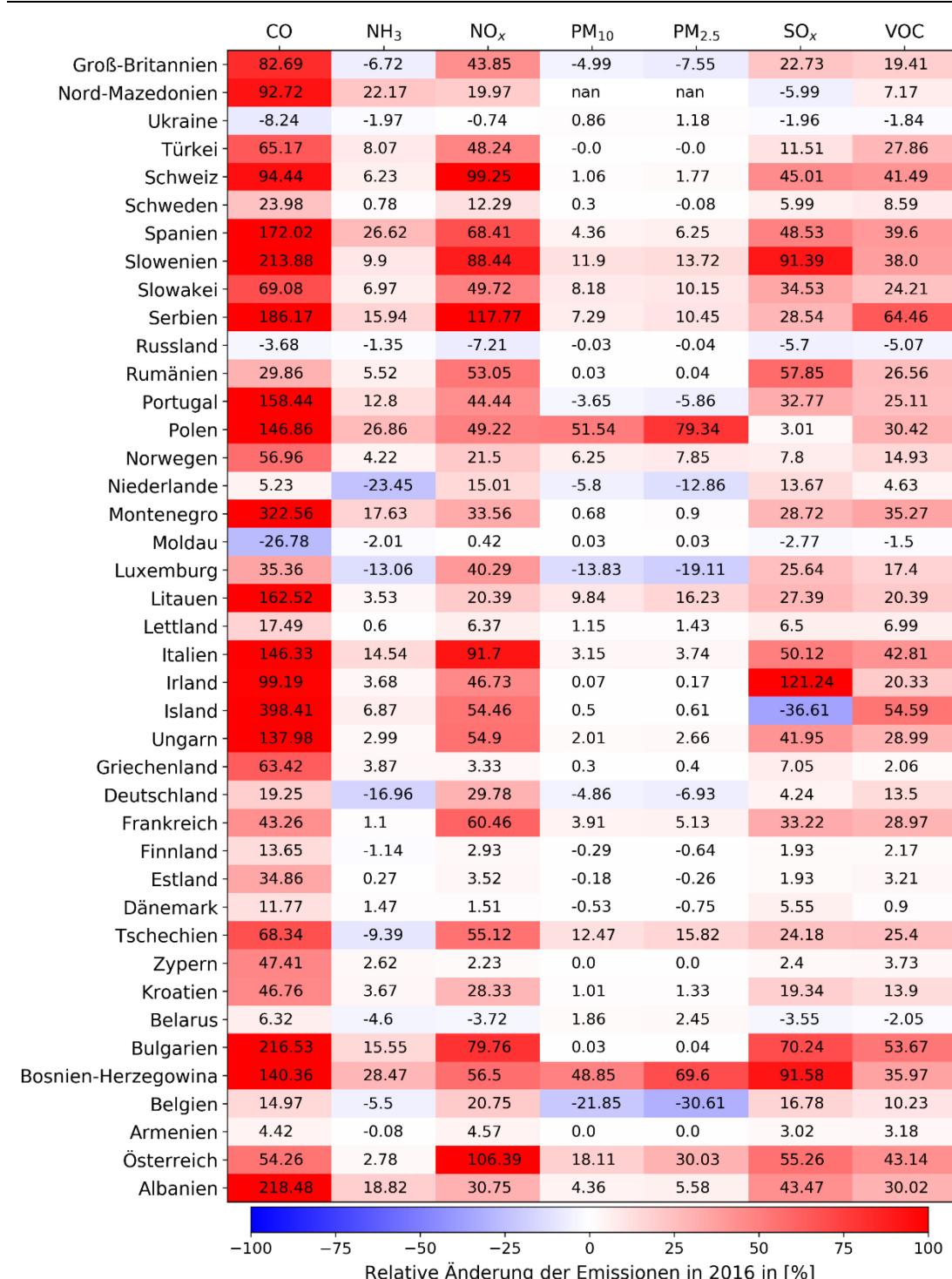
B.6 Emissionskorrekturen in Europa

Abbildung 100: Emissionsänderung für das Jahr 2016



Emissionsänderung für CO, SO_x, NO_x, PM_{2.5}, NH₃ und VOC Emissionen im Jahr 2016 je Land berechnet mit dem u15 Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

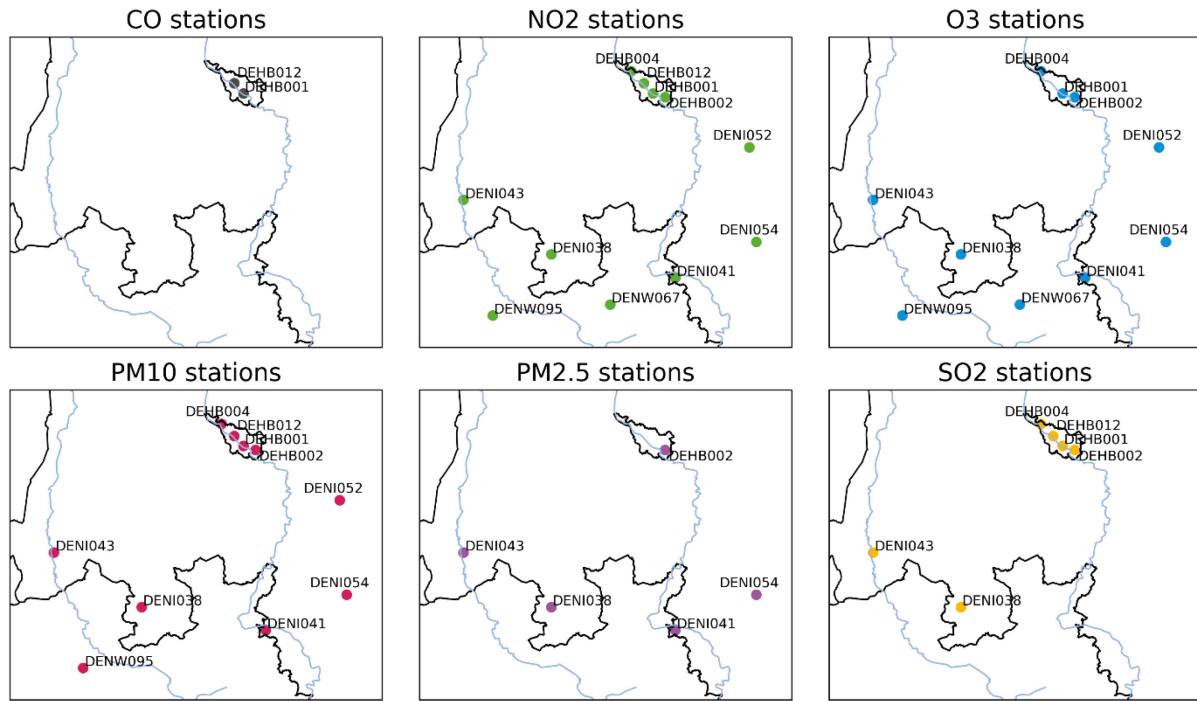
Abbildung 101: Emissionsänderung für das Jahr 2016



Tabellarischer Vergleich der Emissionsänderung für CO, SO_x, NO_x, PM₁₀, PM_{2,5}, NH₃ und VOC Emissionen im Jahr 2016 je Land berechnet mit dem u15-Modellgitter. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

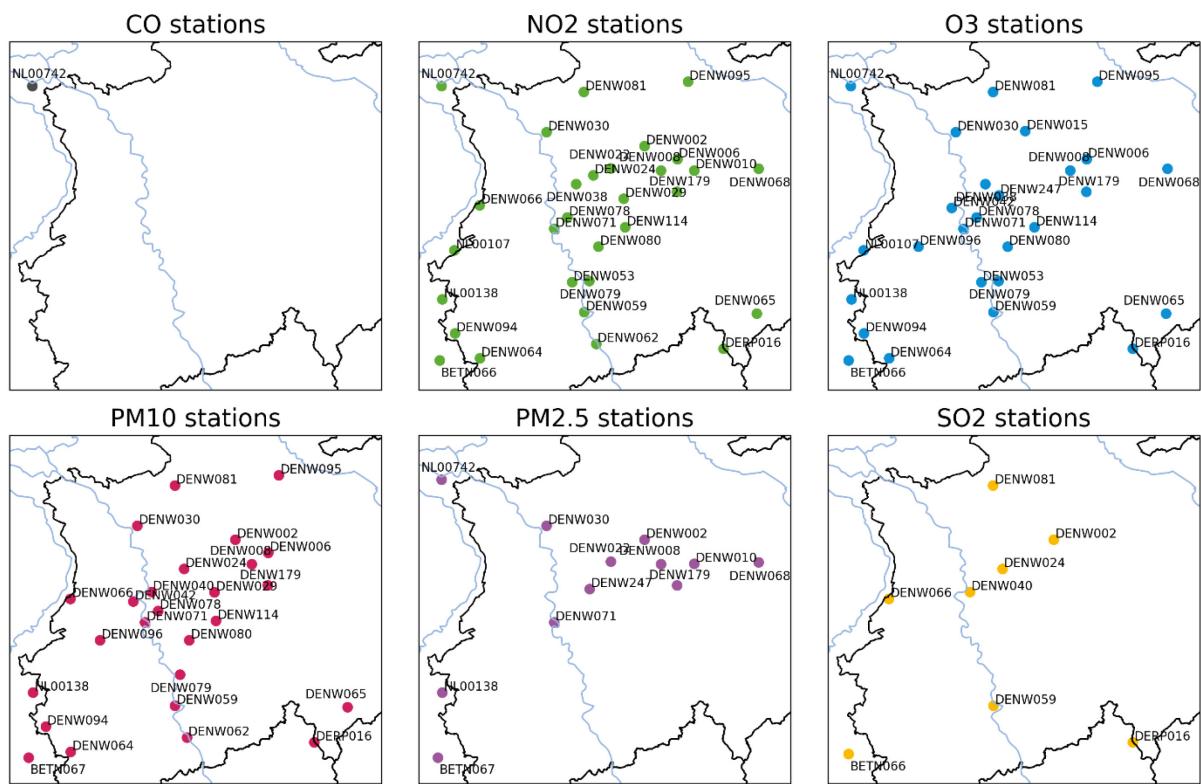
B.7 Zum Vergleich der Ergebnisse auf verschiedenen Modellauflösungen

Abbildung 102: Beobachtungsstationen im Modellgebiet ua1



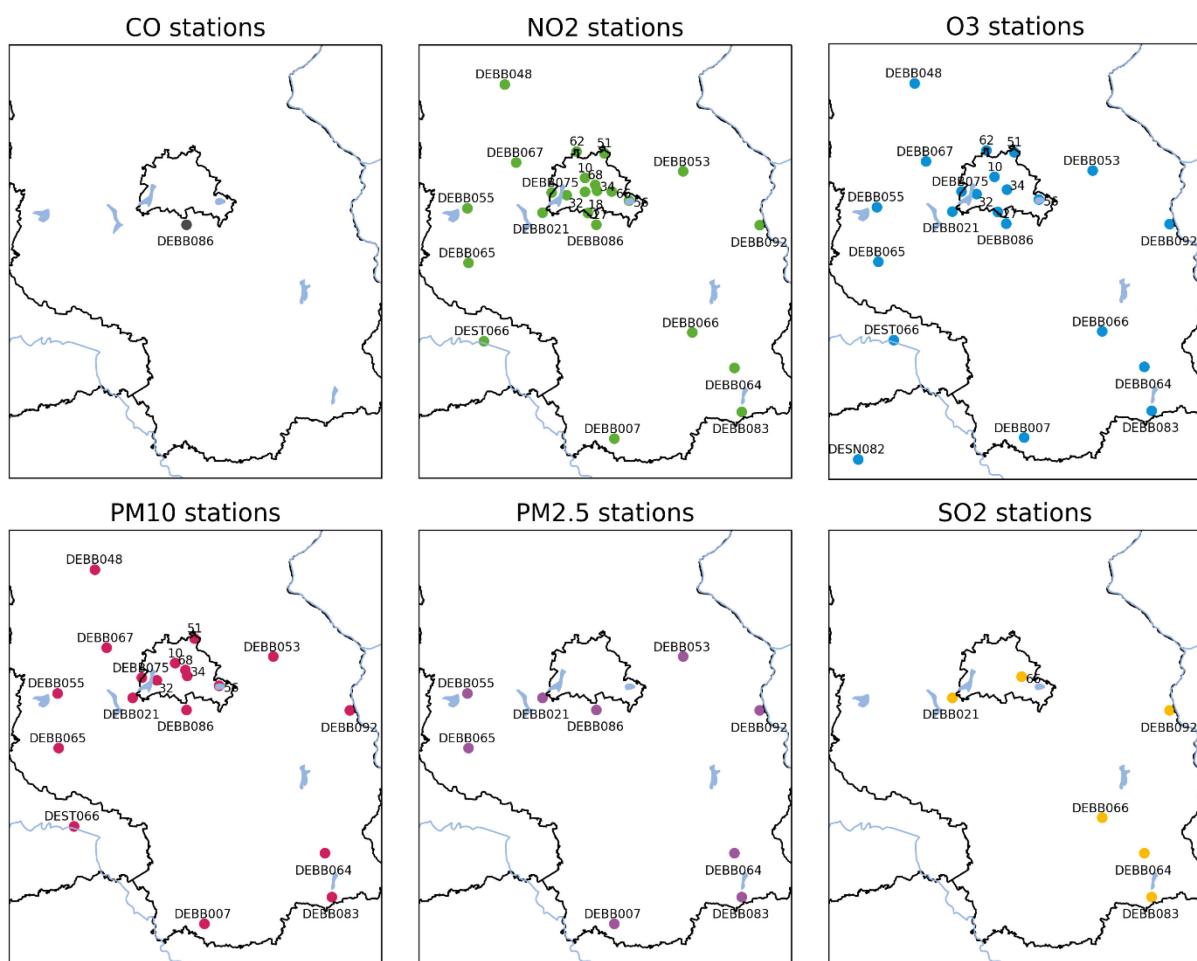
Räumliche Verteilung der Beobachtungsstationen der unterschiedlichen Spezies im Modellgebiet ua1. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

Abbildung 103: Beobachtungsstationen im Modellgebiet ub1



Räumliche Verteilung der Beobachtungsstationen der unterschiedlichen Spezies im Modellgebiet ub1. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

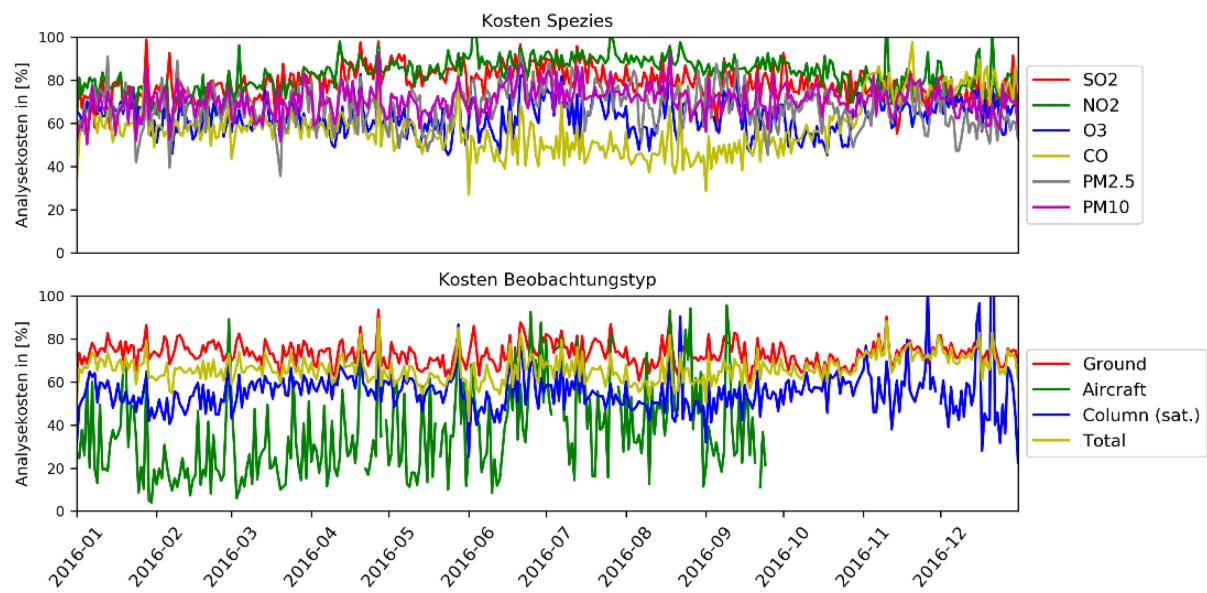
Abbildung 104: Beobachtungsstationen im Modellgebiet uc1



Räumliche Verteilung der Beobachtungsstationen der unterschiedlichen Spezies im Modellgebiet uc1. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

B.8 Schlussfolgerung

Abbildung 105: Reduktion der Kostenfunktion des u15 Gitters



Kostenreduktion durch die Analyse des u15-Modellgitters für die verschiedenen Spezies und Beobachtungsplattformen für das Jahr 2016. Quelle: eigene Darstellung, Forschungszentrum Jülich.

7 Quellenverzeichnis

- Ackermann, I. J.; Hass, H.; Memmesheimer, M.; Ebel, A.; Binkowski, F. S.; Shankar, U. (1998): Modal aerosol dynamics model for Europe: development and first applications, In: *Atmos. Env.*, 32, 2981–2999. Doi: [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(98\)00006-5](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00006-5)
- Bocquet, M. (2005a): Reconstruction of an atmospheric tracer source using the principle of maximum entropy. I: Theory. In: *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 131 (610), 2191-2208. Doi: <https://doi.org/10.1256/qj.04.67>
- Bocquet, M. (2005b): Reconstruction of an atmospheric tracer source using the principle of maximum entropy. II: Applications. In: *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 131 (610), 2209-2223. Doi: <https://doi.org/10.1256/qj.04.68>
- Bousquet, P.; Ciais, P.; Peylin, P.; Ramonet, M.; Monfray, P. (1999a): Inverse modeling of annual CO₂ sources and sinks, 1. Method and control inversion. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104 (D21), 26161-26178. Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD900342>
- Bousquet, P.; Ciais, P.; Peylin, P.; Ramonet, M.; Monfray, P. (1999b): Inverse modeling of annual CO₂ sources and sinks, 2. Sensitivity study. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104 (D21), 26179-26193. Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD900341>
- Chai, T. F.; Carmichael, G. R.; Sandu, A.; Tang, Y. H.; Daescu, D. N. (2006): Chemical data assimilation of transport and chemical evolution over the Pacific TRACE-P aircraft measurements. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 111 (D02301). Doi: <https://doi.org/10.1029/2005JD005883>
- Courtier, P.; Thépaut, J.-N.; Hollingsworth, A. (1994): A strategy for operational implementation of 4D-VAR, Using an incremental approach. In: *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 120 (519), 1367-1387. Doi: <https://doi.org/10.1002/qj.49712051912>
- Duarte, E. D. S. F.; Franke, P.; Lange, A. C.; Friese, E.; da Silva Lopes, F. J.; da Silva, J. J.; Souza dos Reis, J.; Landulfo, E.; Moises Santos e Silva, C.; Elbern, H.; Hoelzemann, J. J. (2021): Evaluation of atmospheric aerosols in the metropolitan area of São Paulo simulated by the regional EURAD-IM model on high-resolution, *Atmos. Poll. Res.*, 12 (2), 451-469. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.apr.2020.12.006>
- Denier van der Gon, H. A. C., Hendriks, C., Kuenen, J., Segers, A., und Visschedijk, A. J. H. (2011): Description of current temporal emission patterns and sensitivity of predicted AQ for temporal emission patterns. In: EU FP7 MACC deliverable report D_D-EMIS_1.3
- Elbern, H.; Schmidt, H. (1999): A four-dimensional variational chemistry data assimilation scheme for Eulerian chemistry transport modeling. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104 (D15). Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD900280>
- Elbern, H.; Schmidt, H.; Talagrand, O.; Ebel, A. (2000): 4D – variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis. In: *Env. Model Software*, 15, 539-548. Doi: [https://doi.org/10.1016/S1364-8152\(00\)00049-9](https://doi.org/10.1016/S1364-8152(00)00049-9)
- Elbern, H.; Schmidt, H. (2001): Ozone episode analysis by four-dimensional variational chemistry data assimilation. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 106 (D4). Doi: <https://doi.org/10.1029/2000JD900448>
- Elbern, H.; Schmidt, H. (2002): Chemical 4D variational data assimilation and its numerical implications for case study analyses. In: Chock, D. P., und Carmichael, G. R.: IMA volumes in mathematics and its applications, *Atmospheric modeling*, 130, 165-184
- Elbern, H.; Strunk, A.; Schmidt, H.; Talagrand, O. (2007): Emission rate and chemical state estimation by 4-dimensional variational inversion. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3749-3769. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-7-3749-2007>

- Elbern, H.; Schwinger, J.; Botchorishvili, R. (2010): Chemical state estimation for the middle atmosphere by four-dimensional variational data assimilation: system configuration. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 115, D06302. Doi: <https://doi.org/10.1029/2009JD011953>
- Elbern, H.; Strunk, A.; Fries, E.; Nieradzik, L. (2011): Assessment of source-receptor relations by inverse modelling and chemical data assimilation. In: *Persistent Pollution Past, Present and Future School of Environmental Research - Helmholtz-Zentrum Geesthacht*, Quante, M.; Ebinghaus, R.; Flöser, G. (Eds.) 1st Edition., ISBN 978-3-642-17420-9
- Engelen, R.; Andersson, E.; Chevallier, F.; Hollingsworth, A.; Matricardi, M.; McNally, A. P.; Thépaut, J. N.; Watts, P. D. (2004): Estimating atmospheric CO₂ from advanced infrared satellite radiances within an operational 4D-var data assimilation system: Methodology and first results. In *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 109 (D19309). Doi: <https://doi.org/10.1029/2004JD004777>
- Enting, I. G.; Newsam, G. N. (1990): Inverse problems in atmospheric constituent studies: II. Sources in the free atmosphere. In: *Inverse Problems*, 6, 349-362. Doi: <https://doi.org/10.1088/0266-5611/6/3/005>
- Enting, I. G.; Truinger, C. M.; Francey, R. J. (1995): A synthesis inversion of the concentration and $\delta^{13}\text{C}$ of atmospheric CO₂. In: *Tellus*, 47B, 35-52. Doi: <https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.47.issue1.5.x>
- Errera, Q.; Fonteyn, D. (2001): Four-dimensional variational chemical assimilation of CRISTA stratospheric measurements. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 106 (D11), 12253-12265. Doi: <https://doi.org/10.1029/2001JD900010>
- Fan, S. M.; Gloor, M.; Mahlman, J.; Pacala, S.; Sarmiento, J.; Takahashi, T.; Tans, P.; (1998): A large terrestrial carbon sink in North America implied by atmospheric data and oceanic carbon dioxide data and models. In: *Science*, 282 (5388), 442-446. Doi: <https://doi.org/10.1126/science.282.5388.442>
- Fries, E.; Ebel, A. (2010): Temperature dependent thermodynamic model of the system H+-NH4+-Na+-Cl--H₂O. In: *J. Phys. Chem. A*, 114 (43), 11595-11631. Doi: <https://doi.org/10.1021/jp101041j>
- Gama, C.; Ribeiro, I.; Lange, A. C.; Vogel, A.; Ascenso, A.; Seixas, V.; Elbern, H.; Borrego, C.; Fries, E.; Monteiro, A. (2019): Performance assessment of CHIMERE and EURAD-IM dust modules. In: *Atmos. Poll. Res.* Doi: <https://doi.org/10.1016/j.apr.2019.03.005>
- Geiger, H.; Barnes, I.; Bejan, I.; Benter, T.; Spittler, M. (2003): The tropospheric degradation of isoprene: an updated module for the regional atmospheric chemistry mechanism. In: *Atmos. Env.*, 37 (11), 1503-1519. Doi: [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(02\)01047-6](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(02)01047-6)
- Gloor, M.; Fan, S. M.; Pacala, S.; Sarmiento, J.; Ramonet, M. (1999): A model-based evaluation of inversions of atmospheric transport, using annual mean mixing ratios, as a tool to monitor fluxes on nonreactive trace substances like CO₂ on a continental scale. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104 (D12), 14245-14260. Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD900132>
- Grell, G. A.; Dèvènyi, D. (2002): A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques. In: *Geophys. Res. Lett.*, 29 (14), 38-1-38-4. Doi: <https://doi.org/10.1029/2002GL015311>
- Guenther, A. B.; Jiang, X.; Heald, C. L.; Sakulyanontvittaya, T.; Duhl, T.; Emmons, L. K.; Wang, X. (2012): The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions. In: *Geosci. Model dev.*, 5, 1471-1492. Doi: <https://doi.org/10.5194/gmd-5-1471-2012>
- Gurney, K.; Law, R.; Denning, A.; Rayner, P.; Baker, D.; Bousquet, P.; Bruhwiler, L.; Chen, Y.-H.; Ciais, P.; Fan, S.; Fung, I.; Gloor, M.; Heimann, M.; Higuchi, K.; John, J.; Maki, T.; Maksyutov, S.; Masarie, K.; Peylin, P.; Prather, M.; Pak, B.; Randerson, J.; Sarmiento, J.; Taguchi, S.; Takahashi, T.; Yuen, C. (2002): Towards robust regional

estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models. In: *Nature*, 415, 626-630. Doi: <https://doi.org/10.1038/415626a>

Haben, S. A. (2011): Conditioning and preconditioning of the minimization problem in variational data assimilation, Universität Reading, Großbritannien

Hanea, R. G.; Velders, G. J. M.; Heemink, A. (2004): Data assimilation of ground-level ozone with a Kalman filter and chemistry transport. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 109 (10). Doi: <https://doi.org/10.1029/2003JD004283>

Hanna, S. R.; Chang, J. C.; Fernau, M. E. (1998): Monte Carlo estimates of uncertainties in predictions by a photochemical grid model (UAM-IV) due to uncertainties in input variables. In: *Atmos. Env.*, 32, 3619-3628. Doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310\(97\)00419-6](http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310(97)00419-6)

Hanna, S. R.; Lu, Z. G.; Frey, H. C.; Wheeler, N.; Vukovich, J.; Arunachalam, S.; Fernau, M.; Hansen, D. A. (2001): Uncertainties in predicted ozone concentrations due to input uncertainties for the UAM-V photochemical grid model applied to the July 1995 OTAG domain. In: *Atmos. Env.*, 35, 891-903. Doi: [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00367-8](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00367-8)

Hass, H.; Jakobs, H. J.; Memmesheimer, M. (1995): Analysis of a regional model (EURAD) near surface gas concentration predictions using observations from networks. In: *Meteor. Atmos. Phys.*, 57, 173-200. Doi: <https://doi.org/10.1007/BF01044160>

Holtslag, A. A. M.; Nieuwstadt, F. T. M. (1986): Scaling the Atmospheric Boundary Layer. In: *Meteorology*, 36, 201-209. Doi: <http://dx.doi.org/10.1007/bf00117468>

Hourdin, F.; Talagrand, O. (2006): Eulerian backtracking of atmospheric tracers. I: Adjoint derivation and parameterization of subgrid-scale transport. In: *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 132, 567-583. Doi: <https://doi.org/10.1256/qj.03.198.A>

Hourdin, F.; Talagrand, O.; Idelkadi, A. (2006): Eulerian backtracking of atmospheric tracers. II: Numerical aspects. In: *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 132, 585-603. Doi: <https://doi.org/10.1256/qj.03.198.B>

Houweling, S.; Kaminski, T.; Dentener, F.; Lelieveld, J.; Heimann, M. (1999): Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104 (D21), 26137-26160. Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD900428>

Issartel, J. P. (2003): Rebuilding sources of linear tracers after atmospheric concentration measurements. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 2111-2125. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-3-2111-2003>

Jung, J. C.; Sharon, E. (2019): The Volkswagen emissions scandal and its aftermath. In: *Global Business and Organizational Excellence*, 38(4), 6-15. Doi: <https://doi.org/10.1002/joe.21930>

Jülich Supercomputing Centre (2021a): JURECA: Data Centric and Booster Modules implementing the Modular Supercomputing Architecture at Jülich Supercomputing Centre. In: *Journal of large-scale research facilities*, 7, A182. Doi: <http://dx.doi.org/10.17815/jlsrf-7-182>

Jülich Supercomputing Centre (2021b): JUWELS Cluster and Booster: Exascale Pathfinder with Modular Supercomputing Architecture at Juelich Supercomputing Centre. In: *Journal of large-scale research facilities*, 7, A183. Doi: <http://dx.doi.org/10.17815/jlsrf-7-183>

Kaiser, J. W.; Heil, A.; Andreae, M. O.; Benedetti, A.; Chubarova, N.; Jones, L.; Morcrette, J.-J.; Razinger, M. (2012): Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power. In: *Biogeosciences*, 9, 527-554. Doi: <https://doi.org/10.5194/bg-9-527-2012>

Kaminski, T.; Heimann, M.; Giering, R. (1999a): A coarse grid three-dimensional global inverse model of the atmospheric transport: 1. Adjoint model and Jacobian matrix. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104 (D15), 18535-18553: Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD900147>

- Kaminski, T.; Heimann, M.; Giering, R. (1999b): A coarse grid three-dimensional global inverse model of the atmospheric transport: 2. Inversion of transport of CO₂ in the 1980s. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104 (D15), 18555-18581. Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD900146>
- Kanakidou, M.; Dameris, M.; Elbern, H.; Beekmann, M.; Konovalov, I.; Nieradzik, L.; Strunk, A.; Krol, M. (2011): Synergistic use of retrieved trace constituents distributions and numerical modelling. In: *The remote sensing of tropospheric composition from space*, J. Burrows, U. Platt, P. Borrell (Eds.), Springer. Doi 10.1007/978-3-642-14791-3
- Khalil, M. A. K.; Rasmussen, R. A. (1990): The global cycle of carbon monoxide. In: *Chemosphere*, 20 (i-2), 227-242. Doi: [https://doi.org/10.1016/0045-6535\(90\)90098-E](https://doi.org/10.1016/0045-6535(90)90098-E)
- Kuenen, J. J. P.; Visschedijk, A. J. H.; Jozwicka, M.; Denier van der Gon, H. A. C. (2014): TNO-MACC_II emission inventory; a multi-year (2003-2009) consistent high-resolution European emission inventory for air quality modelling. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10963-10976. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-14-10963-2014>
- Lee, C.; Martin, R. V.; van Donkelaar, A.; Lee, H.; Dickerson, R. R.; Hains, J. C.; Krotkov, N.; Richter, A.; Vinnikov, K.; Schwab, J. J. (2011): SO₂ emissions and lifetimes: Estimates from inverse modeling using in situ and global, space-based (SCIAMACHY and OMI) observations. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 116 (D6). Doi: <https://doi.org/10.1029/2010JD014758>
- Liu, D. C.; Nocedal, J. (1989): On the limited memory BFGS method for large scale optimization. In: *Math. Programming, Series B*, 45(3), 503-528. Doi: <https://doi.org/10.1007/BF01589116>
- Liu, F.; Beirle, S.; Zhang, Q.; Dörner, S.; He, K.; Wagner, T. (2016): NO_x lifetimes and emissions of cities and power plants in polluted background estimated by satellite observations. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 5283-5298. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-16-5283-2016>
- Madronich, S.; Weller, G. (1990): Numerical integration errors in calculated tropospheric photodissociation rate coefficients. In: *J. Atmos. Chem.*, 10 (3), 289-300. Doi: <https://doi.org/10.1007/BF00053864>
- Memmesheimer, M.; Tippke, J.; Ebel, A.; Hass, H.; Jakobs, H. J.; Laube, M. (1991): On the use of EMEP emission inventories for European scale air pollution modeling with the EURAD model, In: *Proceedings of the EMEP workshop on Photooxidant Modelling for Long-Range Transport in Relation to Abatement Strategies*, Berlin, 16.-19. April 1991, 307-324
- Memmesheimer, M.; Friese, E.; Jakobs, H. J.; Feldmann, H.; Kessler, C.; Piekorz, G. (2004): Long-term simulations of particulate matter in Europe on different scales using sequential nesting of a regional model, In: *Int. J. Env. Poll.*, 22, 108-132
- Menut, L.; Bessagnet, B.; Mailler, S.; Pennel, R.; Siour, G. (2020): Impact of Lightning NO_x emissions on atmospheric composition and meteorology in Africa and Europe. In: *Atmosphere*, 11 (10), 1128. Doi: <https://doi.org/10.3390/atmos11101128>
- Mlawer, E. J.; Taubman, S. J.; Brown, P. D.; Iacono, M. J.; Clough, S. A. (1997): Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102 (D14), 16663-16682. Doi: <https://doi.org/10.1029/97JD00237>
- Monteiro, A.; Strunk, A.; Carvalho, A.; Tchepel, O.; Miranda, A. I.; Borrego, C.; Saavedra, S.; Rodriguez, A.; Souto, J.; Casares, J.; Friese, E.; Elbern, H. (2012): Investigating a very high ozone episode in a rural mountain site. In: *Env. Poll.*, 162, 176-189. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2011.11.008>
- Muller, J. F.; Stavrakou, T. (2005): Inversion of CO and NO_x emissions using the adjoint of the IMAGES model. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1157-1186. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-5-1157-2005>
- Nakanishi, M.; Niino, H. (2009): Development of an improved turbulence closure model for the atmospheric boundary layer. In: *J. Meteor. Soc. Japan*, 87, 895-912. Doi: <https://doi.org/10.2151/jmsj.87.895PDF>

- Nelder, J. A.; Mead, R. (1965): A simplex method for function minimization. In: *Comput. J.*, 7, 308–313.
- Nieradzik, L. P. (2005): Application of a High Dimensional Model Representation on the atmospheric aerosol module MADE of EURAD-CTM, Universität zu Köln, Deutschland
- Newsam, G. N.; Enting, I. G. (1988): Inverse problems in atmospheric constituent studies: I. Determination of surface sources under a diffusive transport approximation. In: *Inverse problems*, 4, 1037-1054. Doi: 10.1088/0266-5611/4/4/008
- Nocedal, J. (1980): Updating quasi newton matrices with limited storage. In: *Math. Comp.*, 35 (151), 951-958. Doi: <https://doi.org/10.1090/S0025-5718-1980-0572855-7>
- Petroff, A.; Zhang, L. (2010): Development and validation of a size-resolved particle dry deposition scheme for application in aerosol transport models. In: *Geosci. Model Dev.*, 3, 753-769. Doi: <https://doi.org/10.5194/gmd-3-753-2010>
- Quélo, D.; Mallet, V.; Sportisse, B. (2005): Inverse modeling of NO_x emissions at regional scale over northern France. Preliminary investigation of the second-order sensitivity. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 110, D24310. Doi: <https://doi.org/10.1029/2005JD006151>
- Rabitz, H.; Aliş, Ö.F. (1999): General foundations of high-dimensional model representations. *J. Math. Chem.*, 25, 197–233. Doi: <https://doi.org/10.1023/A:1019188517934>
- Robertson, L.; Langner, J. (1992): Source function estimate by means of variational data assimilation applied to the ETEX-I tracer experiment. In: *Atmos. Env.*, 32, 4219-4225. Doi: [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(98\)00176-9](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00176-9)
- Roselle, S.; Binkowski, F. S. (1999): Cloud Dynamics and Chemistry, in *Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System*, EPA 600/R-99- 030, herausgegeben von D. W. Byun und J. K. S. Ching, U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N. C.
- Sandu, A.; Daescu, D.; Carmichael, G. R. (2003): Direct and adjoint sensitivity analysis of chemical kinetic systems with KPP: I – Theory and software tools, *Atmos. Env.*, 37, 5083–5096. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2003.08.019>
- Sandu, A.; Sander, R. (2006): Technical note: Simulating chemical systems in Fortran90 and Matlab with the Kinetic PreProcessor KPP-2.1. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 187-195. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-6-187-2006>
- Schmidt, H.; Martin, D. (2003): Adjoint sensitivity of episodic ozone in the Paris area to emissions on the continental scale. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 108 (D17). Doi: <https://doi.org/10.1029/2001JD00158>
- Schneider, C.; Pelzer, M.; Toenges-Schuller, N.; Nacken, M.; Niederau, A. (2016): ArcGIS basierte Lösung zur detaillierten, deutschlandweiten Verteilung (Gridding) nationaler Emissionsjahreswerte auf Basis des Inventars zur Emissionsberichterstattung, Umweltbundesamt, Dessau-Roßlau
- Skamarock, W. C.; Chen, F.; Dudhia, J. (2001): Coupling an Advanced Land Surface-Hydrology Model with the Penn State-NCAR MM5 Modeling System. Part I: Model Implementation and Sensitivity. In: *Mon. Weather Rev.*, 129, 569-585. Doi: [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(2001\)129<0569:CAALSH>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(2001)129<0569:CAALSH>2.0.CO;2)
- Skamarock, W. C.; Klemp, J. B.; Dudhia, J.; Gill, D. O.; Barker, D.; Duda, M. G.; Huang, X.-Y.; Wang, W.; Powers, J. G. (2008): A Description of the Advanced Research WRF Version 3 (No. NCAR/TN-475+STR). University Corporation for Atmospheric Research. doi: <https://doi.org/10.5065/D68S4MVH>
- Snyder, C.; Bengtsson, T.; Bickel, P.; Anderson, J. (2008): Obstacles to high-dimensional particle filtering. In: *Mon. Weather Rev.*, 136 (12), 4629-4640. Doi: <https://doi.org/10.1175/2008MWR2529.1>
- Stockwell, W. R.; Kirchner, F.; Kuhn, M.; Seefeld, S. (1997): A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. In: *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102 (D22), 25847-25879. Doi: <https://doi.org/10.1029/97JD00849>

- Strunk, A. (2006): Tropospheric chemical state estimation by four-dimensional variational data assimilation on nested grids, Universität zu Köln, Deutschland
- Thompson, G.; Rasmussen, R. M.; Manning, K. (2004): Explicit forecasts of winter precipitation using an improved bulk microphysics scheme. Part I: Description and sensitivity analysis. In: *Mon. Weather Rev.*, 132, 519-542. Doi: [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(2004\)132<0519:EFOWPU>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(2004)132<0519:EFOWPU>2.0.CO;2)
- Tie, X.; Madronich, S.; Walters, S.; Zhang, R.; Rasch, P.; Collins, W. (2003): Effect of clouds on photolysis and oxidants in the troposphere. In: *Aerosols and Clouds*, 108 (D20). Doi: <https://doi.org/10.1029/2003JD003659>
- van Loon, M.; Builtjes, P. J. H.; Segers, A. J. (2000): Data assimilation of ozone in the atmospheric transport chemistry model LOTOS. In: *Env. Model Software*, 15, 603-609. Doi: [https://doi.org/10.1016/S1364-8152\(00\)00048-7](https://doi.org/10.1016/S1364-8152(00)00048-7)
- Verlaan, M.; Heemink, A. W. (1995): Reduced rank square root filters for large scale data assimilation problems. In: *Second International Symposium on Assimilation of Observations in Meteorology and Oceanography*, WMO, 247-252
- Visser, A. J.; Boersma, K. F.; Ganzeveld, L. N.; Krol, M. C. (2019): European NOx emissions in WRF-Chem derived from OMI: Impacts on summertime surface ozone. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 11821-11841. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-19-11821-2019>
- Vogel, A.; UngermaNN, J.; Elbern, H. (2020): Analyzing highly uncertain source regions in the Ex-UTLS and their effects on small-scale atmospheric composition using probabilistic retroplume calculations. In: *Atmos. Env.*, 220, 117063. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.117063>
- Walcek, C. J. (2000): Minor flux adjustment near mixing ratio extremes for simplified yet highly accurate monotonic calculation of tracer advection, In: *J. Geophy. Res.-Atmos.*, 105 (D7), 9335-9348. Doi: <https://doi.org/10.1029/1999JD901142>
- Weaver, A; Courtier, P. (2001): Correlation modelling on the sphere using a generalized diffusion equation. In: *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 127 (575), 1815-1846. Doi: <https://doi.org/10.1002/qj.49712757518>
- Zhang, L.; Brook, J. R.; Vet, R. (2003): A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 2067-2082. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-3-2067-2003>
- Zyryanov, D.; Foret, G.; Eremenko, M.; Beekmann, M.; Cammas, J.-P.; D'Isidoro, M.; Elbern, H.; Flemming, J.; Friese, E.; Kioutsioutkis, I.; Maurizi, A.; Melas, D.; Meleux, F.; Menut, L.; Moinat, P.; Peuch, V.-H.; Poupkou, A.; Razinger, M.; Schultz, M.; Stein, O.; Suttie, A. M.; Valdebenito, A.; Zerefos, C.; Dufour, G.; Bergametti, G.; Flaud, J.-M. (2012): 3-D evaluation of tropospheric ozone simulations by an ensemble of regional Chemistry Transport Model. In: *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 3219-3240. Doi: <https://doi.org/10.5194/acp-12-3219-2012>