

TEXTE

107/2026

Abschlussbericht

Quellenzuordnung der Ozonkonzentration in Deutschland durch Bestimmung der Beiträge der Vorläuferstoffe auf die Ozonbildung

von:

Tim Butler, Edward Chan
Forschungsinstitut für Nachhaltigkeit | am GFZ, Potsdam

Richard Kranenburg, Claire van der Wal, Martijn Schaap
TNO Netherlands, Utrecht

Herausgeber:
Umweltbundesamt

TEXTE 107/2026

REFOPLAN des Bundesministeriums für Umwelt,
Klimaschutz, Naturschutz und nukleare Sicherheit

Forschungskennzahl 3721 51 201 0

Abschlussbericht

Quellenzuordnung der Ozonkonzentration in Deutschland durch Bestimmung der Beiträge der Vorläuferstoffe auf die Ozonbildung

von

Tim Butler, Edward Chan
Forschungsinstitut für Nachhaltigkeit | am GFZ, Potsdam

Richard Kranenburg, Claire van der Wal, Martijn Schaap
TNO Netherlands, Utrecht

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:

Forschungsinstitut für Nachhaltigkeit | am GFZ
Berlinerstraße 130
14467 Potsdam

Abschlussdatum:

November 2025

Redaktion:

Fachgebiet II 4.2 Beurteilung der Luftqualität
Andrea Minkos

DOI:

<https://doi.org/10.60810/openumwelt-8129>

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, Juli 2026

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

Kurzbeschreibung: Quellenzuordnung der Ozonkonzentration in Deutschland

Diese Studie zeigt die erfolgreiche Implementierung des TOAST-Quellenzuordnungssystems für bodennahes Ozon im Chemie-Transport-Modell LOTOS-EUROS und vergleicht es mit einer Referenzimplementierung im Modell WRF-Chem.

Unter den Bedingungen des Jahres 2019 ist mehr als die Hälfte des Ozons in den Monaten April bis September (Peak-Season Ozone, PSO, Mittelwert über alle täglich höchsten 8-Stunden-Mittelwerte in diesem Zeitraum) über Deutschland auf den Ferntransport zurückzuführen, insbesondere auf Ozon, das aus anthropogenen NO_x-Emissionen außerhalb Europas entsteht. Die deutschen Emissionen machen etwa ein Drittel des verbleibenden PSO aus, wobei der Straßenverkehr die dominierende inländische Quelle ist. VOC-Emissionen spielen hingegen nur eine untergeordnete Rolle bei der Ozonbildung.

Trotz einer prognostizierten Halbierung der anthropogenen NO_x- und VOC-Emissionen in Deutschland bis 2030 bleiben die über Deutschland gemittelten Peak-Season-Werte weitgehend unverändert. Während die Beiträge vieler deutscher und europäischer Sektoren zurückgehen, wird dies durch einen Anstieg des Hintergrundozons aufgrund geringerer Titration unter niedrigeren NO_x-Bedingungen ausgeglichen. Die Ozonproduktivität der verbleibenden NO_x-Quellen steigt, insbesondere in Sektoren mit unveränderten Emissionen. Episoden mit hohen Ozonkonzentrationen (täglich höchste 8-Stunden-Mittelwerte über 120 µg/m³) nehmen aufgrund des reduzierten NO_x-Ausstoßes im Straßenverkehr ab.

Die Ergebnisse bestätigen, dass NO_x der Haupttreiber der Ozonbildung ist und das größte Potenzial zur Ozonminderung hat. Eine wirksame Ozonminderung in Deutschland sollte NO_x-Reduktionen priorisieren und durch abgestimmte Maßnahmen über Verwaltungs- und Landesgrenzen hinweg erfolgen. Internationale Zusammenarbeit bleibt dabei von zentraler Bedeutung – insbesondere mit Blick auf grenzüberschreitende Emissionen und Methan als globaler Ozonvorläufer.

Abstract: Source attribution of ozone concentration in Germany

This study demonstrates the successful implementation of the TOAST source attribution system for ground-level ozone within the LOTOS-EUROS chemistry transport model and compares it with a reference implementation in the WRF-Chem model.

Under 2019 conditions, over half of the peak season ozone (PSO, average over all maximum daily 8-hour-averages within April to September) over Germany is due to long-range transport, particularly ozone produced from anthropogenic NO_x emissions outside Europe. German emissions account for about one-third of the remaining PSO, with road transport being the dominant domestic source. VOC emissions, in contrast, play a minor role in ozone formation.

Despite a projected halving of anthropogenic NO_x and VOC emissions in Germany by 2030, the national average PSO remains largely unchanged. While contributions from many German and European sectors decline, this is offset by increased background ozone due to reduced titration under lower NO_x conditions. The ozone productivity of remaining NO_x sources increases, particularly for sectors with unchanged emissions. High ozone events (maximum daily 8-hour-averages above 120 µg/m³) decrease due to reduced road transport NO_x.

The results affirm that NO_x is the primary driver of ozone formation and has the largest potential for ozone mitigation. Effective ozone mitigation in Germany should prioritize NO_x reductions and be implemented through coordinated action across administrative boundaries, including international collaboration – especially targeting transboundary emissions and methane as a global ozone precursor.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis.....	6
Abbildungsverzeichnis.....	8
Tabellenverzeichnis.....	13
Abkürzungsverzeichnis.....	14
Zusammenfassung.....	15
Summary	24
1 Einführung.....	32
1.1 Ozon-Kennzeichnung in WRF-Chem	34
1.2 Quellenzuordnung mit Kennzeichnung in LOTOS-EUROS.....	35
2 Aufbau des Projekts.....	38
2.1 Konfiguration der Modelle.....	38
2.2 Quellsektoren und -regionen für die Ozonquellenzuordnung.....	38
2.2.1 Satz von Kennzeichnungen für regionale Modelltests	38
2.2.2 Globale Kennzeichnungen für die Randbedingungen	39
2.2.3 Erste Kennzeichnungen für die Zuordnung von Ozonquellen	42
2.3 Emissionsminderungsszenarien	42
3 Aufbau und Durchführung der Modellierung	44
3.1 Referenz-Testläufe mit WRF-Chem.....	44
3.2 Implementierung der Ozon-Kennzeichnung in LOTOS-EUROS: NO _x -Kennzeichnung.....	44
3.3 Implementierung der Ozonkennzeichnung in LOTOS-EUROS: VOC-Kennzeichnung.....	45
3.4 Testläufe mit LOTOS-EUROS	46
3.4.1 NO _x -Kennzeichnung	47
3.4.2 VOC-Kennzeichnung	55
3.5 Vergleich der LOTOS-EUROS-Testsimulationen mit WRF-Chem.....	64
3.5.1 Vergleich von NO _x -gekennzeichneten Testläufen	64
3.5.2 Vergleich von VOC-gekennzeichneten Testläufen.....	67
3.6 Schlussfolgerungen aus der ersten Testsimulation	71
3.7 Aufbau der Produktionssimulationen.....	71
3.7.1 Kennzeichnung der endgültigen Simulationen.....	72
4 Analyse der Produktionsläufe	75
4.1 Modellbewertung	75
4.2 NO _x -gekennzeichneter Produktionslauf.....	76
4.2.1 Verfeinerte NO _x -Kennzeichnung.....	88

4.3	VOC-gekennzeichnete Produktionsläufe	91
4.4	Szenarioläufe für 2030	93
4.4.1	NO _x -gekennzeichnete Simulation für 2030.....	93
4.4.2	VOC-gekennzeichnete Simulation für 2030.....	104
5	Diskussion und Schlussfolgerungen	107
6	Quellenverzeichnis	111

Abbildungsverzeichnis

Abbildung Z-1:	Beitrag der NO _x -Emissionen zum PSO in Deutschland und in jedem Bundesland.....	17
Abbildung Z-2:	Beitrag der NO _x -Emissionen nach GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen	18
Abbildung Z-3:	Veränderung der PSO-Werte (µg/m ³) von 2019 bis 2030 über Deutschland und jedem Bundesland sowie Veränderungen der Beiträge aus verschiedenen NO _x -Quellen	19
Abbildung Z-4:	Veränderung (2019 bis 2030) des Beitrags der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen	21
Abbildung Z-5:	PSO (µg/m ³) für Deutschland und jedes Bundesland mit Beiträgen verschiedener VOC-Quellen.....	22
Abbildung 1:	Gesamtkonzentration von O ₃ gemäß LOTOS-EUROS, gemittelt vom 01.04.2019 bis zum 30.09.2019 (durchschnittliche Sommerkonzentration über alle Stundenmittelwerte).....	47
Abbildung 2:	Modellierte O ₃ -Konzentrationen aus deutschen Quellen, gekennzeichnet mit der NO _x -Kennzeichnungsmethode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS	49
Abbildung 3:	Modellierte O ₃ -Konzentrationen aus Nachbarländern, gekennzeichnet mit der NO _x -Kennzeichnungsmethode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS	50
Abbildung 4:	Modellierte O ₃ -Konzentrationen aus sonstigen Quellen, gekennzeichnet mit der NO _x -Kennzeichnungsmethode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS	51
Abbildung 5:	Zeitreihen der MDA8-Werte für O ₃ . Die Beiträge aller Kennzeichnungen werden gestapelt und ergeben zusammen die Gesamtkonzentration von O ₃ . Alle europäischen (nicht deutschen) Kennzeichnungen werden unter einer Bezeichnung „Europa“ zusammengefasst. Auch alle deutschen Beiträge mit Ausnahme des Straßenverkehrs werden zusammengefasst. ..	52
Abbildung 6:	MDA8-Werte für O ₃ sowohl für die Referenzsimulation als auch für ein Reduktionsszenario mit einer Emissionsminderung von 15 % für den deutschen Straßenverkehr (oben) und einer Minderung von 15 % für alle europäischen Emissionen außer Deutschland (unten).....	54
Abbildung 7:	MDA8-Werte für O ₃ aus dem deutschen Straßenverkehr (oben) und aus anthropogenen europäischen (nicht deutschen) Emissionen (unten). Blau: Mit NO _x -Kennzeichnung gekennzeichnete Werte. Rot: Brute-Force-Methode (Referenzsimulation minus Szenario).....	55

Abbildung 8:	Modellierte O ₃ -Konzentrationen aus deutschen Quellen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungs-methode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS	57
Abbildung 9:	Modellierte O ₃ -Konzentrationen aus Nachbarländern, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungs-methode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS	58
Abbildung 10:	Modellierte O ₃ -Konzentrationen aus sonstigen Quellen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungs-methode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS	59
Abbildung 11:	Zeitreihen der MDA8-Werte für O ₃ für die Station Waldhof ...	60
Abbildung 12:	Konzentrationen von O ₃ aus Randbedingungen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnung-Technik, aus verschiedenen Komponenten, die über die Modellgrenzen kommen.....	62
Abbildung 13:	Konzentrationen von O ₃ aus anthropogenen Quellen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungsmethode, aus verschiedenen Komponenten, die aus anthropogenen VOC-Emissionen stammen	63
Abbildung 14:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO _x -gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB001 (Westerland).....	64
Abbildung 15:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO _x -gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB004 (Schauinsland).....	64
Abbildung 16:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO _x -gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB005 (Waldhof).....	65
Abbildung 17:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO _x -gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DENW038 (Mühlheim-Styrum).....	66
Abbildung 18:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO _x -gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBW084 (Freiburg)	66
Abbildung 19:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO _x -gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBE034 (Berlin Neukölln)	67
Abbildung 20:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB001 (Westerland).....	68
Abbildung 21:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB004 (Schauinsland).....	68

Abbildung 22:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB005 (Waldhof).....	69
Abbildung 23:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DENW038 (Mühlheim-Styrum).....	70
Abbildung 24:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBW084 (Freiburg)	70
Abbildung 25:	Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBE034 (Berlin Neukölln)	71
Abbildung 26:	Zeitreihe von MDA8-Ozon in Westerland	76
Abbildung 27:	Zeitreihe von MDA8-Ozon am Waldhof	76
Abbildung 28:	Zeitreihen von MDA8-Ozon in Schmücke.....	76
Abbildung 29:	Beispiel einer Ozon-Episode in Berlin Neukölln	77
Abbildung 30:	Peak Season Ozon in Deutschland und jedem Bundesland (LOTOS-EUROS)	78
Abbildung 31:	Peak Season Ozon in Deutschland und jedem Bundesland (WRF-Chem)	78
Abbildung 32:	Peak Season Ozon in Deutschland aus dem NO _x -gekennzeichneten Produktionslauf und den Beiträgen der großräumigen Kennzeichnungen (LOTOS-EUROS)	79
Abbildung 33:	Peak Season Ozon in Deutschland aus dem NO _x -gekennzeichneten Produktionslauf und den Beiträgen der großräumigen Kennzeichnungen (WRF-Chem)	80
Abbildung 34:	Beiträge der europäischen Kennzeichnungen zum Peak Season Ozon im NO _x -gekennzeichneten Produktionslauf (LOTOS-EUROS).....	81
Abbildung 35:	Beiträge der europäischen Kennzeichnungen zum Peak Season Ozon im NO _x -gekennzeichneten Produktionslauf (WRF-Chem)	82
Abbildung 36:	Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum Peak Season Ozon (LOTOS-EUROS).....	84
Abbildung 37:	Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum Peak Season Ozon (WRF-Chem).....	85
Abbildung 38:	Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (LOTOS-EUROS).....	86
Abbildung 39:	Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (WRF-Chem).....	87

Abbildung 40:	AOT40 in Deutschland und jedem Bundesland (LOTOS-EUROS)	88
Abbildung 41:	AOT40 in Deutschland und jedem Bundesland (WRF-Chem) ..	88
Abbildung 42:	Beiträge der NO _x -Emissionen in jedem deutschen Bundesland zum PSO über Deutschland (LOTOS-EUROS).....	89
Abbildung 43:	Peak Season Ozon-Werte (µg/m ³) für Deutschland und jedes Bundesland mit Beiträgen verschiedener NO _x -Quellen aus dem verfeinerten NO _x -Produktionslauf (LOTOS-EUROS)	90
Abbildung 44:	Peak Season Ozon-Werte in Deutschland aus dem LOTOS-EUROS-VOC-gekennzeichneten Produktionslauf und den Beiträgen aller Kennzeichnungen.....	92
Abbildung 45:	Peak Season Ozon-Werte (µg/m ³) für Deutschland und jedes Bundesland mit Beiträgen verschiedener VOC-Quellen aus dem LOTOS-EUROS-VOC-Produktionslauf.....	93
Abbildung 46:	Veränderung des PSO von 2019 bis 2030 und Veränderung des Beitrags der globalen NO _x -Kennzeichnungen (LOTOS-EUROS)	94
Abbildung 47:	Veränderung des PSO von 2019 bis 2030 und Veränderung des Beitrags globaler NO _x -Kennzeichnungen (WRF-Chem)	95
Abbildung 48:	Veränderung des Beitrags europäischer NO _x -Kennzeichnungen zum PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 (LOTOS-EUROS)	96
Abbildung 49:	Veränderung des Beitrags europäischer NO _x -Kennzeichnungen zum PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 (WRF-Chem) ..	97
Abbildung 50:	Veränderung des Beitrags deutscher GNFR-NO _x -Quellen zum PSO in Deutschland von 2019 bis 2030 (LOTOS-EUROS).....	99
Abbildung 51:	Veränderung des Beitrags deutscher GNFR-NO _x -Quellen zum PSO in Deutschland von 2019 bis 2030 (WRF-Chem).....	100
Abbildung 52:	Veränderung der PSO-Werte (µg/m ³) von 2019 bis 2030 über Deutschland und jedem Bundesland sowie Veränderungen der Beiträge verschiedener NO _x -Quellen (LOTOS-EUROS)	101
Abbildung 53:	Veränderung der PSO-Werte (µg/m ³) von 2019 bis 2030 über Deutschland und jedem Bundesland sowie Veränderungen der Beiträge verschiedener NO _x -Quellen (WRF-Chem)	102
Abbildung 54:	Veränderung (2019 bis 2030) des Beitrags der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (LOTOS-EUROS).....	103
Abbildung 55:	Veränderung (2019 bis 2030) des Beitrags der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (WRF-Chem).....	103
Abbildung 56:	Veränderung des PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 und die Veränderungen der Beiträge verschiedener VOC-Quellen	105

Abbildung 57: Veränderung des PSO ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) über Deutschland und jedem Bundesland mit der Veränderung der Beiträge verschiedener VOC-Quellen106

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1:	Änderungen in den Emissionen von NO _x und NMVOC zwischen 2019 und 2030.....	42
Tabelle 2:	Modellevaluation für LOTOS-EUROS und WRF-Chem.....	75
Tabelle 3:	Beitrag (%) der NO _x -Emissionen in jedem Bundesland zum PSO in diesem Bundesland	90
Tabelle 4:	Beitrag (%) der NO _x -Emissionen jedes Bundeslandes zum PSO in diesem Bundesland als Prozentsatz des gesamten deutschen Beitrags zum PSO in diesem Bundesland	91

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Erläuterung
ALD	Aldehydische Kohlenstoffbindung
AOT40	Kumulierte Ozonbelastung über einem Schwellenwert von 40 ppb (80 µg/m ³)
CAMS	Copernicus Atmosphere Monitoring Service
CBM-IV	Carbon Bond Mechanism, vierte Version
HNO ₃	Salpetersäure
HO ₂	Hydroperoxid-Radikal
HTAP	Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution
BVOC	Biogene nicht-Methan flüchtige organische Verbindung
MDA8	Täglich höchster 8-Stunden Mittelwert
NMVOG	Nicht-Methan flüchtige organische Verbindungen
N ₂ O ₅	Distickstoffpentoxid
NO ₂	Stickstoffdioxid
NO _x	Stickstoffoxide
O ₃	Ozon
O _x	Odd Oxygen
OLE	Olefinische Kohlenstoffbindung
PAN	Peroxyacetylnitrat
PAR	Paraffin-Kohlenstoffbindung
PSO	Peak Season Ozonwert (Mittelwert aller MDA8 in den Monaten April bis September)
RMSE	Mittlerer quadratischer Fehler
RO ₂	Organische Peroxy-Radikale
UBA	Umweltbundesamt, Dessau
VOC	Flüchtige organische Verbindungen

Zusammenfassung

Ziel dieses Projekts war es, ein System zur Zuordnung von Ozonquellen für modelliertes Ozon zu seinen beiden Vorläufersubstanzen NO_x und VOCs für Deutschland einzusetzen und dessen Eignung für die Erstellung von Empfehlungen zur regionalen und sektoralen Emissionsminderung zu bewerten. Es wurden zwei regionale chemische Transportmodelle (CTM) verwendet: WRF-Chem (verwendet von RIFS Potsdam) und LOTOS-EUROS (entwickelt und verwendet von TNO). Das im WRF-Chem-Modell etablierte TOAST-System zur Quellenzuordnung (Butler et al., 2018) wurde erfolgreich im LOTOS-EUROS-Modell implementiert und demonstriert. Die Ergebnisse der Ozonquellenzuordnung mit LOTOS-EUROS stehen im Einklang mit dem aktuellen Verständnis der Chemie des bodennahen Ozons.

Troposphärisches Ozon ist nicht nur ein starkes Treibhausgas, sondern spielt auch eine zentrale Rolle in der Chemie und Selbstreinigung der Troposphäre (Crutzen, 1973; Monks et al., 2015). In hohen Konzentrationen in Bodennähe ist es schädlich für die menschliche Gesundheit (Haagen-Smit, 1952; Monks et al., 2015) und die Vegetation (Mills et al., 2018; Reich und Amundson, 1985). Ozon wird nicht nur durch Austausch mit der Stratosphäre in die Troposphäre transportiert, sondern kann auch durch chemische Reaktionen in der Troposphäre entstehen. Hierbei sind zwei chemisch unterschiedliche Vorläufer beteiligt: Stickoxide (zusammenfassend NO_x) und reaktive Kohlenstoffverbindungen, darunter Kohlenmonoxid und flüchtige organische Verbindungen (VOC) (Atkinson, 2000). VOCs lassen sich in das relativ langlebige Gas Methan und nicht methanhaltige flüchtige organische Verbindungen (NMVOCs) unterteilen. Die Vegetation ist eine wichtige Quelle für NMVOCs (auch biogene VOCs, BVOCs, genannt), insbesondere für das hochreaktive Isopren. Etwa die Hälfte aller Methanemissionen ist natürlichen Ursprungs. Die andere Hälfte ist auf anthropogene Aktivitäten zurückzuführen. Anthropogene Aktivitäten sind die Hauptquelle für NO_x , wobei der Straßenverkehr einen wesentlichen Beitrag leistet.

Die Konzentration eines Schadstoffs an einem bestimmten Ort wird durch eine Kombination aus lokalen Emissionen, regionaler Bildung und weiträumiger Verfrachtung, möglicherweise über interkontinentale Entfernungen, beeinflusst. Im Fall von Ozon stammt ein erheblicher Teil der Hintergrundkonzentration über Europa aus interkontinentalen Quellen (Butler et al., 2020).

Die Quellenzuordnung quantifiziert den Beitrag lokaler, regionaler und entfernter Quellen zu den beobachteten Schadstoffkonzentrationen. Das Verständnis der Emissionsquellen unter unterschiedlichen meteorologischen Bedingungen ist für die Entwicklung gezielter Emissionsminderungsstrategien von entscheidender Bedeutung. Während eine gewisse Quellenzuordnung ohne Modelle anhand chemischer Fingerabdrücke möglich ist, erfordern die meisten Fälle ein chemisches Transportmodell.

Die Quellenzuordnung in Modellstudien wird häufig mit einem Sensitivitätsansatz durchgeführt, bei dem mehrere Modellläufe durchgeführt werden. In jedem Modelllauf werden die Emissionen aus verschiedenen Regionen oder Sektoren systematisch um einen Standardbetrag (z. B. 15 %) reduziert. Der Beitrag jeder Region oder jedes Sektors wird dann aus der Veränderung der modellierten Konzentration im Vergleich zu einer Basissimulation abgeleitet, bei der alle Emissionen unverändert bleiben. Eine Alternative zum Sensitivitätsansatz für die Quellenzuordnung ist die Kennzeichnung (auch Tagging oder Labelling genannt). Bei dieser Methode wird eine Modellsimulation mit mehreren gekennzeichneten Schadstoffkopien durchgeführt, die jeweils einer bestimmten Quelle (Sektor oder Region) zugeordnet sind und dabei die gleichen physikalischen und chemischen Prozesse durchlaufen wie der tatsächliche Schadstoff. Im Gegensatz zur Sensitivitätsanalyse erfordert die Kennzeichnung nur eine Simulation für eine vollständige Quellenzuordnung anstelle mehrerer Modellläufe.

Insgesamt wurden für jedes Modell fünf Simulationen durchgeführt: drei mit NO_x-Kennzeichnung und zwei mit VOC-Kennzeichnung. Drei Simulationen wurden für den Zeitraum April bis September 2019 unter Verwendung der Emissionen für Deutschland aus GRETA und der Emissionen für das übrige Europa aus CAMS-REG durchgeführt. Die Randbedingungen stammen aus einem Lauf des globalen Modells CAM-chem (Nalam et al., 2025), das Ozon und andere Spezies enthält, und ebenso eine Kennzeichnung für Ozon verwendet. Von diesen drei Modellläufen für 2019 wird einer mit deutschen NO_x-Emissionen durchgeführt, die nach GNFR-Emissionssektoren gekennzeichnet sind, einer mit deutschen NO_x-Emissionen, die nach Bundesländern gekennzeichnet sind, und einer mit deutschen VOC-Emissionen, die entweder als anthropogen oder biogen gekennzeichnet sind. Darüber hinaus werden zwei Läufe mit Emissionsszenarien aus dem Jahr 2030 durchgeführt: einer mit NO_x-Emissionen, die nach GNFR-Sektoren gekennzeichnet sind, und der andere mit VOC-Emissionen, die entweder als anthropogen oder biogen gekennzeichnet sind.

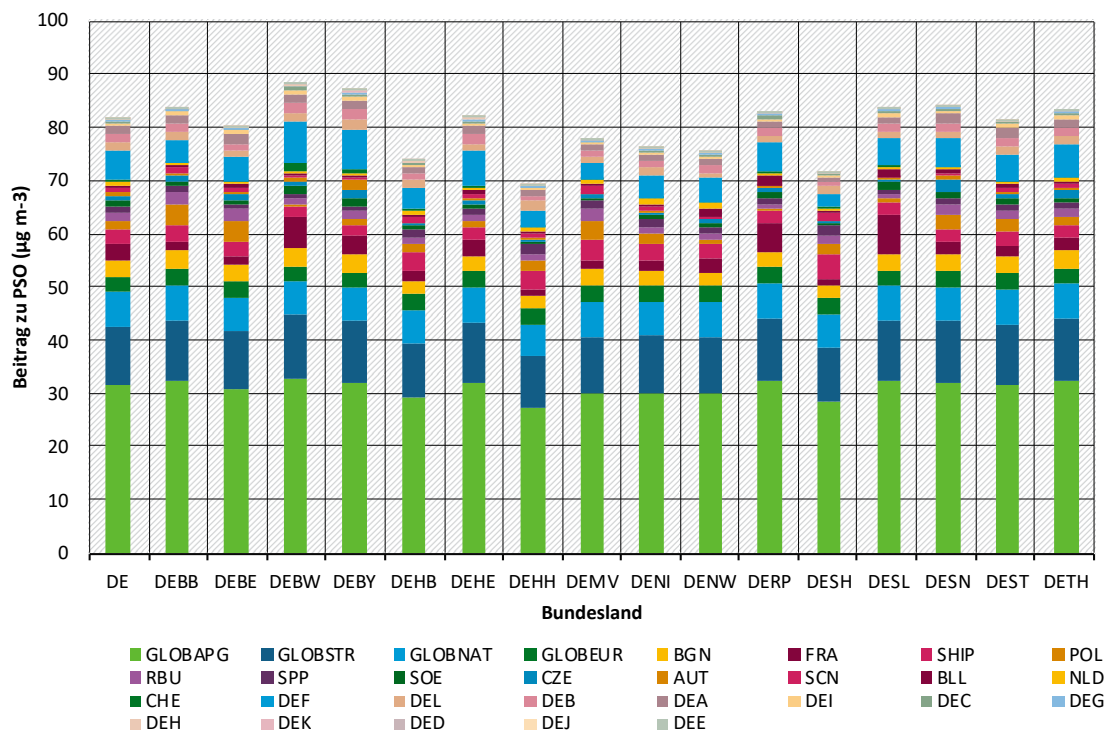
Der allgemeine Aufbau der Modellläufe wurde aus einem früheren Projekt „OzonEval“ (FKZ 3720 51 201 0) übernommen, allerdings wurde eine gröbere Modellauflösung (7 km statt 2 km) verwendet. Darüber hinaus wurden die Randbedingungen mit gekennzeichnetem Ozon aus interkontinentalen Quellen aus CAM-chem anstelle des ECMWF-IFS-Systems (das keine Ozonquellenzuordnung enthält) benutzt. Die CAM-chem-Simulationen lieferten Informationen über die Beiträge anthropogener und natürlicher Emissionen, über den Beitrag aus der Stratosphäre und über den Beitrag von Ozon, das aus europäischen Quellen stammt, aber wieder nach Europa zurückgeführt wird. Das globale CAM-chem-Modell unterschätzte den Ozonzufuss nach Europa im Vergleich zu den im OzonEval-Projekt verwendeten Randbedingungen, die aus dem ECMWF-IFS-System übernommen wurden.

Die Auswertung der WRF-Chem- und LOTOS-EUROS-Läufe in diesem Projekt ergab, dass die WRF-Chem-Simulationen unter einer überaktiven photochemischen Ozonbildung litten. Die quantitativen Ergebnisse für dieses Projekt stammen daher ausschließlich aus den LOTOS-EUROS-Simulationen.

Die Modellergebnisse zeigen einen starken Einfluss des interkontinentalen Ozontransports. Episoden mit erhöhten Ozonwerten im Juni, Ende Juli und Ende August stehen im Zusammenhang mit einer erhöhten Ozonproduktion aus verschiedenen europäischen und deutschen NO_x-Quellen. Der Einfluss dieser europäischen und deutschen NO_x-Quellen ist an Stationen im Landesinneren wie Waldhof stärker ausgeprägt als an Küstenstationen.

Der Peak-Season-Ozonwert, engl. *Peak Season Ozone* (PSO), ist definiert als der Mittelwert der täglich höchsten Ozon-Achtstundenmittelwerte (MDA8) für die sechs aufeinanderfolgenden Monate eines Jahres mit der höchsten monatlichen MDA8-Ozonkonzentration. In Europa ist dieser Zeitraum in der Regel von April bis September. Die WHO legt einen Richtwert von 60 µg/m³ zum Schutz der menschlichen Gesundheit (Langzeitbelastung) fest. Der PSO über Deutschland ist in Abbildung Z-1 zusammen mit dem Beitrag von Ozon aus globalen anthropogenen NO_x-Quellen, Ozon aus europäischen (nicht deutschen) NO_x-Quellen und deutschen NO_x-Quellen dargestellt. Der durchschnittliche modellierte PSO von LOTOS-EUROS über Deutschland für das Jahr 2019 beträgt etwa 80 µg/m³ und weist einen deutlichen räumlichen Gradienten auf, mit niedrigeren PSO-Werten im Nordwesten und höheren PSO-Werten in Süd- und Ostdeutschland.

Abbildung Z-1: Beitrag der NO_x-Emissionen zum PSO in Deutschland und in jedem Bundesland



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Der PSO in Deutschland und in allen Bundesländern überschreitet den WHO-Richtwert von 60 µg/m³ deutlich. Der größte Beitrag zum PSO über Deutschland stammt aus dem interkontinentalen Transport von Ozon, das aus anthropogenen NO_x-Emissionen außerhalb Europas entsteht. Zusammen mit dem interkontinentalen Transport von Ozon, das aus biogenen NO_x-Emissionen entsteht, und dem Zustrom von Ozon aus der Stratosphäre trägt der interkontinentale Transport von Ozon im Jahr 2019 etwa 50 µg/m³ zum PSO-Wert in Deutschland bei. Dieser Wert ist wahrscheinlich unterschätzt, weil die Modellrandbedingung aus dem CAM-chem Modell zu wenig Ozon enthält. Nur etwa 30 µg/m³ des PSO über Deutschland im Jahr 2019 sind auf europäische NO_x-Emissionen zurückzuführen. Davon entfallen etwa 10 µg/m³ auf deutsche Emissionen und die restlichen 20 µg/m³ auf nichtdeutsche europäische NO_x-Emissionen. Die südlichen Bundesländer weisen aufgrund der aktiveren Photochemie in Süddeutschland einen stärkeren Einfluss europäischer NO_x-Emissionen auf ihren PSO-Werten auf als die nördlichen Bundesländer.

Innerhalb Deutschlands tragen die NO_x-Emissionen des Straßenverkehrs etwa die Hälfte des gesamten deutschen Beitrags zum PSO über Deutschland im Jahr 2019 bei. Dies entspricht angesichts des Umfangs der Emissionen aus diesem Sektor den Erwartungen. Die nichtdeutschen europäischen NO_x-Quellen beeinflussen die PSO-Werte über Deutschland unterschiedlich, wobei NO_x aus französischen Quellen einen besonders hohen Einfluss im Westen und NO_x aus polnischen Quellen einen besonders hohen Einfluss im Osten Deutschlands haben. NO_x aus der internationalen Schifffahrt hat einen hohen Einfluss auf die PSO-Werte über den Küstenregionen im Norden Deutschlands, der sich weit ins Landesinnere ausdehnt.

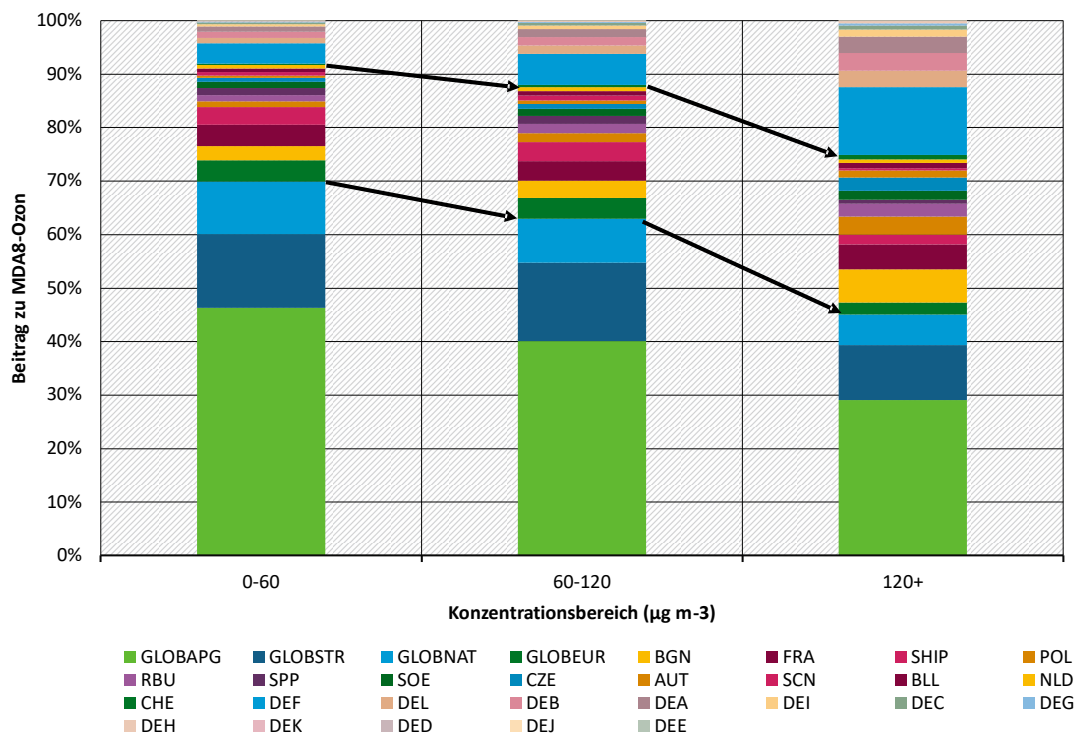
Um die deutschen Beiträge besser erklären zu können, wurde ein zusätzlicher Modelllauf durchgeführt, bei dem die NO_x-Emissionen über Deutschland nicht nach ihrem GNFR-Sektor, sondern nach dem Bundesland, in dem sie emittiert wurden, gekennzeichnet wurden. Jedes

Bundesland – mit Ausnahme der Stadtstaaten Hamburg, Bremen und Berlin – trägt zwischen 2 und 10 % zu seinem eigenen PSO bei, wobei die großen südlichen Bundesländer Bayern und Baden-Württemberg den größten Beitrag zu ihrem eigenen PSO leisten, was mit der geografischen Verteilung des deutschen Beitrags zum PSO übereinstimmt.

Auf der Grundlage der gemessenen Ozonkonzentrationen an allen Hintergrundmessstationen in Deutschland (städtisch, vorstädtisch und ländlich) wurden die täglichen MDA8-Konzentrationen in drei verschiedene Konzentrationsbereiche eingeteilt: 0 - 60 µg/m³, 60 - 120 µg/m³ und über 120 µg/m³ (Abbildung Z-2). Für jeden dieser Konzentrationsbereiche wurde die Quellenzuordnung aus den modellierten MDA8-Werten von LOTOS-EUROS für die jeweilige Kennzeichnung verwendet, um die Beiträge der verschiedenen NO_x-Quellen zu jedem Konzentrationsbereich abzuleiten. Bei gemessenen Konzentrationen in höheren Bereichen tragen nahegelegene NO_x-Quellen relativ stärker zu den modellierten Ozonkonzentrationen bei. Niedrigere Ozonkonzentrationen stehen in Zusammenhang mit einem relativ höheren Beitrag von Ozon aus dem interkontinentalen Transport.

Die Überschreitungen des Zielwerts von 120 µg/m³ für MDA8 im Jahr 2019 zeigen einen stärkeren Beitrag europäischer und deutscher NO_x-Quellen, wobei etwa 25 % der Ozonkonzentration an Tagen mit Überschreitung des MDA8 auf anthropogene NO_x-Emissionen in Deutschland (vor allem Straßenverkehr) zurückzuführen sind, etwa 30 % auf anthropogene und biogene NO_x-Emissionen aus Europa und die restlichen 45 % auf den interkontinentalen Transport von Ozon.

Abbildung Z-2: Beitrag der NO_x-Emissionen nach GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen



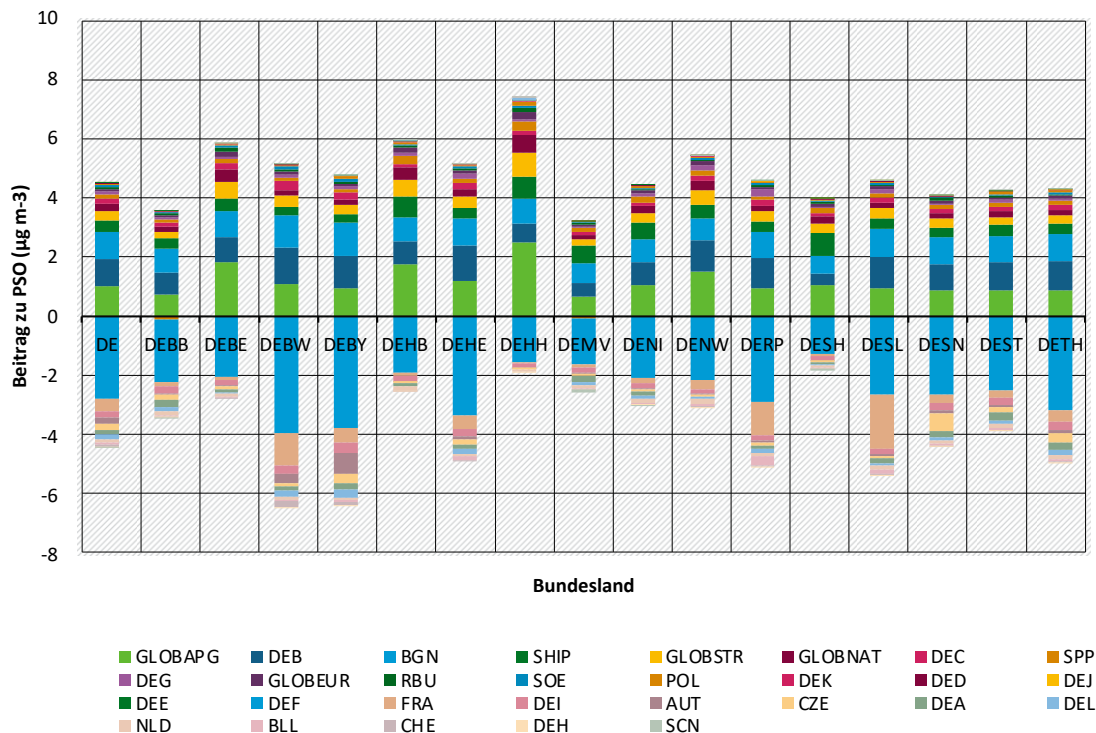
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Für das Jahr 2030 wird in Deutschland, wie in vielen anderen europäischen Ländern, eine erhebliche Verringerung der NO_x-Emissionen gegenüber 2019 erwartet. Die gesamten NO_x-

Emissionen in Deutschland werden bis 2030 um etwa 50 % reduziert, wobei die Emissionen des Straßenverkehrs (GNFR F) besonders stark zurückgehen werden (um etwa 75 %). Einige andere Sektoren, insbesondere Industrieemissionen (GNFR B), werden bis 2030 im Vergleich zu 2019 nicht wesentlich reduziert. Die NMVOC-Emissionen bleiben 2030 im Vergleich zu 2019 relativ unverändert. Die Modellrandbedingungen für 2030 blieben dieselben wie für 2019, was bedeutet, dass mögliche Auswirkungen veränderter Emissionen in anderen Regionen der Welt in dieser Studie nicht berücksichtigt wurden. Ebenso wurden die Modellläufe mit den meteorologischen Daten von 2019 als Eingangsdaten durchgeführt, sodass in dem Modelllauf für 2030 keine Auswirkungen des Klimawandels auf den weiträumigen Transport von Ozon oder auf die meteorologischen Bedingungen, die die lokale Ozonbildung begünstigen, berücksichtigt wurden.

Im Vergleich zu 2019 sind die PSO-Werte im Jahr 2030 in Ballungsräumen und über weiten Teilen Nordwestdeutschlands erhöht und über Süddeutschland verringert (Abbildung Z-3). Basierend auf den räumlichen Mustern der Veränderung des Beitrags deutscher und nicht deutscher NO_x-Quellen lassen sich diese Veränderungen mit einer Verringerung der Titration des Hintergrundozons über Nordwestdeutschland und einer Verringerung der lokalen photochemischen Ozonproduktion über Süddeutschland erklären. Der Beitrag des globalen Hintergrundozons zum PSO über Deutschland steigt wahrscheinlich aufgrund einer geringeren Titration überall in Deutschland an. Alle diese Veränderungen sind auf die Verringerung der NO_x-Emissionen im Jahr 2030 gegenüber 2019 zurückzuführen.

Abbildung Z-3: Veränderung der PSO-Werte (µg/m³) von 2019 bis 2030 über Deutschland und jedem Bundesland sowie Veränderungen der Beiträge aus verschiedenen NO_x-Quellen



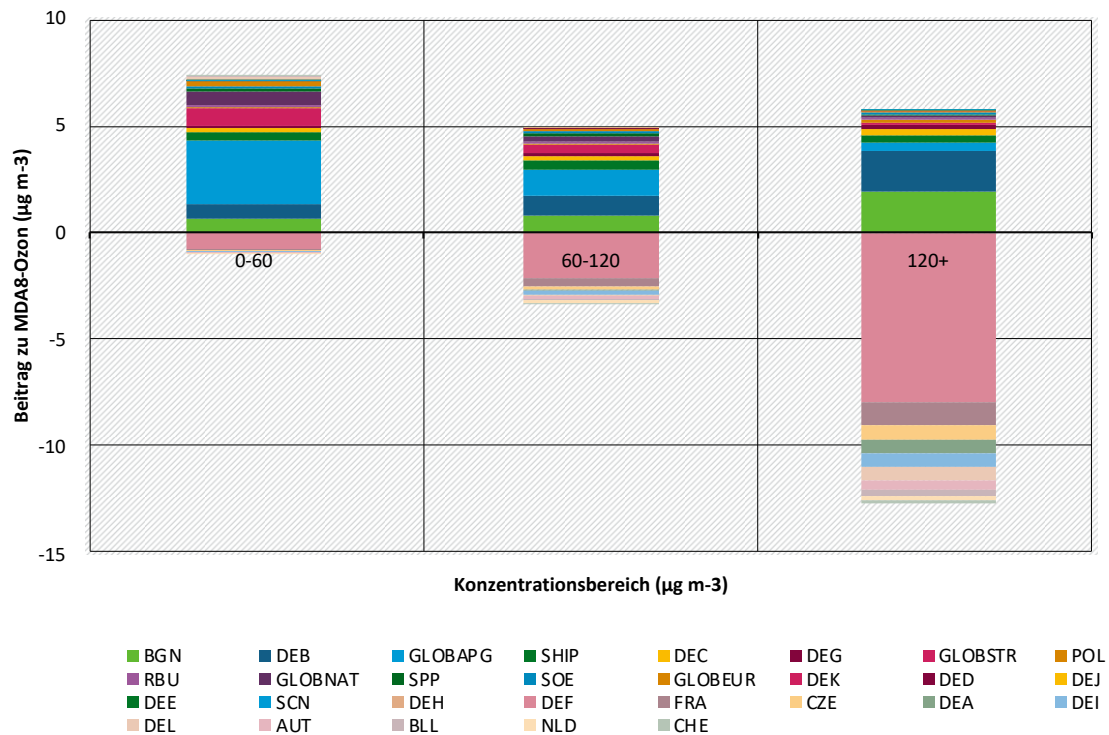
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Für Deutschland insgesamt bleiben die PSO-Werte im Jahr 2030 gegenüber 2019 nahezu unverändert. Der Beitrag der NO_x-Emissionen aus dem Straßenverkehr (GNFR F) sinkt

bundesweit um mehr als $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon, wobei die Reduktionen in anderen deutschen Emissionssektoren und die Beiträge aus Nachbarländern geringer ausfallen. Stärkere Ozonreduktionen aufgrund der Verringerung der NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs wurden in den südlichen Bundesländern modelliert. Diese Reduktionen werden fast vollständig durch erhöhte Beiträge des Hintergrundozons aufgrund geringerer Titration und einer erhöhten Ozonproduktion aus unveränderten NO_x -Quellen – wie biogenen NO_x -Emissionen und industriellen NO_x -Emissionen (GNFR B) – ausgeglichen. In den nördlichen Bundesländern, in denen die lokale Ozonproduktion in 2019 nachweislich geringer war, trägt die Verringerung der NO_x -Emissionen aus dem Straßenverkehr in 2030 zu einem geringeren Rückgang des Ozons bei. Die Veränderung des PSO in diesen nördlichen Bundesländern ist eher auf eine Verringerung der Titration zurückzuführen, wodurch der Beitrag der Hintergrundquellen zum PSO zunimmt.

Die Veränderungen der MDA8-Ozonkonzentration von 2019 bis 2030 in den drei Konzentrationsbereichen, die auf unterschiedliche NO_x -Quellen aus den LOTOS-EUROS-Modellläufen zurückzuführen sind, sind in Abbildung Z-4 dargestellt. Die Einteilung der Stationen und MDA8-Werte in diesen Konzentrationsbereichen entspricht der in Abbildung Z-2. Die modellierten MDA8-Werte an den für Abbildung Z-2 anhand von Messwerten ausgewählten Tagen und Stationen steigt im Bereich von 0 bis $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ um etwa $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was in erster Linie auf eine verringerte Titration des globalen Hintergrundozons zurückzuführen ist. Die MDA8-Werte im Bereich von 60 bis $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ steigen leicht um etwa $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was auf einen geringeren Beitrag des NO_x -Ausstoßes des Straßenverkehrs zurückzuführen ist, der durch einen höheren Beitrag anderer Sektoren ausgeglichen wird. MDA8-Ozon über $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wird um etwa $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ reduziert, was auf einen Rückgang des Beitrags von NO_x aus dem Straßenverkehr und geringerer NO_x -Emissionen in den Nachbarländern (Rückgang um etwa $13 \mu\text{g}/\text{m}^3$) zurückzuführen ist. Dieser wird teilweise durch eine erhöhte Ozonproduktion aus unveränderten NO_x -Emissionen, beispielsweise aus Böden und der Industrie (Anstieg um etwa $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$), ausgeglichen. Diese Effekte zeigen deutlich das nichtlineare Verhalten der Ozonbildung und die sich ändernden Lebensdauern und Bildungseffizienzen der beteiligten Spezies.

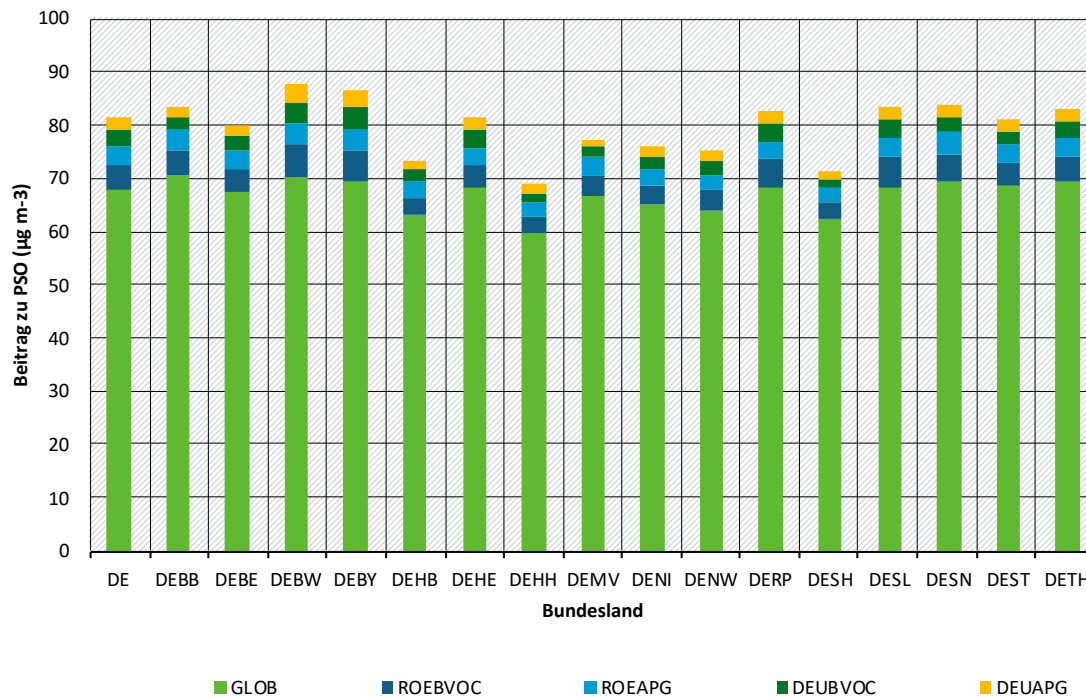
Abbildung Z-4: Veränderung (2019 bis 2030) des Beitrags der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Der Beitrag verschiedener VOC-Quellen zum PSO in Deutschland und in jedem Bundesland im Jahr 2019 ist in Abbildung Z-5 dargestellt. Im Vergleich zum Beitrag verschiedener NO_x-Quellen (Abbildung Z-1) ist der Beitrag des Ferntransports wesentlich höher, wenn Ozon den VOC-Vorläufern zugeordnet wird. Der Beitrag der in Europa emittierten VOC zum PSO in Deutschland ist wesentlich geringer. Diese Unterschiede sind auf den Transport reaktiver VOC in die Modelldomäne durch die vom globalen Modell gelieferten Randbedingungen zurückzuführen, vor allem in Form von Methan, Kohlenmonoxid und anderen langlebigen NMVOC. Es wurde quantitativ nachgewiesen, dass Methan und CO aus globalen Quellen den größten Anteil an der Ozonbildung in der europäischen Modelldomäne haben und anschließend den globalen anthropogenen VOC und damit den Randbedingungen zugeschrieben werden.

Abbildung Z-5: PSO ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) für Deutschland und jedes Bundesland mit Beiträgen verschiedener VOC-Quellen



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Von den in Europa emittierten VOC tragen biogene VOC (BVOC, Rest of Europe biogene VOC, ROEBVOC, und deutsche biogene VOC, DEUBVOC) stärker zum PSO über Deutschland bei als anthropogene VOC (Rest of Europe anthropogene VOC, ROEAPG, und deutsche anthropogene VOC, DEUAPG). Die deutschen AVOC-Emissionen (DEUAPG, deutsche anthropogene VOC) tragen nur etwa $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zum deutschen PSO bei (Abbildung Z-5), verglichen mit den anthropogenen NO_x -Emissionen in Deutschland, die etwa $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zum deutschen PSO beitragen (Abbildung Z-2). Der Unterschied zwischen diesen beiden Werten (etwa $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ PSO) ist wahrscheinlich auf die Ozonproduktion aus einer Kombination von anthropogenem NO_x aus Deutschland und VOC aus anderen Quellen zurückzuführen, darunter auf deutsche und europäische BVOC, europäische AVOC und weiträumig transportierte VOC.

Für die südlichen Bundesländer, in denen die lokale photochemische Ozonbildung stärker ist, wird der modellierte Rückgang durch VOC-Kennzeichnung auf europäisches AVOC und BVOC zurückgeführt. Da sich diese Emissionen zwischen 2019 und 2030 kaum verändern werden, lassen sich die hier vorgestellten Ergebnisse zusammenfassend so interpretieren, dass der Rückgang des PSO über den südlichen Gebieten Deutschlands in erster Linie auf die Verringerung der NO_x -Emissionen zurückzuführen ist.

Insgesamt zeigen die Ergebnisse dieser Studie, dass die Zuordnung von Ozonquellen mit Kennzeichnung ein nützliches Modellierungsinstrument ist, das als Grundlage für die Ozonminderungspolitik dienen kann. NO_x -Emissionen sind nachweislich ein stärkerer Treiber für Ozon und dessen Minderungspotenzial als VOC-Emissionen. Die Bedeutung der Reduzierung der NO_x -Emissionen für die Verringerung der Ozon-Spitzenkonzentrationen wird bestätigt, während die ausgleichenden Effekte einer verringerten Ozontitration unter niedrigeren NO_x -Bedingungen ebenfalls deutlich erkennbar sind. Die erhöhte Ozonproduktivität der

verbleibenden NO_x-Quellen unter niedrigeren NO_x-Bedingungen kann quantifiziert werden. Die Bedeutung des weiträumigen, grenzüberschreitenden Transports von Ozon wird ebenfalls quantifiziert. Die Ozonminderung in Deutschland sollte sich auf die Reduzierung der verbleibenden NO_x-Emissionen konzentrieren, über Landesgrenzen hinweg koordiniert werden und auch internationale Maßnahmen umfassen, um sicherzustellen, dass die NO_x-Emissionen in anderen europäischen Ländern und in der gesamten nördlichen Hemisphäre weiter sinken. Obwohl in dieser Studie nicht direkt quantifiziert, wird auch die Rolle von Methan als Ozonvorläufer stark angedeutet. Das internationale Engagement Deutschlands könnte sich auch auf die Reduzierung dieses wichtigen Ozonvorläufers konzentrieren.

Summary

The aim of this project was to implement a system for assigning ozone sources for modelled ozone to its two precursors, NO_x and VOCs, for Germany and to evaluate its suitability for making recommendations for regional and sectoral emission reductions. Two regional chemical transport models (CTMs) were used: WRF-Chem (used by RIFS Potsdam) and LOTOS-EUROS (developed and used by TNO). The TOAST source attribution system established in the WRF-Chem model (Butler et al., 2018) was successfully implemented and demonstrated in the LOTOS-EUROS model. The results of ozone source attribution with LOTOS-EUROS are consistent with the current understanding of ground-level ozone chemistry.

Tropospheric ozone is not only a potent greenhouse gas, but also plays a central role in the chemistry and self-cleaning of the troposphere (Crutzen, 1973; Monks et al., 2015). In high concentrations near the ground, it is harmful to human health (Haagen-Smit, 1952; Monks et al., 2015) and vegetation (Mills et al., 2018; Reich and Amundson, 1985). Ozone is not only transported into the troposphere through exchange with the stratosphere but can also be produced through chemical reactions in the troposphere. Two chemically different precursors are involved in this process: nitrogen oxides (collectively referred to as NO_x) and reactive carbon compounds, including carbon monoxide and volatile organic compounds (VOCs) (Atkinson, 2000). VOCs can be divided into the relatively long-lived gas methane and non-methane volatile organic compounds (NMVOCs). Vegetation is an important source of NMVOCs (also known as biogenic VOCs, BVOCs), particularly the highly reactive isoprene. About half of all methane emissions are of natural origin. The other half is attributable to anthropogenic activities. Anthropogenic activities are the main source of NO_x with road traffic making a significant contribution.

The concentration of a pollutant at a given location is influenced by a combination of local emissions, regional formation and long-range transport, possibly over intercontinental distances. In the case of ozone, a significant proportion of the background concentration over Europe originates from intercontinental sources (Butler et al., 2020).

Source apportionment quantifies the contribution of local, regional and distant sources to the observed pollutant concentrations. Understanding emission sources under different meteorological conditions is crucial for the development of targeted emission reduction strategies. While some source apportionment is possible without models using chemical fingerprints, most cases require a chemical transport model.

Source apportionment in model studies is often performed using a sensitivity approach, in which multiple model runs are performed. In each model run, emissions from different regions or sectors are systematically reduced by a standard amount (e.g., 15 %). The contribution of each region or sector is then derived from the change in the modelled concentration compared to a baseline simulation in which all emissions remain unchanged. An alternative to the sensitivity approach for source attribution is tagging (also known as labelling). In this method, a model simulation is performed with several tagged pollutant copies, each assigned to a specific source (sector or region) and undergoing the same physical and chemical processes as the actual pollutant. In contrast to sensitivity analysis, tagging requires only one simulation for complete source attribution instead of multiple model runs.

A total of five simulations were performed for each model: three with NO_x tagging and two with VOC tagging. Three simulations were carried out for the period April to September 2019 using emissions for Germany from GRETA and emissions for the rest of Europe from CAMS-REG. The boundary conditions are taken from a run of the global model CAM-chem (Nalam et al., 2025),

which includes ozone and other species and also includes tagging for ozone. Of these three model runs for 2019, one is performed with German NO_x emissions tagged according to GNFR emission sectors, one with German NO_x emissions tagged according to federal states, and the other with German VOC emissions tagged as either anthropogenic or biogenic. In addition, two runs are performed with emission scenarios from 2030: one with NO_x emissions tagged according to GNFR sectors and the other with VOC emissions tagged as either anthropogenic or biogenic.

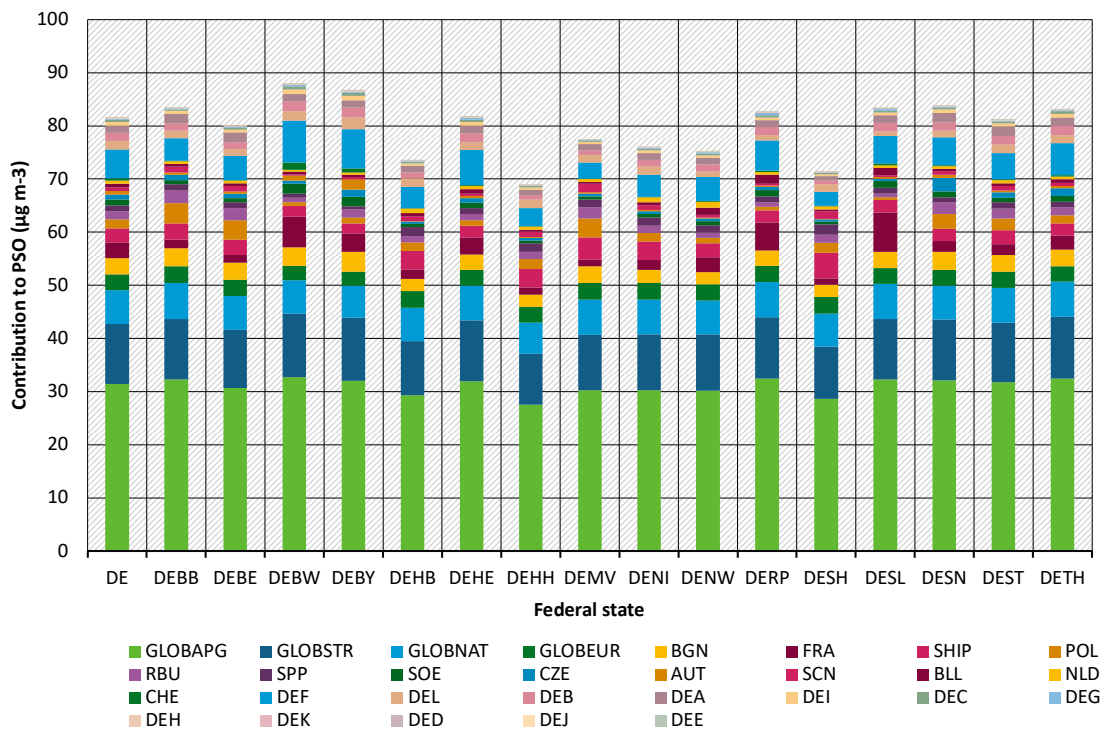
The general structure of the model runs was taken from an earlier project, "OzonEval" (FKZ 3720 51 201 0), but a coarser model resolution (7 km instead of 2 km) was used. In addition, boundary conditions with tagged ozone from intercontinental sources from CAM-chem were used instead of the ECMWF-IFS system (which does not include ozone source allocation). The CAM-chem simulations provided information on the contributions of anthropogenic and natural emissions, the contribution from the stratosphere, and the contribution of ozone originating from European sources but returning to Europe. The global CAM-chem model underestimated the ozone influx to Europe compared to the boundary conditions used in the OzonEval project, which were taken from the ECMWF-IFS system.

The evaluation of the WRF-Chem and LOTOS-EUROS runs in this project showed that the WRF-Chem simulations suffered from overactive photochemical ozone formation. The quantitative results for this project therefore come exclusively from the LOTOS-EUROS simulations.

The model results show a strong influence of intercontinental ozone transport. Episodes with elevated ozone levels in June, late July and late August are associated with increased ozone production from various European and German NO_x sources. The influence of these European and German NO_x sources is more pronounced at inland stations such as Waldhof than at coastal stations.

Peak Season Ozone (PSO) is defined as the average of the daily maximum eight-hour ozone averages (MDA8) for the six consecutive months of a year with the highest monthly MDA8 ozone concentration. In Europe, this period is usually from April to September. The WHO has set a guideline value of 60 µg/m³ for the protection of human health (long-term exposure). The PSO over Germany is shown in Figure 1, together with the contribution of ozone from global anthropogenic NO_x sources, ozone from European (non-German) NO_x sources and German NO_x sources. The average modelled PSO from LOTOS-EUROS over Germany for 2019 is approximately 80 µg/m³ and shows a clear spatial gradient, with lower PSO values in the north-west and higher PSO values in southern and eastern Germany.

Figure 1: Contribution of NO_x emissions to PSO in Germany and in each federal state



Source: own illustration (RIFS)

PSO in Germany and in all federal states significantly exceeds the WHO guideline value of 60 µg/m³. The largest contribution to PSO over Germany comes from the intercontinental transport of ozone, which is produced from anthropogenic NO_x emissions outside Europe. Together with the intercontinental transport of ozone resulting from biogenic NO_x emissions and the influx of ozone from the stratosphere, the intercontinental transport of ozone contributes approximately 50 µg/m³ to the PSO value in Germany in 2019. This value is probably underestimated because the boundary conditions from the CAM-chem model contain too little ozone. Only about 30 µg/m³ of the PSO over Germany in 2019 can be attributed to European NO_x emissions. Of this, about 10 µg/m³ is attributable to German emissions and the remaining 20 µg/m³ to non-German European NO_x emissions. Due to the more active photochemistry in southern Germany, the southern federal states show a stronger influence of European NO_x emissions on their PSO values than the northern federal states.

Within Germany, NO_x emissions from road traffic account for around half of Germany's total contribution to the PSO over Germany in 2019. Given the volume of emissions from this sector, this is in line with expectations. Non-German European NO_x sources have varying effects on PSO values over Germany, with NO_x from French sources having a particularly high influence in the west and NO_x from Polish sources having a particularly high influence in the east of Germany. NO_x from international shipping has a high influence on PSO values over the coastal regions in northern Germany, extending far inland.

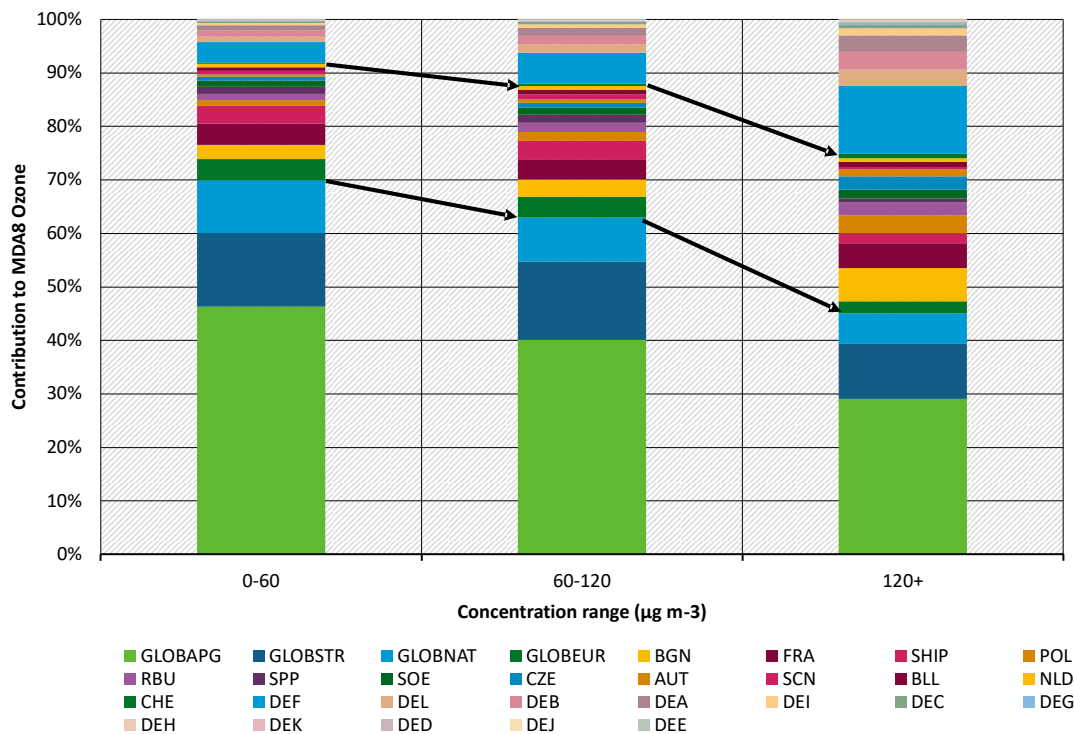
In order to better explain the German contributions, an additional model run was carried out in which NO_x emissions over Germany were tagged not according to their GNFR sector, but according to the federal state in which they were emitted. Each federal state – with the exception of the city states of Hamburg, Bremen and Berlin – contributes between 2 and 10 % to its own PSO, with the large southern federal states of Bavaria and Baden-Württemberg making the

largest contribution to their own PSO, which is consistent with the geographical distribution of the German contribution to the PSO.

Based on the ozone concentrations measured at all background measuring stations in Germany (urban, suburban and rural), the daily MDA8 concentrations were divided into three different concentration ranges: 0 - 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 60 - 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and above 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Figure 2). For each of these concentration ranges, the source allocation from the modelled MDA8 values of LOTOS-EUROS for the respective tagging was used to derive the contributions of the various NO_x sources to each concentration range. At measured concentrations in higher ranges, nearby NO_x sources contribute relatively more to the modelled ozone concentrations. Lower ozone concentrations are associated with a relatively higher contribution of ozone from intercontinental transport.

The exceedances of the target value of 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ for MDA8 in 2019 show a stronger contribution from European and German NO_x sources, with approximately 25 % of the ozone concentration on days exceeding the MDA8 attributable to anthropogenic NO_x emissions in Germany (primarily road traffic), around 30 % to anthropogenic and biogenic NO_x emissions from Europe, and the remaining 45 % to intercontinental transport of ozone.

Figure 2: Contribution of NO_x emissions by GNFR sectors within Germany to MDA8 ozone in various measured concentration ranges



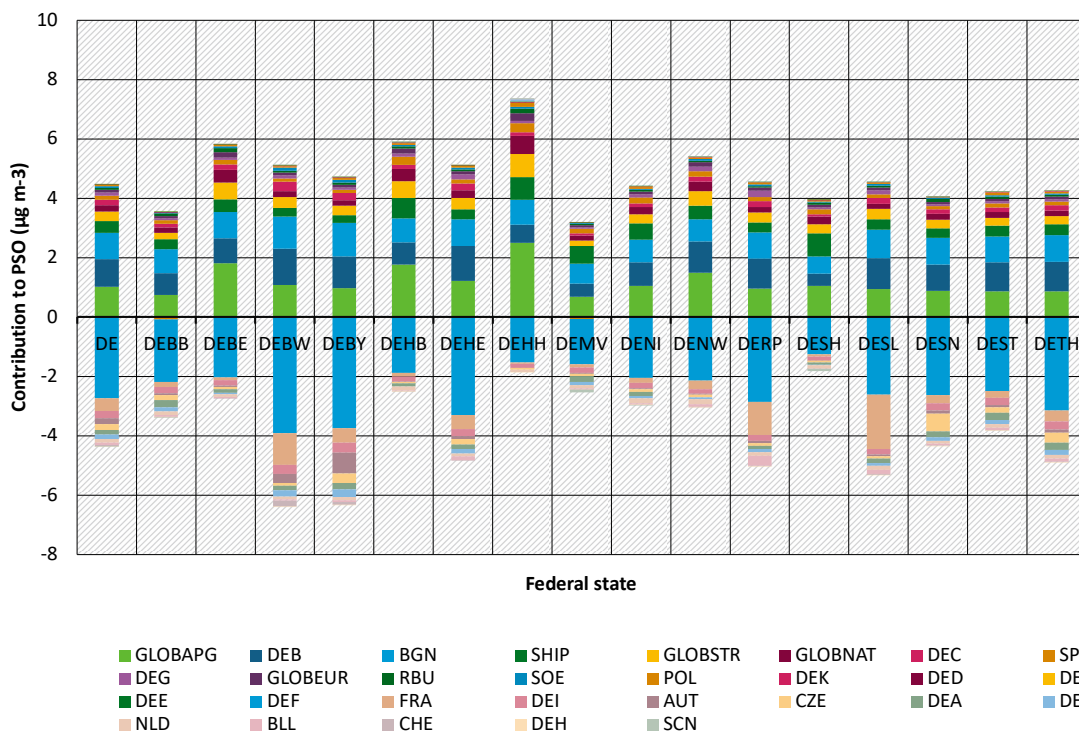
Source: own illustration (RIFS)

In Germany, as in many other European countries, a significant reduction in NO_x emissions is expected by 2030 compared to 2019. Total NO_x emissions in Germany will be reduced by around 50 % by 2030, with road transport emissions (GNFR F) falling particularly sharply (by around 75 %). Some other sectors, in particular industrial emissions (GNFR B), will not be significantly reduced by 2030 compared to 2019. NMVOC emissions will remain relatively unchanged in 2030 compared to 2019. The model boundary conditions for 2030 remained the same as for 2019,

which means that possible effects of changed emissions in other regions of the world were not taken into account in this study. Similarly, the model runs were performed using meteorological data from 2019 as input data, so that the model run for 2030 did not take into account any effects of climate change on the long-range transport of ozone or on the meteorological conditions that favour local ozone formation.

Compared to 2019, PSO values in 2030 will be higher in urban areas and across large parts of north-western Germany and lower across southern Germany (Figure 3). Based on the spatial patterns of change in the contribution of German and non-German NO_x sources, these changes can be explained by a reduction in the titration of background ozone over north-western Germany and a reduction in local photochemical ozone production over southern Germany. The contribution of global background ozone to PSO over Germany is likely to increase due to lower titration throughout Germany. All these changes are attributable to the reduction in NO_x emissions in 2030 compared to 2019.

Figure 3: Change in PSO values ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) from 2019 to 2030 over Germany and each federal state, as well as changes in contributions from various NO_x sources



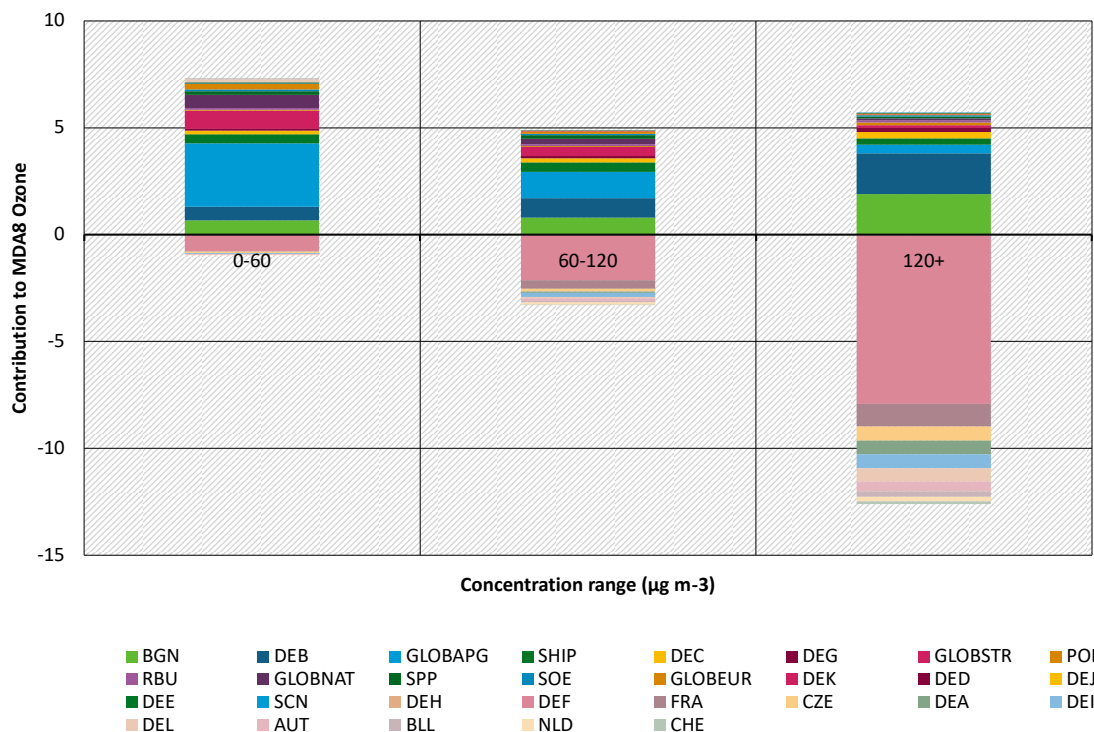
Source: own illustration (RIFS)

For Germany as a whole, PSO values in 2030 will remain virtually unchanged compared to 2019. The contribution of NO_x emissions from road traffic (GNFR F) will decrease by more than 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ozone nationwide, with reductions in other German emission sectors and contributions from neighbouring countries being smaller. Greater ozone reductions due to the reduction in NO_x emissions from road traffic were modelled in the southern federal states. These reductions are almost completely offset by increased contributions from background ozone due to lower titration and increased ozone production from unchanged NO_x sources, such as biogenic NO_x emissions and industrial NO_x emissions (GNFR B). In the northern federal states, where local ozone production was demonstrably lower in 2019, the reduction in NO_x emissions from road traffic in 2030 will contribute to a smaller decrease in ozone. The change in PSO in these

northern federal states is more likely to be due to a reduction in titration, which increases the contribution of background sources to PSO.

The changes in MDA8 ozone concentration from 2019 to 2030 in the three concentration ranges attributable to different NO_x sources from the LOTOS-EUROS model runs are shown in Figure 4. The classification of stations and MDA8 values in these concentration ranges corresponds to that in Figure 2. The modelled MDA8 values on the days and at the stations selected for Figure 2 based on measured values increase by about 6 µg/m³ in the range from 0 to 60 µg/m³, which is primarily due to reduced titration of global background ozone. The MDA8 values in the range from 60 to 120 µg/m³ increase slightly by about 1 µg/m³, which is due to a lower contribution from NO_x emissions from road traffic, offset by a higher contribution from other sectors. MDA8 ozone above 120 µg/m³ is reduced by about 7 µg/m³, which is due to a decrease in the contribution of NO_x from road traffic and lower NO_x emissions in neighbouring countries (decrease of about 13 µg/m³). This is partially offset by increased ozone production from unchanged NO_x emissions, for example from soils and industry (increase of about 6 µg/m³). These effects clearly demonstrate the non-linear behaviour of ozone formation and the changing lifetimes and formation efficiencies of the species involved.

Figure 4: Change (2019 to 2030) in the contribution of GNFR sectors within Germany to MDA8 ozone in various measured concentration ranges

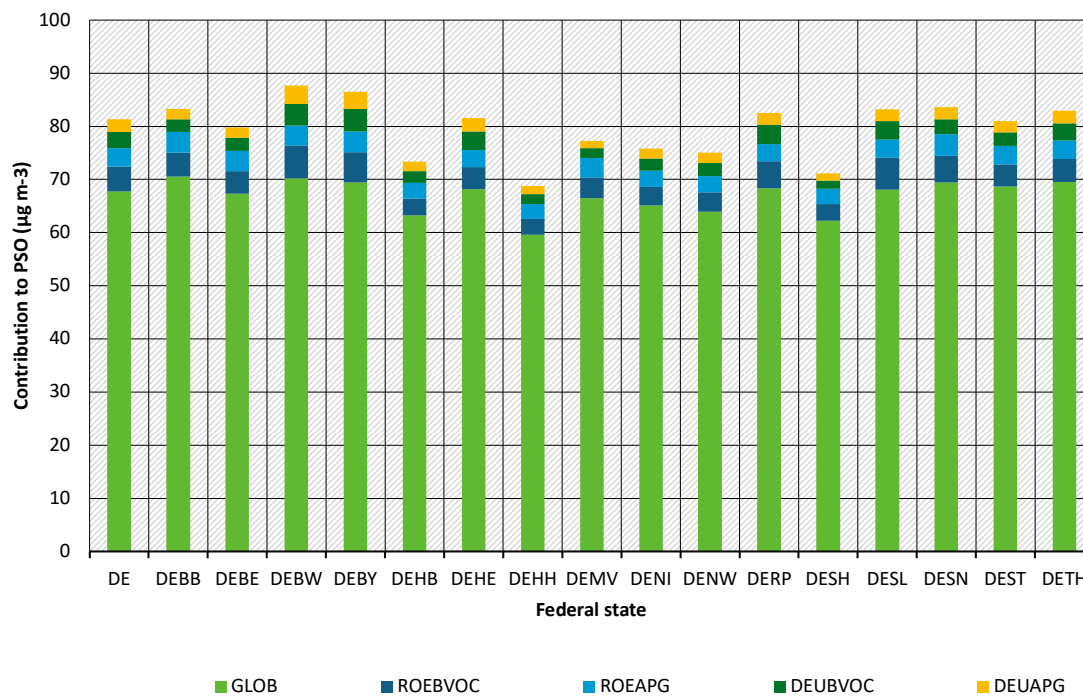


Source: own illustration (RIFS)

The contribution of various VOC sources to PSO in Germany and in each federal state in 2019 is shown in Figure 5. Compared to the contribution of various NO_x sources (Figure 1), the contribution of long-range transport is significantly higher when ozone is attributed to VOC precursors. The contribution of VOCs emitted in Europe to PSO in Germany is significantly lower. These differences are due to the transport of reactive VOCs into the model domain by the boundary conditions provided by the global model, primarily in the form of methane, carbon monoxide and other long-lived NMVOCs. It has been quantitatively demonstrated that methane

and CO from global sources contribute most to ozone formation in the European model domain and are subsequently attributed to global anthropogenic VOCs and thus to the boundary conditions.

Figure 5: PSO ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) for Germany and each federal state with contributions from various VOC sources



Source: own illustration (RIFS)

Of the VOCs emitted in Europe, biogenic VOCs (BVOC, Rest of Europe biogenic VOC, ROEBVOC, and German biogenic VOC, DEUBVOC) contribute more to the PSO over Germany than anthropogenic VOCs (Rest of Europe anthropogenic VOC, ROEAPG, and German anthropogenic VOC, DEUAPG). German AVOC emissions (DEUAPG, German anthropogenic VOCs) contribute only about $2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ to German PSO (Figure 5), compared to anthropogenic NO_x emissions in Germany, which contribute about $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ to German PSO (Figure 2). The difference between these two values (approximately $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ PSO) is likely due to ozone production from a combination of anthropogenic NO_x from Germany and VOCs from other sources, including German and European BVOCs, European AVOCs and long-range transported VOCs.

For the southern federal states, where local photochemical ozone formation is stronger, the modelled decline is attributed to VOC tagging for European AVOC and BVOC. As these emissions will hardly change between 2019 and 2030, the results presented here can be summarised as indicating that the decline in PSO over the southern areas of Germany is primarily due to the reduction in NO_x emissions.

Overall, the results of this study show that the attribution of ozone sources with tagging is a useful modelling tool that can serve as a basis for ozone reduction policy. NO_x emissions have been shown to be a stronger driver of ozone and its reduction potential than VOC emissions. The importance of reducing NO_x emissions for reducing peak ozone concentrations is confirmed, while the compensatory effects of reduced ozone titration under lower NO_x conditions are also

clearly evident. The increased ozone productivity of the remaining NO_x sources under lower NO_x conditions can be quantified. The importance of long-range, transboundary transport of ozone is also quantified. Ozone reduction in Germany should focus on reducing remaining NO_x emissions, be coordinated at the federal level rather than at the level of individual federal states and also include international measures to ensure that NO_x emissions in other European countries and throughout the northern hemisphere continue to decline. Although not directly quantified in this study, the role of methane as an ozone precursor is also strongly suggested. Germany's international engagement could also focus on reducing this important ozone precursor.

1 Einführung

Troposphärisches Ozon ist nicht nur ein starkes Treibhausgas, sondern spielt auch eine zentrale Rolle in der Chemie und Selbstreinigung der Troposphäre (Crutzen, 1973; Monks et al., 2015). In hohen Konzentrationen in Bodennähe ist es schädlich für die menschliche Gesundheit (Haagen-Smit, 1952; Monks et al., 2015) und die Vegetation (Mills et al., 2018; Reich und Amundson, 1985). Ozon wird nicht nur durch Austausch mit der Stratosphäre in die Troposphäre transportiert, sondern kann auch durch chemische Reaktionen in der Troposphäre entstehen, an denen zwei chemisch unterschiedliche Vorläufer beteiligt sind: Stickoxide (zusammenfassend NO_x) und reaktive Kohlenstoffverbindungen, darunter Kohlenmonoxid und flüchtige organische Verbindungen (VOC) (Atkinson, 2000). VOCs lassen sich in das relativ langlebige Gas Methan und andere flüchtige organische Verbindungen (Nicht-Methan-VOCs, NMVOCs) unterteilen. Vegetation ist eine wichtige Quelle für NMVOCs (auch biogene VOCs, BVOCs, genannt), insbesondere für das hochreaktive Isopren. Etwa die Hälfte aller Methanemissionen ist natürlichen Ursprungs, die andere Hälfte ist auf anthropogene Aktivitäten zurückzuführen. Anthropogene Aktivitäten sind die Hauptquelle für NO_x , wobei der Straßenverkehr einen wesentlichen Beitrag leistet.

Die EU-Luftqualitätsrichtlinie (2008/50/EG) legt keinen verbindlichen Grenzwert für die Ozonkonzentration fest, sondern ein langfristiges Ziel und einen Zielwert für den Schutz der menschlichen Gesundheit auf der Grundlage von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für den täglich höchsten 8-Stunden-Mittelwert (MDA8). Überschreitungen dieses Zielwerts sind seit den 1990er Jahren aufgrund der deutlichen Verringerung der Emissionen von Ozonvorläufern seltener geworden, treten jedoch bei hohen Temperaturen immer noch häufig auf. Die EU-Luftqualitätsrichtlinie enthält auch einen Zielwert zum Schutz der Vegetation auf der Grundlage eines kumulativen Expositionswerts (AOT40), der in weiten Teilen der EU überschritten wird. Um die negativen Auswirkungen sowohl der akuten als auch der langfristigen Ozonbelastung zu verringern, sind Informationen über die Quellen der für diese Belastung verantwortlichen Vorläuferstoffe erforderlich.

Die Konzentration eines Schadstoffs an einem bestimmten Ort setzt sich aus lokalen Emissionen und dem Transport über große Entfernungen, möglicherweise über Kontinente hinweg, zusammen. Die Quellenzuordnung bezeichnet den Prozess der Quantifizierung des Beitrags lokaler und entfernter Quellen zur Schadstoffkonzentration, die an einem bestimmten Ort gemessen wird. Während eine gewisse Quellenzuordnung ohne Modell und mit Kenntnis der chemischen Fingerabdrücke einzelner Emissionsquellen möglich ist, erfordern die meisten Quellenzuordnungen in der Regel ein chemisches Transportmodell. Das Verständnis der lokalen und großräumigen Einflüsse auf die Luftverschmutzung, das die Quellenzuordnung liefert, ist nützlich für die Formulierung von Kontrollstrategien, die auf Emissionen aus bestimmten Sektoren oder Regionen abzielen.

Studien zur Quellenzuordnung verwenden häufig einen Sensitivitätsansatz, bei dem Simulationen mit Schadstoffemissionen aus bestimmten Regionen oder Sektoren um einen bestimmten Prozentsatz, in der Regel 20 %, reduziert werden. Durch die Durchführung mehrerer Sensitivitätssimulationen für jeden Schadstoff, jede Emissionsquelle und jeden Sektor und den anschließenden Vergleich dieser Sensitivitätssimulationen mit einer Kontrollsimulation, in der keine Emissionen verändert wurden, lassen sich die Reaktionen auf diese veränderten Emissionen in einer Reihe von Rezeptorregionen ableiten. Damit kann eine Quellen-Rezeptor-Matrix erstellt werden, die die Empfindlichkeit der Schadstoffkonzentrationen an einem bestimmten Ort gegenüber Emissionen an entfernten Orten darstellt. Ein Beispiel für die Ozonquellenzuordnung für Europa ist die Multimodellstudie HTAP2 (Jonson et al., 2018).

Eine Alternative zum Sensitivitätsansatz für die Quellenzuordnung ist die „Kennzeichnung“ (manchmal auch „Tagging“ oder „Labelling“ genannt). Bei diesem Ansatz werden Modellsimulationen verwendet, bei denen die Modelldarstellung der Schadstoffe mehrere Kopien umfasst, die jeweils mit einem eindeutigen Namen versehen sind, der sie einer bestimmten Quelle (Sektor oder Region) zuordnet, die jedoch im Modell denselben physikalischen und chemischen Prozessen unterliegen wie die „echten“ Schadstoffe. Bei der Verwendung von Kennzeichnung ist in der Regel nur eine Modellsimulation erforderlich, um eine vollständige Quellenzuordnung durchzuführen, im Vergleich zu mehreren Simulationen beim Sensitivitätsansatz. Ein Nachteil von Kennzeichnung gegenüber Sensitivitätsstudien besteht darin, dass Modelle dies ausdrücklich unterstützen müssen, während jedes beliebige Modell die für den Sensitivitätsansatz erforderlichen Sensitivitätssimulationen ohne Änderung seiner Konfiguration durchführen kann.

Kennzeichnungs- und Sensitivitätsansätze ergänzen sich in der Modellierung (Butler et al., 2020; Clappier et al., 2017; Mertens et al., 2020; Thunis et al., 2019). Während der Kennzeichnungsansatz Informationen über den Beitrag verschiedener Emissionsquellen zu einem bestimmten Schadstoff liefert, geben Sensitivitätsstudien Aufschluss über die Empfindlichkeit von Schadstoffen gegenüber Emissionsänderungen, einschließlich Änderungen der chemischen Lebensdauer von Schadstoffen als Reaktion auf Emissionsänderungen. In Abwesenheit nichtlinearer chemischer Wechselwirkungen führen diese beiden unterschiedlichen Ansätze zu denselben Ergebnissen, aber für troposphärisches Ozon, das starke nichtlineare Wechselwirkungen zwischen NO_x und reaktiven Kohlenstoffvorläufern aufweisen kann, können diese Ansätze manchmal zu sehr unterschiedlichen Ergebnissen führen (Grewe et al., 2010; Mertens et al., 2018). Da Strategien zur Verringerung der Luftverschmutzung eine gewisse Änderung der Emissionen beinhalten müssen, sind für politikrelevante atmosphärische Chemie-Modellierungen immer Sensitivitätsstudien erforderlich. Die Kennzeichnung kann jedoch eine wichtige Rolle dabei spielen, zu ermitteln, welche Emissionen reduziert werden müssen (Grewe et al., 2010). In Kombination mit Sensitivitätsstudien kann die Kennzeichnung zeigen, wie sich der Beitrag nicht reduzierter Quellen auf die Ozonkonzentrationen als Reaktion auf Minderungsmaßnahmen verändert (Butler et al., 2020; Mertens et al., 2018).

Da sowohl NO_x als auch reaktiver Kohlenstoff (im Folgenden synonym mit dem Begriff „VOC“ verwendet) an der chemischen Bildung von Ozon beteiligt sind, versuchen die meisten Kennzeichnungs-Systeme, die Ozonbildung diesen beiden Arten von Vorläufern zuzuordnen. Es wurden drei Ansätze für die gleichzeitige Zuordnung von Ozon zu NO_x und VOC verwendet: Bestimmung des chemischen Regimes mit Zuordnung zum limitierenden Vorläufer (entweder NO_x oder VOC); gleiche Zuordnung zu NO_x - und VOC-Vorläufern; und getrennte Zuordnung zu NO_x - und VOC-Vorläufern. In jedem Fall werden dem Modell zusätzliche Tracer hinzugefügt, die die Emissionen von NO_x - und VOC-Spezies verfolgen und in der Regel mit der Identität ihrer Quellsektoren (z. B. Verkehr, Industrie usw.) oder Quellregionen (z. B. Ostasien, Nordamerika usw.) gekennzeichnet sind.

Methoden, die Ozon anhand des chemischen Regimes seinen Vorläufern zuordnen, werden von Dunker et al. (2002) und Kwok et al. (2015) für die regionalen Modelle CAMx bzw. CMAQ beschrieben. In beiden Fällen bestimmt das Kennzeichnungs-Schema, ob die Ozonproduktion in jeder Modellgitterzelle in einem NO_x -limitierten oder einem VOC-limitierten chemischen Regime stattfindet, und ordnet die gesamte momentane Ozonproduktion dem begrenzenden Vorläufer zu, wobei gekennzeichnete Ozontracer proportional zu den relativen Konzentrationen der gekennzeichneten Vorläufer-Tracer in dieser Gitterzelle hinzugefügt werden. Gekennzeichnete Ozontracer werden entsprechend der modellierten momentanen chemischen Verlustrate von

Ozon chemisch zerstört. Das chemische Regime wird in der Regel anhand des Indikatorverhältnisses $P(\text{H}_2\text{O}_2) / P(\text{HNO}_3)$ bestimmt, dem Verhältnis zwischen den Produktionsraten von Wasserstoffperoxid und Salpetersäure. Gemäß Sillman (1995) ist das chemische Regime NO_x - oder VOC-limitiert, wenn das Verhältnis über oder unter 0,35 liegt. Dieser Ansatz vereinfacht die hochkomplexe Chemie der Ozonbildung, bei der es einen Übergangsbereich der Empfindlichkeit gegenüber NO_x - und VOC-Emissionen gibt.

Ein alternativer Kennzeichnungsansatz, der NO_x und reaktiven Kohlenstoffvorläufer das gleiche Gewicht beimisst, wird von Grewe et al. (2010) und Grewe et al. (2017) vorgestellt. In ihrem Schema wird die Produktionsrate der gekennzeichneten Ozon-Tracer explizit anhand der Raten der zugrunde liegenden chemischen Reaktionen, die Ozon produzieren, und nicht anhand der momentanen Gesamt-Ozonproduktionsrate bestimmt. In ihrem Schema wird gekennzeichnetes Ozon durch Reaktionen zwischen gekennzeichnetem NO und gekennzeichneten Peroxyradikalen erzeugt, und die letztendlich entstehenden Ozonmoleküle erben ihre Kennzeichnungsidentitäten von beiden Vorläuferarten. Durch einen kombinatorischen Ansatz ermöglichen sie die Übertragung von Kennzeichnungsidentitäten zwischen NO_x - und VOC-Spezies, was zu gekennzeichneten Tracerkonzentrationen ohne physikalische Bedeutung führen kann. Beispielsweise werden in Abbildung 5(b) von Grewe et al. (2017) etwa 10 Tg CO-Produktion pro Jahr auf Blitze zurückgeführt, obwohl Blitze in ihrem Modell nur eine Quelle für NO_x sind und keinen Kohlenstoff produzieren. Ein solch unphysikalisches Ergebnis könnte in ihrem Kennzeichnungsschema nach der Zersetzung eines PAN-Moleküls (Peroxyacetylnitrat, ein organisches Nitrat) erzielt werden, das aufgrund eines Blitzschlags als aus NO_x stammend gekennzeichnet wurde.

1.1 Ozon-Kennzeichnung in WRF-Chem

Die von Butler et al. (2018) beschriebene TOAST-Methode (Tropospheric Ozone Attribution of Sources with Tagging) ist derzeit der einzige verfügbare Ansatz, der eine separate Zuordnung von troposphärischem Ozon zu seinen NO_x - und reaktiven Kohlenstoffvorläufern ermöglicht. Das TOAST-System verfolgt separat alle chemischen Produktions- und Verlustpfade von emittiertem NO_x und reaktiven Kohlenstoffvorläufern sowie die gesamte chemische Sauerstofffamilie, bestehend aus Ozon, NO_2 und anderen verwandten Verbindungen (Familie O_x). Der Hauptproduktionspfad für O_x in der Troposphäre ist die Reaktion von Peroxyradikalen (HO_2 und RO_2 , die beide bei der Oxidation von reaktivem Kohlenstoff entstehen) mit NO. Dabei entsteht NO_2 . Das so gebildete NO_2 produziert Ozon. Anstatt anhand des chemischen Regimes zu bestimmen, ob die gekennzeichnete Identität von NO_2 vom NO oder vom Peroxyradikal übernommen wird, werden zwei verschiedene Versionen von O_x verfolgt: eine, die die Identität des NO_x -Vorläufers beibehält, und eine andere, die die Identität des reaktiven Kohlenstoffvorläufers beibehält.

Das TOAST-System funktioniert durch Hinzufügen von Kennzeichnungen (manchmal auch als Tags oder Labels bezeichnet) zu emittierten Vorläufern (NO_x und VOC) in einem CTM. Die chemischen Umwandlungen dieser Vorläufer werden durch den chemischen Modellmechanismus verfolgt, wobei die ursprüngliche Identität der emittierten Vorläuferarten in allen Zwischenoxidationsprodukten erhalten bleibt. Immer wenn während einer chemischen Umwandlung ein Ozonmolekül entsteht, wird das Ozon mit der Identität des ursprünglich emittierten Vorläufers gekennzeichnet. Da fast die gesamte Ozonproduktion in der Troposphäre zwei Vorläufer benötigt (einen NO_x - und einen VOC-Vorläufer), muss die Kennzeichnung zweimal erfolgen, einmal für NO_x und einmal für VOC. Im TOAST-System wird CO zusammen mit VOC (einschließlich Methan) als „VOC-Ozonvorläufer“ betrachtet. Das TOAST-System ermöglicht auch die Kennzeichnung von Ozon, das in der Modellsimulation nicht durch NO_x -VOC-Chemie

entsteht (z. B. Ozon aus der Stratosphäre, aus Modellrandbedingungen oder aus geringfügigen chemischen Reaktionswegen). Das TOAST-System wird ausführlich beschrieben in Butler et al. (2018).

TOAST wurde im globalen CAM-Chem-Modell (Butler et al., 2018) und im regionalen WRF-Chem-Modell (Lupascu und Butler, 2019) implementiert, wobei die Ergebnisse des globalen CAM-Chem-Modells als Randbedingungen verwendet wurden. Butler et al. (2020) beschreiben eine detaillierte globale Quellenzuordnung für Ozon unter Verwendung von Vorläuferemissionen, die gemäß den HTAP2-Quellregionen gekennzeichnet sind. Zusammengefasst liefern diese Studien mehrere Erkenntnisse über die Herkunft des troposphärischen Ozons in Europa, die das etablierte Verständnis des europäischen Ozons aus traditionellen Sensitivitätsstudien ergänzen:

- ▶ Der Ferntransport von Ozon ist die wichtigste Quelle für bodennahes Ozon in Europa im Winter, wenn die Ozonkonzentrationen niedrig sind, aber auch im Frühjahr, wenn die Ozonkonzentrationen hoch sind.
- ▶ Im Sommer sind lokale europäische Quellen von NO_x und reaktivem Kohlenstoff aus biogenen Quellen für die Spitzenwerte des Ozongehalts in Europa am wichtigsten.
- ▶ Anthropogene NMVOC-Emissionen aus Europa sind für das Ozon in Europa deutlich weniger wichtig als BVOC-Emissionen.
- ▶ Methan trägt sowohl zum globalen Hintergrundozon über das ganze Jahr als auch zur lokalen Produktion im Sommer wesentlich bei.
- ▶ NO_x aus dem Seeverkehr in Küstennähe spielt möglicherweise eine wichtige Rolle bei der Ozonbildung in Europa.
- ▶ Der Beitrag verschiedener Vorläuferemissionen zu den Auswirkungen des bodennahen Ozons hängt von der Wahl der Metrik ab. Bei akuten Ozonereignissen, gemessen mit MDA8, sind anthropogene NO_x - und biogene VOC-Quellen in der Nähe am wichtigsten. Bei langfristiger Exposition (AOT40-Wert für Vegetation) sind der Ferntransport und Methan wichtiger.

1.2 Quellenzuordnung mit Kennzeichnung in LOTOS-EUROS

Das dreidimensionale regionale Chemietransportmodell LOTOS-EUROS (Manders et al., 2017) dient der Simulation der Luftverschmutzung in der unteren Troposphäre. Das Modell ist insofern von mittlerer Komplexität, als die relevanten Prozesse so parametrisiert sind, dass der Rechenaufwand moderat ist und stündliche Berechnungen über längere Zeiträume von mehreren Jahren innerhalb einer akzeptablen Rechenzeit möglich sind. Das Modell ist ein sogenanntes Euler-Gitter-Modell, was bedeutet, dass die Berechnungen auf einem festen dreidimensionalen Gitter durchgeführt werden. Auf diesem Gitter werden die Konzentrationsänderungen aufgrund von Advektion, vertikaler Vermischung, chemischen Umwandlungen und Entfernung durch nasse und trockene Deposition berechnet.

Die Prozessberechnungen erfordern Informationen über anthropogene Emissionen, Landnutzung und meteorologische Bedingungen, die dem Modellsystem vorgegeben werden müssen. Auf der Grundlage dieser Eingabedatensätze und der Prozessbeschreibungen werden stündliche Berechnungen über den Untersuchungsraum durchgeführt. In der Regel werden hochauflösende Simulationen über das Untersuchungsgebiet, d. h. Deutschland, durchgeführt,

die in größere, gröber aufgelöste Domänen eingebettet sind, die z. B. Europa abdecken, um die Auswirkungen des Ferntransports zu berücksichtigen.

Zahlreiche Anwendungen von LOTOS-EUROS sind in der Literatur beschrieben. Eine ausführliche Übersicht finden Sie unter Manders et al. (2017). Neben eigenen Validierungen beteiligt sich LOTOS-EUROS so weit wie möglich an Modellvergleichsstudien, in denen die Modelleistung im Vergleich zu anderen Modellen bewertet wird. Diese Modellvergleiche (z. B. EURODELTA, AQMEII) haben den Austausch mit Kolleginnen und Kollegen durch gezielte Diskussionen und den Erfahrungsaustausch verbessert und zur Erkennung von Modellfehlern und deren anschließender Behebung beigetragen. Kürzlich hat LOTOS-EUROS (und WRF-CHEM) am deutschen Modellvergleich mit Schwerpunkt auf Ozon im Rahmen des UBA-Projekts OzonEval teilgenommen. Der Modellaufbau, der für die Entwicklung und Demonstration des Ozon-Kennzeichnung-Ansatzes in LOTOS-EUROS sowie für die explorativen Quellenzuordnungssimulationen verwendet wurde, entspricht genau dem Aufbau dieser Studie. Für eine detaillierte Beschreibung der Modellaufbauten verweisen wir auf den Bericht des OzonEval-Projekts.

Mithilfe einer Kennzeichnungstechnik werden die Beiträge bestimmter Quellen für alle Modellgitterzellen und Zeitschritte berechnet. Auf diese Weise kann die Herkunft der modellierten Konzentrationen für verschiedene Spurengase zurückverfolgt werden. Die Kennzeichnungstechnik zur Quantifizierung der Quellenbeiträge in LOTOS-EUROS wurde für Feinstaub und seine Vorläuferstoffe entwickelt (Kranenburg et al., 2014). Sie ermöglicht die flexible Definition von Kennzeichnungen für Emissionsquellensektoren, Regionen oder Kombinationen davon. Die Quellenanteile für jeden modellierten Tracer, der eine nicht reaktive Spezies oder ein Molekül mit einem konservierten Atom (C, N, S) ist, werden durch alle Modellprozessbeschreibungen hindurch verfolgt. Daher wird für alle Prozesse der (Brutto) Massentransfer berechnet, woraufhin die Quellenzuordnung anhand der Quellenanteile der bereits vorhandenen Konzentration und des Massentransfers berechnet wird. Durch die Bestimmung der chemischen Produktionsbedingungen zwischen allen Reaktanten wird die rechnerisch aufwendige Einführung separater Tracer für jede gekennzeichnete Quelle vermieden. Diese Methodik wurde bereits häufig verwendet, um die Herkunft von Feinstaub (z. B. Hendriks et al., 2014; Pültz et al., 2023; Timmermans et al., 2022), Stickoxiden (Thürkow et al., 2023) und Ammoniak (Hendriks et al., 2016) zu untersuchen. Derzeit werden operative Informationen zu Feinstaub über Anwendungen in CAMS (Pommier et al., 2020) und den TNO Operational Source Apportionment Service (<https://topas.tno.nl>) bereitgestellt.

Die Prozessbeschreibungen im Modell lassen sich in vier Gruppen einteilen:

- ▶ Emissionen
 - Anthropogene Emissionen
 - Natürliche Emissionen
- ▶ Transportprozesse
 - Advektion
 - Diffusion
 - Anpassung
 - Sedimentation

- ▶ Entfernungsprozesse
 - Trockene Ablagerung
 - Nasse Deposition
- ▶ Chemie
 - Gasphasenchemie
 - Aerosolchemie

Für jeden der Prozesse innerhalb der Gruppen wird der relative Beitrag jeder angegebenen Quellenkennzeichnung zu den Gesamtkonzentrationen auf ähnliche Weise berechnet. Obwohl die Funktionalität für Ozon noch nicht vorhanden war, können die bestehenden Kennzeichnungsmethoden auf alle vom LOTOS-EUROS-Modell modellierten Spezies, einschließlich Ozon, angewendet werden. Dies bot somit eine hervorragende Grundlage für die Einführung einer Quellenzuordnungsmethode für Ozon. Die nichtlineare Abhängigkeit von O_3 von den Konzentrationen der Vorläuferstoffe NO_x und VOC erfordert eine spezielle Implementierung der O_3 -Kennzeichnung. Um dies zu erreichen, folgte die in LOTOS-EUROS implementierte Ozon-Kennzeichnungsstrategie denselben Prinzipien wie das TOAST-Schema, das in WRF-Chem verwendet wird.

2 Aufbau des Projekts

Das Ziel dieses Projekts ist es, die TOAST-Methode zur Zuordnung des modellierten Ozons zu seinen beiden emittierten Vorläufern NO_x und VOCs anzuwenden, ihre Eignung zur Erstellung von Empfehlungen für regionale und sektorale Emissionsminderungen zur Verringerung der negativen Auswirkungen von Ozon über Deutschland zu bewerten und eine ausführliche Quellenzuordnung für Deutschland durchzuführen. Es werden zwei regionale chemische Transportmodelle verwendet: WRF-Chem (verwendet von RIFS Potsdam) und LOTOS-EUROS (entwickelt und verwendet von TNO). Die TOAST-Methode wurde bereits bei RIFS Potsdam in WRF-Chem implementiert und von TNO in Vorbereitung auf dieses Projekt in LOTOS-EUROS implementiert. Beide Modelle werden mit einer harmonisierten Konfiguration und einer einheitlichen Auswahl von Quellsektoren und Regionen für die Ozonquellenzuordnung betrieben.

2.1 Konfiguration der Modelle

Beide Modelle wurden bereits im UBA-Projekt „OzonEval“ (FKZ 3720 51 201 0) eingesetzt. Im OzonEval-Projekt wurden die Modelle anhand verfügbarer Messungen und zweier anderer vergleichbarer CTMs unter Verwendung einer harmonisierten Modellkonfiguration gründlich evaluiert. Die vorliegende Studie TagOzon stützt sich auf die Arbeiten im OzonEval-Projekt, indem sie die gleichen Modellkonfigurationen wie das OzonEval-Projekt verwendet. Es gibt nur wenige Unterschiede zwischen der Modellkonfiguration im aktuellen Projekt und der im OzonEval verwendeten Konfiguration:

- ▶ Anstelle einer Simulation für ein ganzes Jahr in OzonEval werden in TagOzon nur die Monate April bis September 2019 simuliert, was der üblichen „Ozonsaison“ entspricht.
- ▶ Anstelle des in OzonEval für den inneren Bereich über Deutschland verwendeten 2×2 -km-Gitters wird im TagOzon-Projekt ein 7×7 -km-Gitter für den inneren Bereich verwendet. Dies ist auf die rechnerische Komplexität der Ozonquellenzuordnung zurückzuführen.
- ▶ Das TagOzon-Projekt verwendet laterale Randbedingungen, die gekennzeichnete Tracer enthalten, die den Ferntransport von Ozon und seinen Vorläufern aus Regionen außerhalb der Modelldomäne darstellen.
- ▶ Stündliche Oberflächenkonzentrationen von gekennzeichneten Ozonarten werden zur Liste der gelieferten Modellergebnisse hinzugefügt.

2.2 Quellsektoren und -regionen für die Ozonquellenzuordnung

2.2.1 Satz von Kennzeichnungen für regionale Modelltests

Bevor die beiden Modelle für die Ozonquellenzuordnung verwendet werden konnten, wurden die jeweiligen Implementierungen des TOAST-Systems in jedem Modell anhand eines minimalen Satzes repräsentativer Kennzeichnungen verglichen. Aufgrund von Unterschieden in den Modellformulierungen (z. B. ihren chemischen Mechanismen) ist nicht zu erwarten, dass die Modelle eine identische Quellenzuordnung für Ozon liefern, aber durch die Verwendung der oben beschriebenen harmonisierten Konfiguration sollten die Unterschiede minimiert werden. Falls die beiden Modelle deutlich unterschiedliche Ozonquellenzuweisungen liefern, deutet dies auf potenzielle Probleme bei der Implementierung des TOAST-Systems in einem oder beiden Modellen hin, die weiter untersucht werden sollten.

In jeder mit dem TOAST-System durchgeführten Simulation müssen alle Ozon- und Ozonvorläufer gekennzeichnet werden, sodass die Summe der Konzentrationen der gekennzeichneten Spezies immer gleich der Konzentration der entsprechenden „echten“ Spezies im CTM ist.

Für den ersten Vergleich der NO_x-Kennzeichnung in den beiden Modellen wurde der folgende Satz von Kennzeichnungen verwendet:

- ▶ Ozon und Vorläuferstoffe aus den Ausgangsbedingungen.
- ▶ Ozon und Vorläuferstoffe aus der lateralen Randbedingung, einschließlich Ozon stratosphärischen Ursprungs.
- ▶ Ozon und Vorläuferstoffe aus der oberen Randbedingung (gilt nur für LOTOS-EUROS, da WRF-Chem keine obere Randbedingung hat).
- ▶ Ozon aus geringfügigen Produktionswegen innerhalb der Modelldomäne.
- ▶ Vorläuferstoffe, die aus natürlichen/biogenen Quellen innerhalb der Modelldomäne emittiert werden, und das anschließend gebildete Ozon.
- ▶ Vorläuferstoffe, die vom Verkehrssektor in Deutschland emittiert werden, und das anschließend gebildete Ozon.
- ▶ Vorläuferstoffe, die von allen anderen anthropogenen Sektoren in Deutschland emittiert werden, und das anschließend gebildete Ozon.
- ▶ Vorläuferstoffe, die von allen anthropogenen Sektoren im Rest der Domäne (außer Deutschland) emittiert werden.

Die folgenden Kennzeichnungen wurden für den ersten Vergleich der VOC-Kennzeichnung in den beiden Modellen verwendet:

- ▶ Ozon und Vorläuferstoffe aus den Ausgangsbedingungen.
- ▶ Ozon und Vorläuferstoffe aus der lateralen Randbedingung, einschließlich Ozon aus der Stratosphäre.
- ▶ Ozon und Vorläuferstoffe aus der oberen Randbedingung (gilt nur für LOTOS-EUROS, da WRF-Chem keine obere Randbedingung hat).
- ▶ Ozon aus geringfügigen Produktionswegen innerhalb der Modelldomäne.
- ▶ Vorläuferstoffe, die von allen anthropogenen Quellen in der Domäne emittiert werden, und das anschließend gebildete Ozon.
- ▶ Vorläuferstoffe, die von natürlichen/biogenen Quellen in Deutschland emittiert werden, und das anschließend gebildete Ozon.
- ▶ Vorläuferstoffe, die von natürlichen/biogenen Quellen im Rest der Domäne (außer Deutschland) emittiert werden, und das anschließend gebildete Ozon.

2.2.2 Globale Kennzeichnungen für die Randbedingungen

Um den Ferntransport von Ozon und Vorläufern von außerhalb der Modelldomäne in die Modelldomäne darzustellen, wird das globale Modell CAM-chem verwendet, um

Randbedingungen für die Produktionsläufe zu entwickeln. Die Konfiguration des Modells ist identisch mit der in Nalam et al. (2025), die sich stark an der Konfiguration aus Butler et al. (2020) orientiert. Das CAM-chem-Modell wird für das Jahr 2019 unter Verwendung der Meteorologie aus der MERRA-Reanalyse, der Oberflächenmethanfelder aus dem globalen inversen Produkt von CAMS und einer stratosphärischen Randbedingung aus dem WACCM-Modell durchgeführt. Im Projekt „OzonEval“ wurden die Modellen WRF-Chem und LOTOS-EUROS gründlich evaluiert. Aus Gründen der Kompatibilität mit dem OzonEval-Projekt basieren die anthropogenen Emissionen auf dem Jahr 2018 und werden dem CAMS-GLOB-ANT-Inventar entnommen. Biogene und anthropogene Emissionen aus der Verbrennung von Biomasse basieren aus Gründen der Kompatibilität mit der meteorologischen Antriebskraft auf dem Jahr 2019 und werden dem CAMS-GLOB-BIO- bzw. dem GFED4-Inventar entnommen.

Die folgenden Kennzeichnungen werden in der globalen NO_x-gekennzeichneten Simulation verwendet:

► Globale Kennzeichnungen

- Stratosphäre
- Biogen
- Biomasseverbrennung
- Flugverkehr
- Blitze
- Geringfügige Produktionswege (ohne Reaktion zwischen NO und Peroxy-Radicale, Butler et al., 2018)

► Landbasierte anthropogene Kennzeichnungen

- Nordamerika
- Europa
- Ostasien
- Südasien
- Naher Osten
- Russland-Weißrussland-Ukraine
- Nordafrika
- Zentralasien
- Mexiko und Mittelamerika
- Südostasien
- Rest der Welt

► Seeschifffahrt-Kennzeichnungen

- Arktischer Ozean

- Ostsee und Nordsee
- Mittelmeer und Schwarzes Meer
- Östlicher Nordatlantik (östlich von 14 Grad westlicher Länge, nördlich von 34 Grad nördlicher Breite)
- Nordamerikanische ECA Ost
- Restlicher Nordatlantik
- Nordamerikanische ECA West
- Restlicher Nordpazifik
- Indischer Ozean
- Hudson Bay
- Ozeane der südlichen Hemisphäre

Die folgenden Kennzeichnungen werden in der globalen VOC-gekennzeichneten Simulation verwendet:

► Globale Kennzeichnungen

- Stratosphäre
- Biogen
- Biomasseverbrennung
- Flugverkehr
- Methan-Oxidation
- Geringfügige Produktionswege

► Regionale Kennzeichnungen

- Nordamerika
- Europa
- Ostasien
- Südasien
- Naher Osten
- Russland-Weißrussland-Ukraine
- Alle Seeverkehrsdienstleistungen
- Rest der Welt

2.2.3 Erste Kennzeichnungen für die Zuordnung von Ozonquellen

Aufgrund der rechnerischen Komplexität der Ozonquellenzuordnung ist es nicht möglich, eine vollständige Quellenzuordnung für jeden möglichen Quellsektor aus jeder denkbaren Quellregion durchzuführen. Stattdessen müssen Regionen und Sektoren aggregiert werden. Einige Regionen und Sektoren haben einen größeren Einfluss auf Ozon als andere. Das Ziel der Quellenzuordnung in diesem Projekt ist es, eine explizite Zuordnung für Sektoren und Regionen vorzunehmen, die den größten Einfluss auf das bodennahe Ozon in Deutschland haben. Die übrigen Sektoren und Regionen, die einen minimalen Einfluss auf das bodennahe Ozon in Deutschland haben, werden in einer einzigen Kategorie namens „Rest“ zusammengefasst.

Um die Regionen und Sektoren mit dem größten Einfluss auf das bodennahe Ozon über Deutschland zu ermitteln, wurde für die Produktionsläufe ein iterativer Ansatz verfolgt. Erste Modellläufe mit NO_x- und VOC-Kennzeichnung wurden mit einem Satz regionaler und sektoraler Kennzeichnungen durchgeführt, die in Abschnitt 3.7 näher beschrieben werden. Die Ergebnisse dieser ersten Modellläufe wurden analysiert und die einflussreichsten Regionen und Sektoren wurden in einen weiteren Satz von Modellläufen für NO_x- und VOC-Kennzeichnung unterteilt, um ein klareres Bild der Haupteinflüsse auf das bodennahe Ozon in Deutschland zu erhalten.

2.3 Emissionsminderungsszenarien

Neben den Produktionsläufen auf Basis der Emissionen von 2019 wurden zusätzliche Läufe sowohl mit WRF-Chem als auch mit LOTOS-EUROS unter Verwendung von NO_x-Kennzeichnung und VOC-Kennzeichnung unter Verwendung der vom UBA für Deutschland für das Jahr 2030 bereitgestellten Szenarien durchgeführt. Die Emissionen für das übrige Europa für das Jahr 2030 wurden aus CAMS übernommen. Der Satz von Kennzeichnungen für diese Berechnungen entspricht dem ursprünglichen Satz von Kennzeichnungen (Abschnitt 2.2.3).

Tabelle 1: Änderungen in den Emissionen von NO_x und NMVOC zwischen 2019 und 2030

Land	NO _x	NO _x	NMVOC	NMVOC
Jahr	2019	2030	2019	2030
Deutschland	1083	448	1200	998
Niederlande	208	90	240	234
Belgien	158	81	127	105
Luxemburg	12	7	11	10
Frankreich	719	251	710	893
Schweiz	61	49	86	78
Österreich	141	51	107	100
Tschechische	160	78	237	125
Polen	686	287	763	513
Dänemark	71	34	130	101

Sensitivitätsanalysen auf Basis diesen Emissionsminderungen wurden mit beiden Modellen durchgeführt. Aufgrund der Nichtlinearitäten in der Chemie des Ozons und auf der Grundlage der historischen Entwicklung der Emissionen von Ozonvorläufern ist nicht zu erwarten, dass Emissionsminderungen von Ozonvorläufern zu entsprechenden Verringerungen der

Ozonkonzentrationen führen werden. In einigen Fällen können die Ozonkonzentrationen sogar zunehmen. Durch die Durchführung der Emissionsszenarioläufe mit aktivierter Kennzeichnungs-Funktion kann gezeigt werden, wie sich der Beitrag der Vorläuferemissionen aus verschiedenen Regionen und Sektoren verändert, um die reduzierte Ozonproduktion aus den Zielregionen und -sektoren auszugleichen.

3 Aufbau und Durchführung der Modellierung

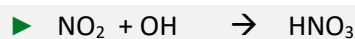
3.1 Referenz-Testläufe mit WRF-Chem

Um die Implementierung der Ozon-Kennzeichnung in LOTOS-EUROS zu evaluieren, werden Testläufe mit WRF-Chem unter Verwendung von NO_x-Kennzeichnung und VOC-Kennzeichnung durchgeführt. Der Aufbau des WRF-Chem-Modells für diese Testläufe entspricht dem des OzonEval-Projekts mit den oben beschriebenen Änderungen. Die in den WRF-Chem-Testläufen verwendeten Kennzeichnungen sind in Abschnitt 2.2.1 benannt.

3.2 Implementierung der Ozon-Kennzeichnung in LOTOS-EUROS: NO_x-Kennzeichnung

Als erster Schritt zur vollständigen Implementierung der NO_x- und VOC O₃-Kennzeichnung in LOTOS-EUROS wurde das bestehende N-Kennzeichnungssystem in LOTOS-EUROS von TNO erweitert, um die Ozonproduktion durch NO_x-Quellen (NO_x-Kennzeichnung) zu berücksichtigen. Die in diesem Kennzeichnungssystem enthaltenen Verbindungen, die zu O₃ führen, enthalten in der Regel sowohl N als auch O, beispielsweise NO₂, HNO₃, PAN und N₂O₅. Daher wird neben der Kennzeichnung von N eine zusätzliche gekennzeichnete Familie (O_x-Familie) mit Tracern im O₃-Zyklus eingeführt. In der aktuellen Version von LOTOS-EUROS gehören sechs Tracer zu dieser Familie (O₃, NO₂, NO₃, N₂O₅, HNO₃ und PAN). Diese Komponenten werden im Reaktionsschema des Modells verfolgt. Die produzierten Mengen dieser Komponenten erhalten die Kennzeichnung ihrer Ursprungskomponente (in der O_x-Familie). Ein Beispiel für eine solche Reaktion ist:

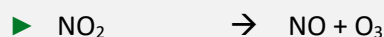
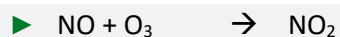
Gleichung 1: Beispiel einer Reaktion in der O_x-Familie.



Der Beitrag der durch diese Reaktion entstandenen HNO₃ wird mit den Beiträgen der ausgangsseitigen NO₂ (die ebenfalls zur O_x-Familie gehört) gekennzeichnet.

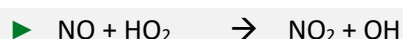
NO, NO₂ und O₃ befinden sich nach diesen Reaktionen unter Einwirkung von Sonnenlicht im Gleichgewicht.

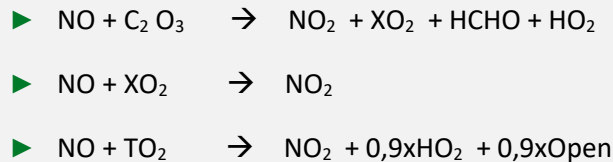
Gleichung 2: Gleichgewichtsreaktionen von O₃ unter Einwirkung von Sonnenlicht.



Um die Kennzeichnungen in der O_x-Familie zu „aktivieren“, werden Reaktionen herangezogen, bei denen NO₂ aus NO und einer Peroxy-Radikalverbindung entsteht. Wenn eine Reaktion stattfindet, bei der NO ohne Verwendung eines O₃-Moleküls, aber unter Verwendung eines (in)organischen Peroxyradikals in NO₂ umgewandelt wird, wird im obigen Gleichgewicht ein Molekül O₃ „eingespart“. Dies kann als Produktion von O₃ ausgedrückt werden. Im CBM-IV-Schema gibt es vier Reaktionen mit dieser Eigenschaft.

Gleichung 3: Reaktionen zur Aktivierung von Markern in der O_x-Familie.





Die Specie „Open“ stellt die Gesamtkonzentration offenkettiger Olefine dar. Jede dieser Reaktionen erzeugt ein NO₂-Molekül, während ein O₃-Molekül verschont (oder erzeugt) wird. Bei der NO_x-Kennzeichnungsmethode werden die Quellbeiträge von NO (aus der NO_y-Familie) verwendet, um den Quellbeitrag von NO₂ in der O_x-Familie zu aktualisieren. Danach werden auch alle Reaktionen zwischen Komponenten innerhalb der O_x-Familie verfolgt und die Kennzeichnungen innerhalb der O_x-Familie übertragen. Alle anderen Prozesse im Modell (Ablagerung, Diffusion und Advektion) behandeln die Quellenaufteilung identisch mit der in LOTOS-EUROS bestehenden Methode für PM (particulate matter), jedoch müssen die Berechnungen für beide Familien durchgeführt werden, was das System hinsichtlich der Rechenleistung aufwändiger macht. Die Routinen für die Emissionen sind nicht betroffen, da Ozon in der Atmosphäre gebildet und nicht emittiert wird.

3.3 Implementierung der Ozonkennzeichnung in LOTOS-EUROS: VOC-Kennzeichnung

Das Verfahren zur Kennzeichnung von O₃ nach der VOC-Kennzeichnung folgt dem gleichen Prinzip wie die NO_x-Kennzeichnung. Die (photostationären) Gleichgewichtsreaktionen für NO, NO₂ und O₃ (Gleichung 2) können durch Reaktionen von NO zu NO₂ unter Verwendung eines Peroxyradikals (Gleichung 3) gestört werden. Im Gegensatz zur NO_x-Kennzeichnungsmethode werden die Kennzeichnungen in der O_x-Familie also nicht aus den Beiträgen des an der Reaktion beteiligten NO abgeleitet, sondern aus den beteiligten Peroxyradikalen.

Jeder Oxidationsschritt von VOC durch OH führt im Allgemeinen zur Bildung von zwei Peroxyradikalen, einem organischen Peroxyradikal (RO₂) und HO₂. Um die Bildung von Ozon mit den Quellen der VOC in Verbindung zu bringen, muss daher die Herkunft beider Peroxyradikale verfolgt werden. Das organische Peroxyradikal ist Teil der VOC-Familie des Kennzeichnungssystems, aber das HO₂-Radikal wurde in der bestehenden Kennzeichnungsimplementierung nicht berücksichtigt. Daher wurde die O_x-Familie im Falle der VOC-Kennzeichnung um HO₂ erweitert. Auf diese Weise ist es möglich, die Herkunft der Peroxyradikale zu ermitteln, die ein Ozonmolekül speichern, indem sie NO in NO₂ umwandeln. HO₂ wird bei der Oxidation von NO zu NO₂ wieder zu OH umgewandelt. Damit geht es aus der O_x-Familie verloren und das OH kann ein anderes VOC oxidieren, wodurch ein HO₂ mit dem Ursprung dieses VOC entsteht.

In der Praxis erfolgt die Umwandlung der Quelle des VOC in die Spezies der O_x-Familie somit durch die Bildung von NO₂ über RO₂ und die Bildung von HO₂. Danach werden die an NO₂ oder HO₂ (in der O_x-Familie) anhaftenden Kennzeichnungen durch alle Reaktionen innerhalb dieser Familie auf Ozon und die anderen Tracer in dieser Familie übertragen.

Wie bei der NO_x-Kennzeichnungsmethode wird die Kennzeichnungsimplementierung der anderen Prozesse (Deposition, Diffusion und Advektion) wie bei der bestehenden Kennzeichnungsmethode in LOTOS-EUROS berechnet, jedoch erneut mit höherem Rechenaufwand, da beide Kennzeichnungssysteme für alle diese Prozesse berechnet werden müssen. Grundsätzlich ist es möglich, die Kennzeichnung für NO_x und VOC in einer einzigen

Simulation (unter Verwendung zweier unterschiedlicher O_x-Familien) innerhalb der Grenzen der Speichernutzung durchzuführen. Dies erfordert die Verwendung genau derselben Kennzeichnungen für NO_x und VOC.

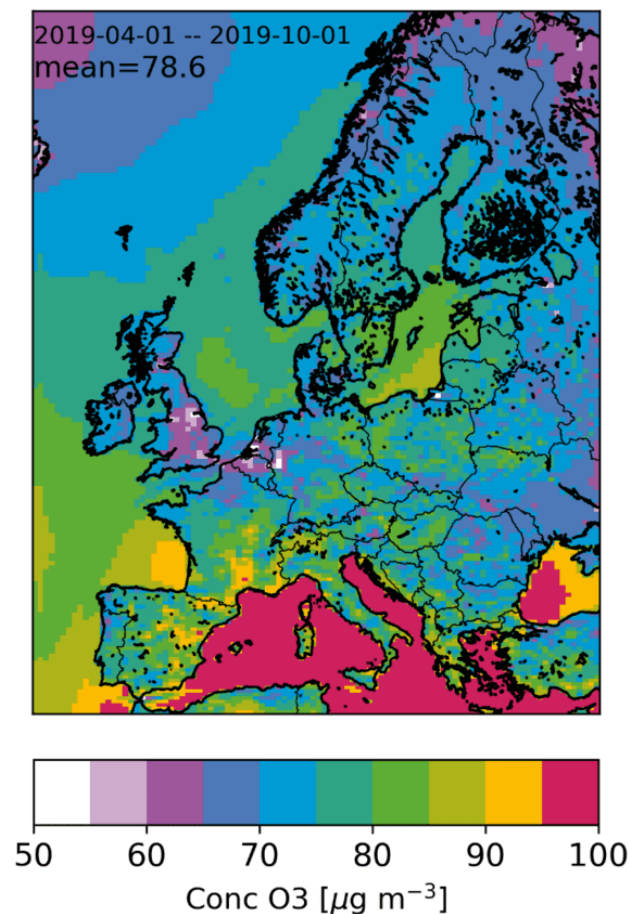
3.4 Testläufe mit LOTOS-EUROS

Um die Umsetzung der Kennzeichnungsmethode zu testen und zu demonstrieren, wurden zwei Simulationen durchgeführt. Eine unter Verwendung der NO_x-Kennzeichnung und eine unter Verwendung der VOC-Kennzeichnung. In beiden Simulationen wurde derselbe Satz von 33 vordefinierten Kennzeichnungen verwendet. Diese Kennzeichnungen sind eine Obermenge der in Abschnitt 2.2.1 beschriebenen Kennzeichnungen und ermöglichen einen Vergleich mit den WRF-Chem-Testläufen. Für Deutschland wurden alle GNFR-Sektoren mit einer separaten Kennzeichnung versehen. Daneben wurden den Nachbarländern Deutschlands und Kombinationen von weiter von Deutschland entfernten Ländern individuelle Kennzeichnungen zugewiesen. Schließlich werden separate Kennzeichnungen für die Seeschifffahrt, biogene Emissionen und den interkontinentalen Fernverkehr verwendet. Eine vollständige Liste der Kennzeichnungen findet sich in Liste 1. Der Schwerpunkt dieser Simulationen lag auf dem europäischen Raum, um die Beiträge der Quellen zu den Ozonkonzentrationen in Deutschland zu untersuchen.

Liste 1: Liste der Kennzeichnungen in der Testsimulation für LOTOS-EUROS.

- ▶ Deutschland
 - Energiesektor (1)
 - Industrie (2)
 - Haushalte (3)
 - Flüchtige Stoffe (4)
 - Lösungsmittel (5)
 - Straßenverkehr (6)
 - Schifffahrt (7)
 - Luftverkehr (8)
 - Sonstige Transportleistungen (9)
 - Abfälle (10)
 - Landwirtschaft Viehzucht (11)
 - Landwirtschaft Sonstiges (12)
- ▶ Schweiz (17)
- ▶ Österreich (18)
- ▶ Tschechische Republik (19)
- ▶ Polen (20)
- ▶ Dänemark (21)
- ▶ Italien (22)
- ▶ Russland + Weißrussland (23)
- ▶ Vereinigtes Königreich + Irland (24)
- ▶ Spanien + Portugal (25)
- ▶ Osteuropa (26)
- ▶ Nordeuropa (27)
- ▶ Seeschifffahrt (28)
- ▶ Außerhalb Europas, in der Domäne (29)
- ▶ Biogen (30)
- ▶ Interkontinental (31)
- ▶ Oberste Modellgrenze (32)
- ▶ Ausgangsbedingung (33)

Abbildung 1: Gesamtkonzentration von O₃ gemäß LOTOS-EUROS, gemittelt vom 01.04.2019 bis zum 30.09.2019 (durchschnittliche Sommerkonzentration über alle Stundenmittelwerte)



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

Abbildung 1 zeigt die von LOTOS-EUROS berechneten O₃-Konzentrationen über Europa. Die atmosphärischen O₃-Konzentrationen sind über den (Mittel-)Meeren am höchsten, wo praktisch keine Ozonablagerungen stattfinden, sodass hohe Ozonkonzentrationen zurückbleiben. Die Konzentrationen über dem Vereinigten Königreich, den Niederlanden, Belgien und dem Ruhrgebiet sind im Durchschnitt relativ niedrig. Hohe NO_x-Emissionen aus diesen dicht besiedelten und industrialisierten Gebieten führen zu einer erhöhten O₃-Titration.

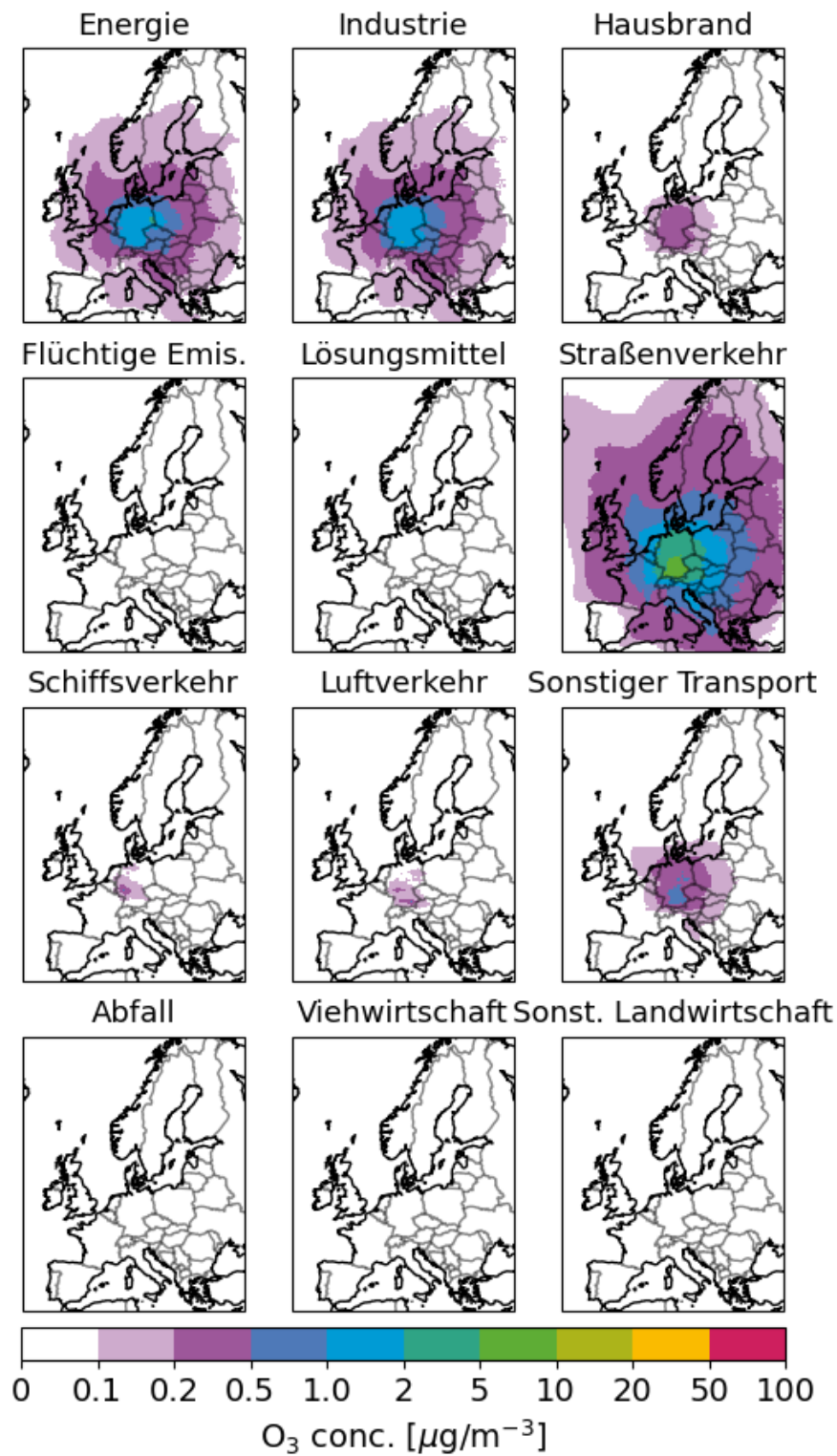
3.4.1 NO_x-Kennzeichnung

3.4.1.1 Karten

Abbildung 2, Abbildung 3 und Abbildung 4 enthalten die Karten der absoluten Quellenanteile an der sommerlichen mittleren Ozonkonzentration für den gesamten Satz von Kennzeichnungen (n=33), modelliert mit LOTOS-EUROS unter Verwendung der NO_x-Kennzeichnungsmethode. Die in diesen Abbildungen dargestellten Quellenanteile folgen vorhersehbaren Mustern. So sind beispielsweise die O₃-Beiträge des deutschen Straßenverkehrs über Deutschland selbst am größten. Die O₃-Beiträge des deutschen Straßenverkehrs sind viel höher als die aus industriellen Quellen, da die NO_x-Emissionen des Straßenverkehrs größer sind und näher an der Oberfläche auftreten. Im Durchschnitt des gesamten Sommerhalbjahres verursachen die deutschen Emissionen aus Industrie und Energieerzeugung innerhalb Deutschlands Ozonbeiträge zwischen

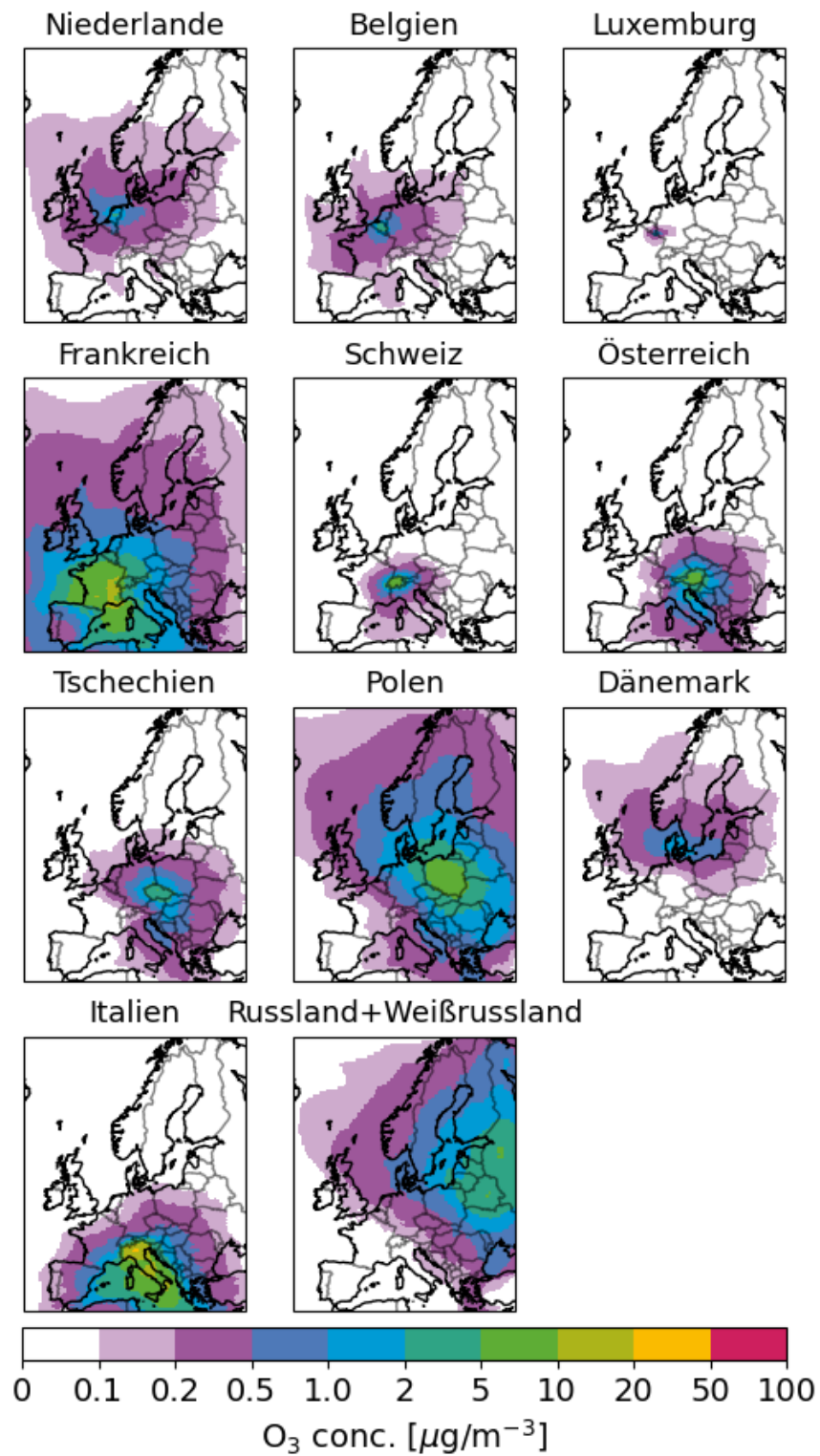
1 und 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Für den Straßenverkehr liegt dieser Beitrag zwischen 5 und 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in der südlichen Hälfte und zwischen 2 und 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in der nördlichen Hälfte des Landes. Geringere Beiträge leisten der nicht straßenverbundene Verkehr und die Haushalte. Die Beiträge der anderen deutschen Sektoren sind eher gering und liegen in der Regel unter 0,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Der O_3 -Beitrag aller anthropogenen Emissionen in Frankreich konzentriert sich ebenfalls auf Frankreich. Für alle Sektoren und Länder sind die Auswirkungen der atmosphärischen Dynamik und des Transports der Schadstoffe an andere geografische Standorte sichtbar. Darüber hinaus sind die Beiträge anderer Länder über Deutschland begrenzt, wobei die größten Beiträge aus den Nachbarländern Polen und Frankreich stammen (max. 5 - 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). Die Ergebnisse der weiter von Deutschland entfernten Länder zeigen, dass sie mit maximal 2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ einen geringen Beitrag zu Deutschland leisten. Daher ist es sinnvoll, diese Länder zusammenzufassen und die Gesamtzahl der Kennzeichnungen in der Simulation zu begrenzen. Es ist zu beachten, dass die O_3 -Konzentrationen aus dem Seeverkehr über den Meeren am höchsten sind, wo die entsprechenden Emissionen stattfinden und viel weniger O_3 -Ablagerungen auftreten. Der Beitrag der Schifffahrt zu Deutschland überstieg jedoch den Beitrag der Nachbarländer, was die Bedeutung dieses Sektors als separate Kennzeichnung hervorhebt. Biogene O_3 -Konzentrationen stellen den Beitrag biogener NO_x -Quellen aus dem Boden dar und sind landeinwärts am höchsten. Mit einem Beitrag von 5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ist auch dieser Sektor wichtig, um separat gekennzeichnet zu werden. Schließlich sind interkontinentale O_3 -Konzentrationen O_3 -Moleküle, die von außerhalb der Modellgrenzen stammen. Aber auch Stickstoffverbindungen (NO , NO_2 , PAN usw.), die in den Modellbereich gelangen und zur Bildung von Ozon beitragen, werden als „interkontinental“ gekennzeichnet. Es ist zu beachten, dass die einströmenden Stickstoffverbindungen gering sind, sodass die Bezeichnung „interkontinental“ überwiegend durch den direkten O_3 -Zufluss dominiert wird. Im nächsten Abschnitt 3.4.2 über die VOC-Kennzeichnung wird die Aufteilung zwischen direkten und indirekten interkontinentalen Beiträgen im Detail erläutert und die Bedeutung dieser Aufteilung für die VOC-Kennzeichnung aufgezeigt.

Abbildung 2: Modellierte O₃-Konzentrationen aus deutschen Quellen, gekennzeichnet mit der NO_x-Kennzeichnungsmethode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS



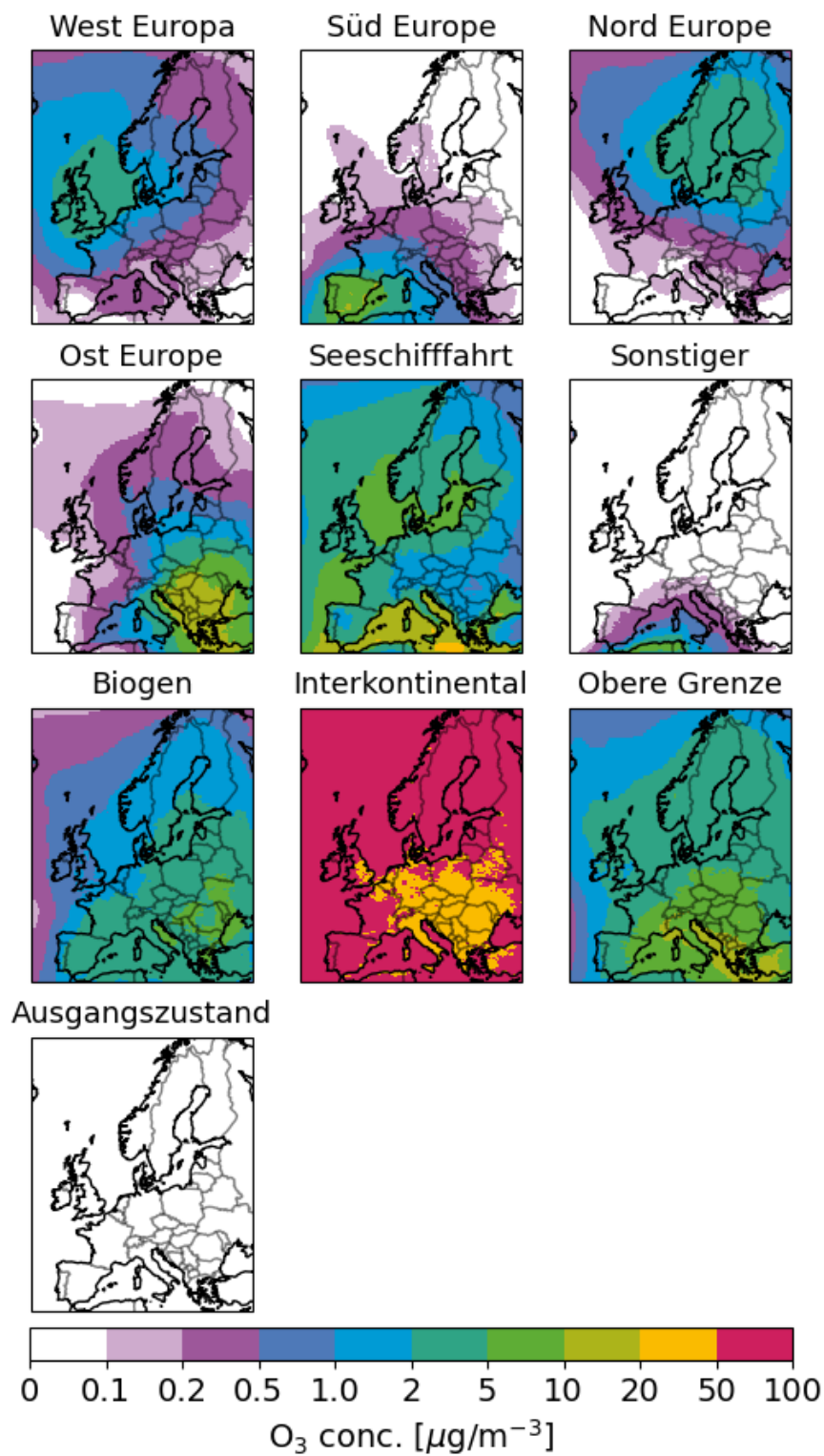
Quelle: eigene Darstellung (TNO)

Abbildung 3: Modellierte O₃-Konzentrationen aus Nachbarländern, gekennzeichnet mit der NO_x-Kennzeichnungs-methode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

Abbildung 4: Modellierte O₃-Konzentrationen aus sonstigen Quellen, gekennzeichnet mit der NO_x-Kennzeichnungsmethode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS



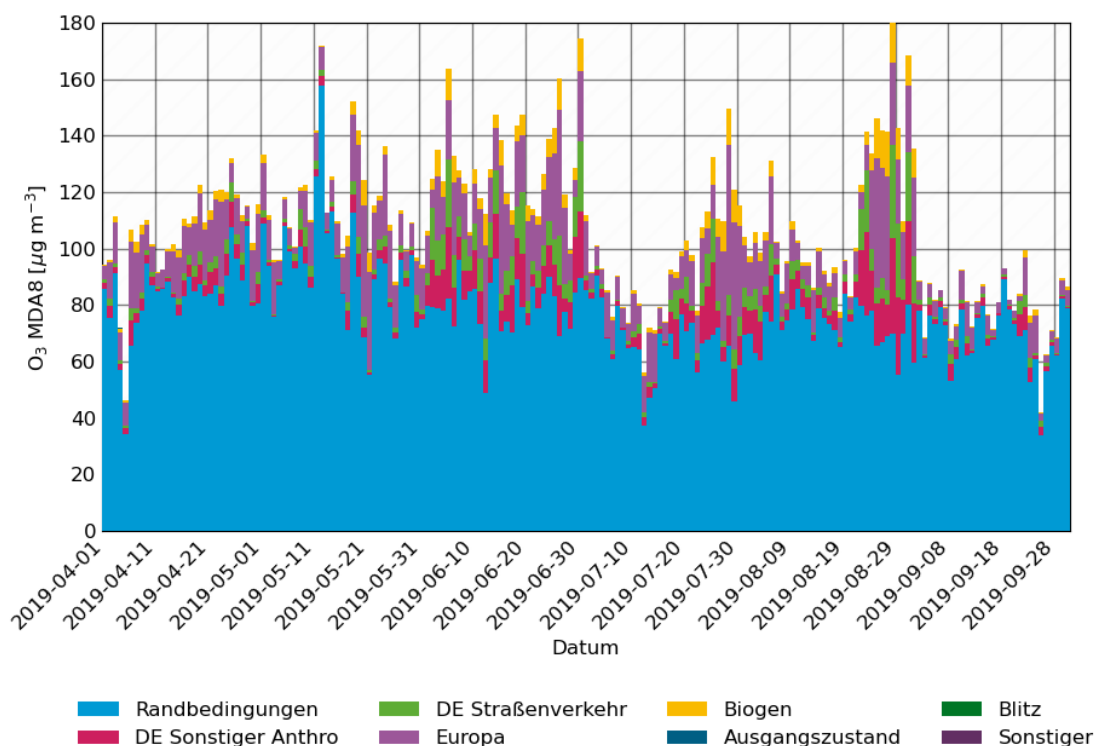
Quelle: eigene Darstellung (TNO)

3.4.1.2 MDA8 Zeitreihe April bis Oktober

Abbildung 5 zeigt die modellierte tägliche Zeitreihe des MDA8 (täglich höchster 8-Stundenmittelwert) von O₃ von April bis September 2019 für den Standort Waldhof. Der MDA8-Wert spiegelt normalerweise die Konzentrationen am Nachmittag wider. Transport von Ozon durch die Randbedingung leistet den größten Beitrag zu den O₃-Konzentrationen. Wie zu erwarten, sind starke tägliche Schwankungen zu beobachten. Ozonereignisse werden durch regionale Bildungseffekte verursacht, bei denen die Kombination aus stark erhöhten BVOC-Emissionen und anthropogenem NO_x eine wichtige Rolle spielt. Es überrascht daher nicht, dass der Beitrag der deutschen und europäischen NO_x-Emissionen in diesen Zeiträumen besonders groß ist. Während der Episode mit höheren Werten im August erklären die europäischen NO_x-Emissionen mehr als die Hälfte der MDA-8-Werte in Waldhof.

Abbildung 5: Zeitreihen der MDA8-Werte für O₃. Die Beiträge aller Kennzeichnungen werden gestapelt und ergeben zusammen die Gesamtkonzentration von O₃. Alle europäischen (nicht deutschen) Kennzeichnungen werden unter einer Bezeichnung „Europa“ zusammengefasst. Auch alle deutschen Beiträge mit Ausnahme des Straßenverkehrs werden zusammengefasst.

O₃ MDA8 [$\mu\text{g m}^{-3}$] Waldhof (DEUB005)



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

3.4.1.3 Vergleich der Kennzeichnungsergebnisse mit der Brute-Force-Simulation

Eine weitere Methode zur Abschätzung der Beiträge verschiedener Quellen zum Ozon ist die sogenannte Brute-Force-Methode. Bei dieser Methode wird eine Modellsimulation mit reduzierten Emissionen einer einzelnen Quelle durchgeführt. Die Differenz der O₃-Konzentration zwischen dieser Simulation und der Referenzsimulation (unter Berücksichtigung aller Emissionen) wird der Quelle zugeschrieben, deren Emissionen reduziert wurden. Ein Nachteil dieser Methode besteht darin, dass durch die Entfernung von Emissionen aus dem

System die chemische Zusammensetzung der Atmosphäre verändert wird. Um dieses Problem teilweise zu lösen, wird davon ausgegangen, dass sich die chemische Zusammensetzung bei nur begrenzten Emissionsänderungen nicht wesentlich verändert. Daher werden in der Regel nur 15 % der Emissionen einer einzelnen Quelle entfernt. Um den Beitrag des gesamten Sektors zu ermitteln, werden die Unterschiede zwischen dem Referenzszenario und dem Reduktionsszenario auf 100 % skaliert (d. h. mit 100/15 multipliziert).

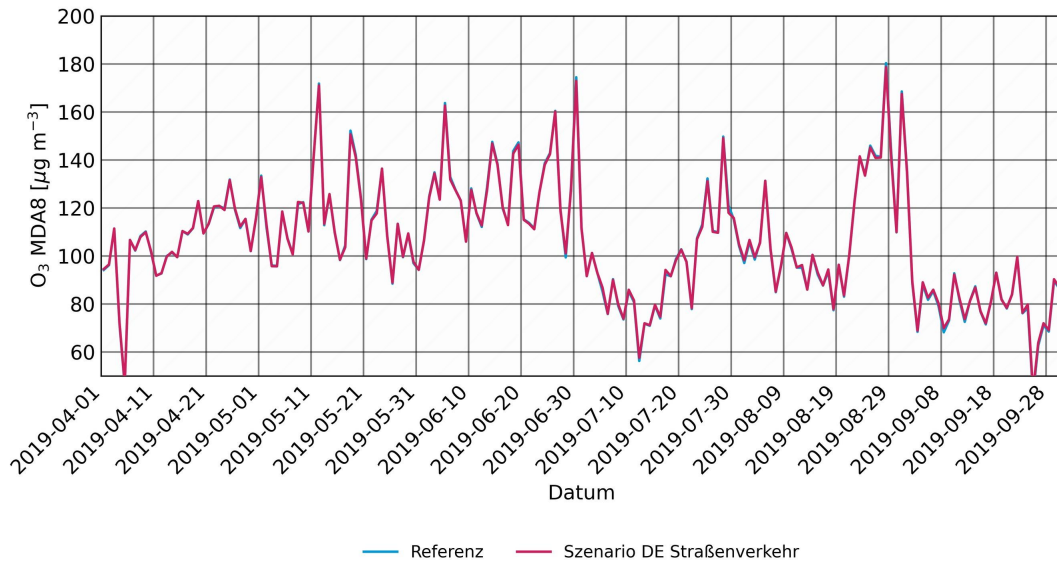
In diesem Test werden zwei Reduktionsszenarien angewendet. Eines mit einer Reduzierung der Emissionen aus dem deutschen Straßenverkehr um 15 % und eines mit einer Reduzierung aller anthropogenen Emissionen in Europa (außer Deutschland) um 15 %. In Abbildung 6 sind die Gesamt-MDA8-Werte für O₃ für das Referenz- und das Reduktionsszenario für eine einzelne Messstation in Deutschland (Waldhof) dargestellt. Es werden nur sehr geringe Unterschiede zwischen den beiden Simulationen beobachtet, mit einem Maximum von etwa 2,5 µg/m³ für das deutsche Straßenverkehrsszenario und einem Maximum von 5 µg/m³ für das Szenario mit reduzierten Emissionen in ganz Europa. Dies bestätigt die Annahme, dass begrenzte Emissionsänderungen keinen großen Einfluss auf die chemische Zusammensetzung haben. In Abbildung 7 werden diese Unterschiede normalisiert (mit 100/15 multipliziert), um den für den gesamten Sektor gültigen Beitrag zu schätzen, und mit den gekennzeichneten Ergebnissen verglichen. Beide Szenarien werden zusammen mit den Vergleichs-Kennzeichnungen aus der Simulation unter Verwendung der in Abschnitt 3.2 beschriebenen NO_x-Kennzeichnungsmethode dargestellt.

Zunächst zeigen die gekennzeichneten Quellenbeiträge und die hochskalierten Beiträge der Brute-Force-Reduktionsläufe eine große Korrelation, was Vertrauen in die Umsetzung schafft. Allerdings ist der gekennzeichnete Beitrag viel größer als die Auswirkungen der Reduktionsläufe. Die Gründe dafür werden in den Szenarioläufen behandelt, sind jedoch in der Nichtlinearität der Reaktion auf Emissionsminderungen begründet.

Abbildung 6: MDA8-Werte für O₃ sowohl für die Referenzsimulation als auch für ein Reduktionsszenario mit einer Emissionsminderung von 15 % für den deutschen Straßenverkehr (oben) und einer Minderung von 15 % für alle europäischen Emissionen außer Deutschland (unten)

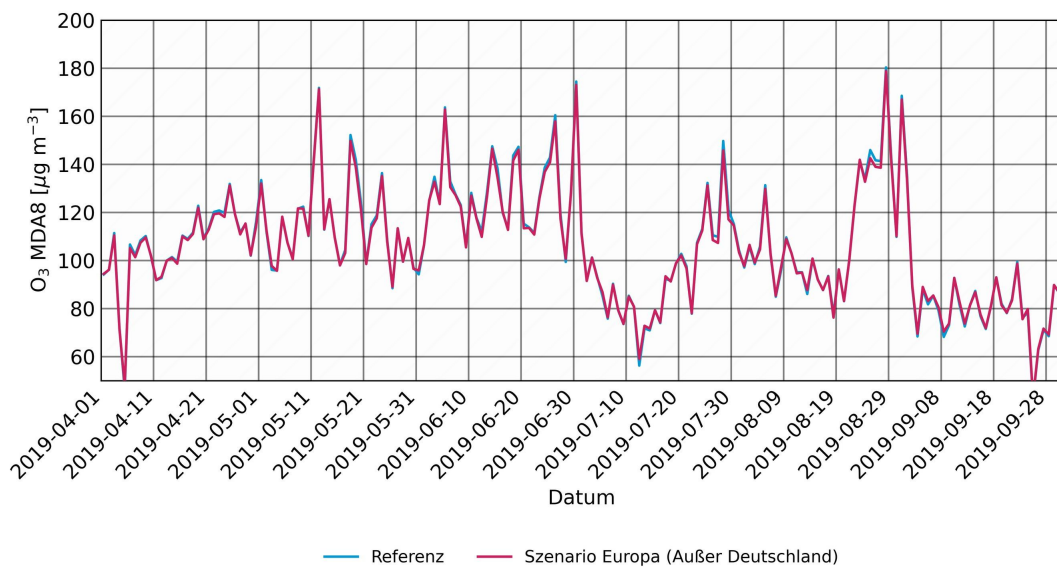
O₃ MDA8 [$\mu\text{g m}^{-3}$]

Waldhof (DEUB005)



O₃ MDA8 [$\mu\text{g m}^{-3}$]

Waldhof (DEUB005)

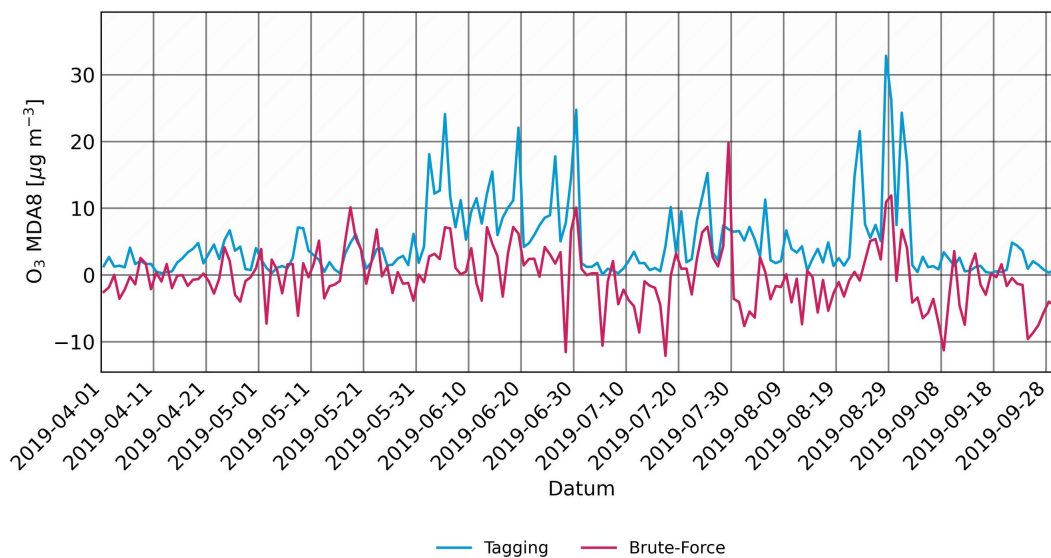


Quelle: eigene Darstellung (TNO)

Abbildung 7: MDA8-Werte für O₃ aus dem deutschen Straßenverkehr (oben) und aus anthropogenen europäischen (nicht deutschen) Emissionen (unten). Blau: Mit NO_x-Kennzeichnung gekennzeichnete Werte. Rot: Brute-Force-Methode (Referenzsimulation minus Szenario)

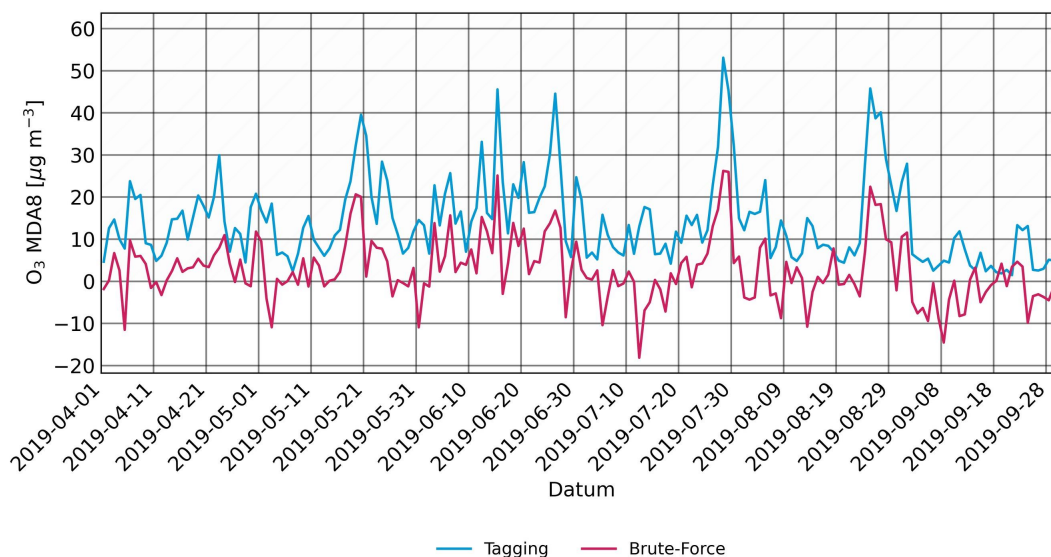
O₃ MDA8 [$\mu\text{g m}^{-3}$] von DE Straßenverkehr

Waldhof (DEUB005)



O₃ MDA8 [$\mu\text{g m}^{-3}$] von Europa (Außer Deutschland)

Waldhof (DEUB005)



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

3.4.2 VOC-Kennzeichnung

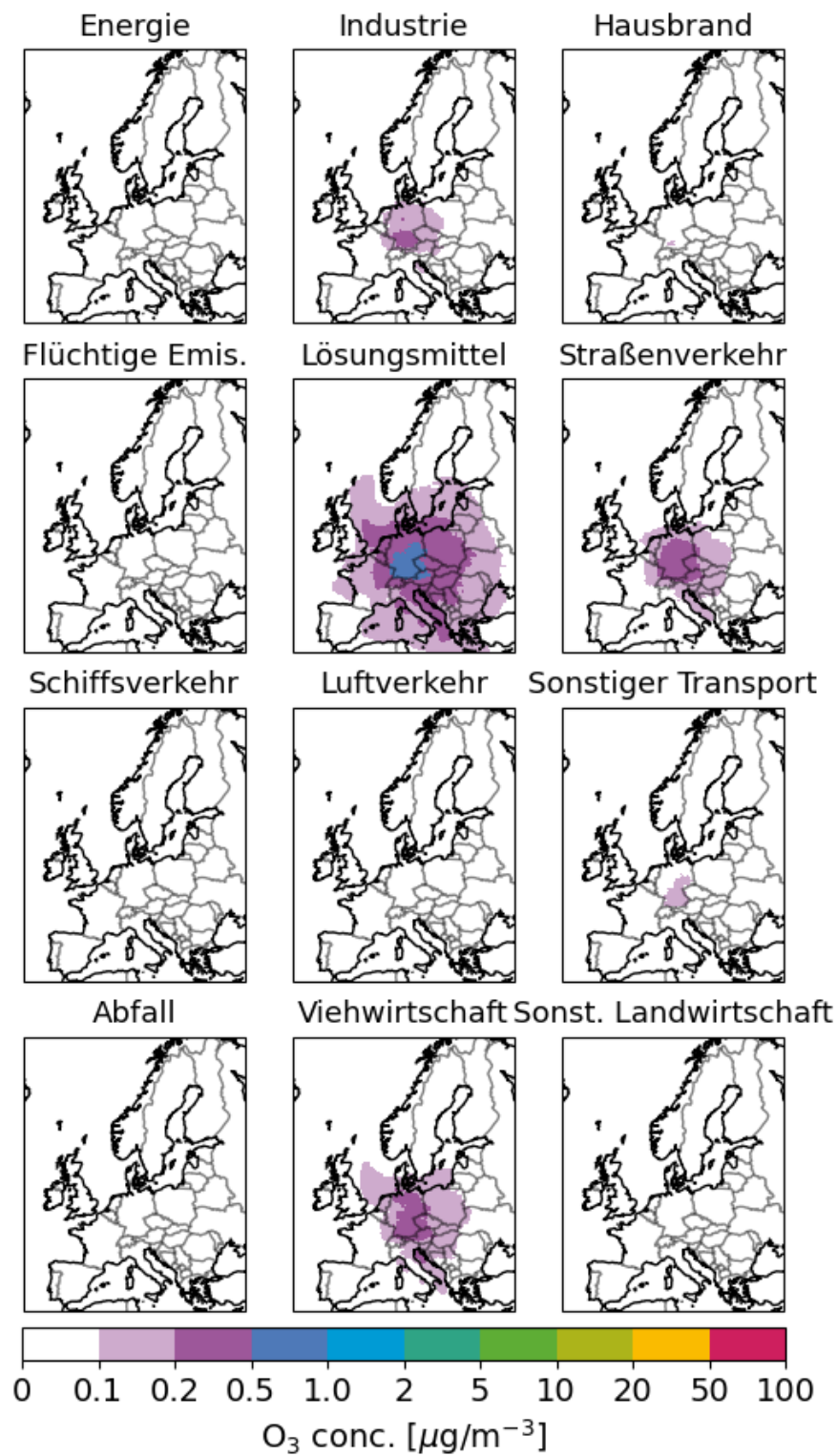
3.4.2.1 Karten

In diesem Abschnitt wechseln wir die Perspektive. Abbildung 8, Abbildung 9 und Abbildung 10 enthalten eine vollständige Übersicht über die Beiträge zu den O₃-Konzentrationen, die mit der

VOC-Kennzeichnungstechnik ermittelt wurden. Insgesamt sind die simulierten Gesamtkonzentrationen von Ozon identisch mit denen, die mit der NO_x-Kennzeichnung ermittelt wurden, da die Simulationen mit denselben Gesamtemissionen und Randbedingungen durchgeführt wurden. Die Simulation mit VOC-Kennzeichnung zeigt, dass die Beiträge anthropogener Quellen für die meisten Kennzeichnungen deutlich geringer sind als die NO_x-gekennzeichneten O₃-Beiträge. Dies liegt daran, dass anthropogene VOC-Emissionen im Vergleich zu biogenen VOC-Emissionen und VOC, die von außerhalb des Modellgebiets transportiert werden, gering sind. Die relevanten Sektoren aus VOC-Sicht unterscheiden sich von denen aus NO_x-Sicht. Hier weisen die Lösungsmittelverwendung, die Landwirtschaft und der Straßenverkehr die größten Beiträge der deutschen Sektoren auf. Für einzelne Länder zeigen die O₃-Beiträge erwartete Muster, wobei beispielsweise die Konzentrationen aus Frankreich in Frankreich am höchsten sind. Da biogene VOC-Emissionen die größte Quelle von VOC sind, hat diese Kennzeichnung den größten Beitrag aller Emissionen innerhalb der Domäne. Darüber hinaus sind biogene VOC-Emissionen im Sommer am höchsten, was aufgrund der Sonneneinstrahlung auch der Zeitraum mit der größten Ozonproduktion ist. Insgesamt erhöht dies den Beitrag biogener VOC zur Ozonproduktion.

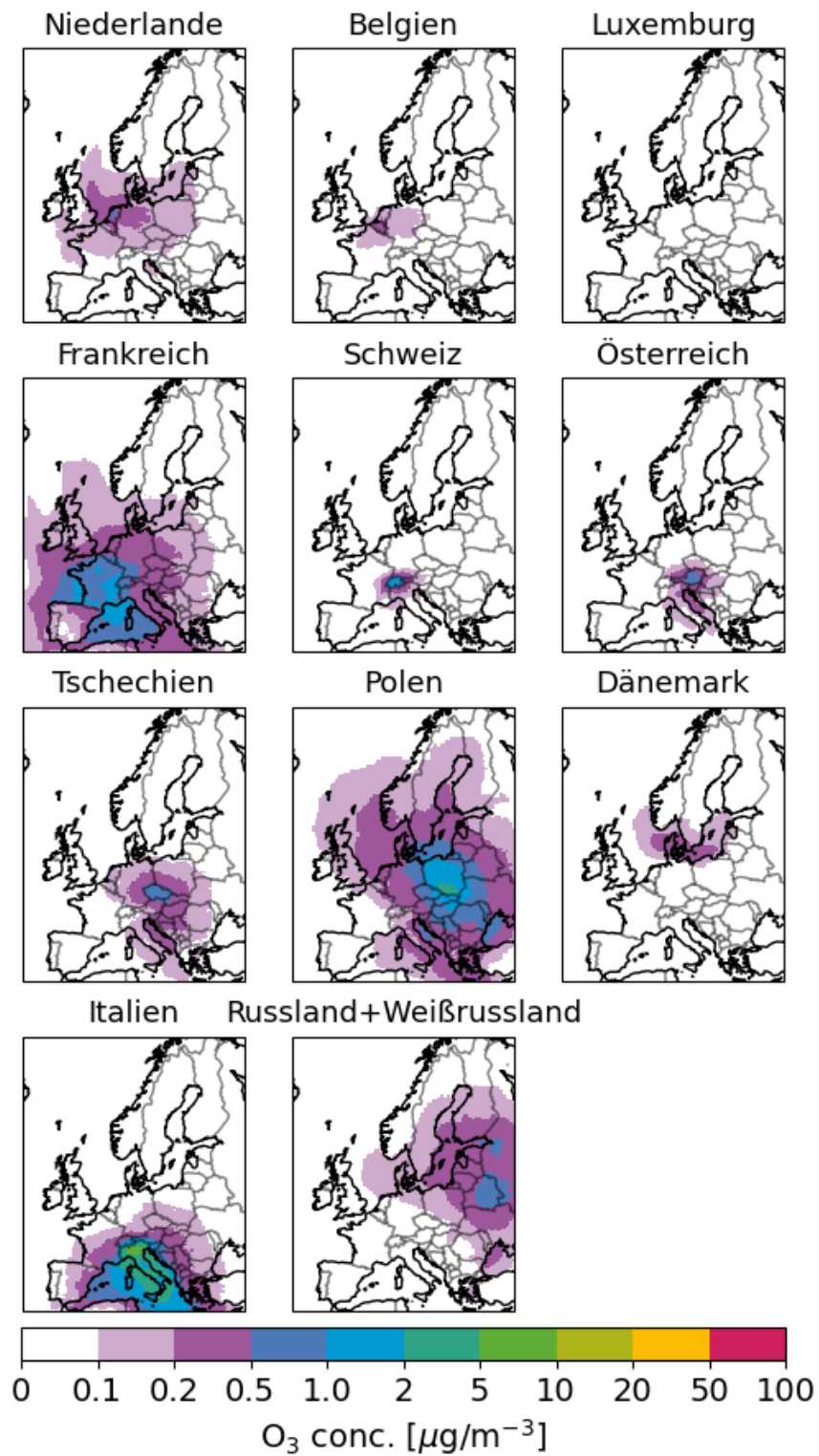
In der aktuellen Konfiguration bestehen die mit „Interkontinental“ gekennzeichneten O₃-Konzentrationen aus zwei Teilen. Erstens erhält Ozon, das direkt als Ozon in den Bereich advektiert wird, diese Kennzeichnung. Zweitens wird Ozon, das innerhalb des Gebiets entsteht und aus von außen transportierten VOC stammt, ebenfalls als „interkontinental“ gekennzeichnet. Dies liegt daran, dass die VOC in der ursprünglichen Kennzeichnung, die den Kohlenstoffatomfluss verfolgt, als „interkontinental“ gekennzeichnet wurden und somit auch das entstandene Ozon die Kennzeichnung „Interkontinental“ erhält. Um die Bedeutung des direkten Zuflusses und des indirekt innerhalb des Gebiets gebildeten Ozons zu bewerten, wurde eine zusätzliche Simulation durchgeführt, die im nächsten Abschnitt erläutert wird.

Abbildung 8: Modellierte O₃-Konzentrationen aus deutschen Quellen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungsmethode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS



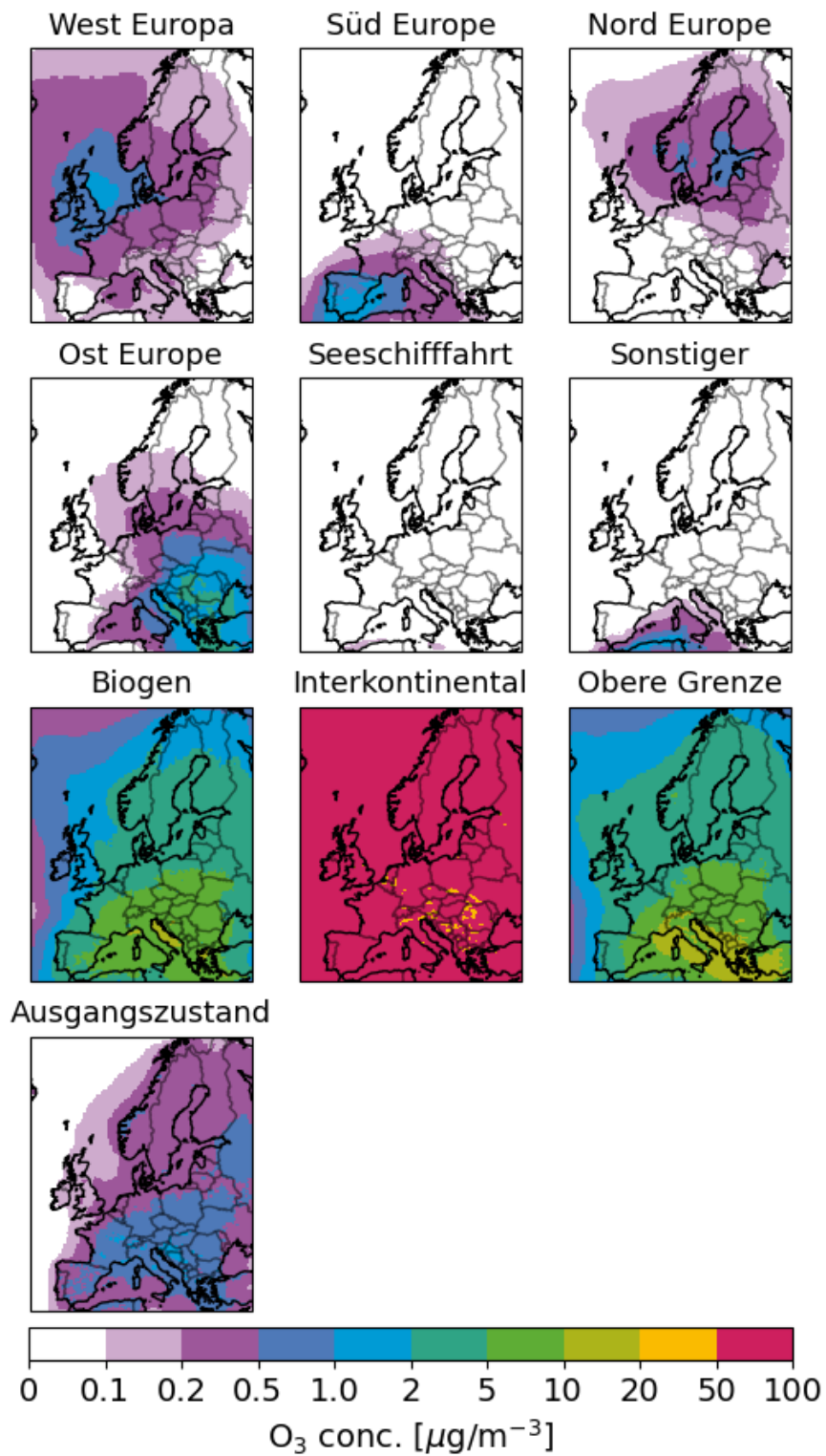
Quelle: eigene Darstellung (TNO)

Abbildung 9: Modellierte O₃-Konzentrationen aus Nachbarländern, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungs-methode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

Abbildung 10: Modellerte O₃-Konzentrationen aus sonstigen Quellen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungs-methode, in der Testsimulation in LOTOS-EUROS

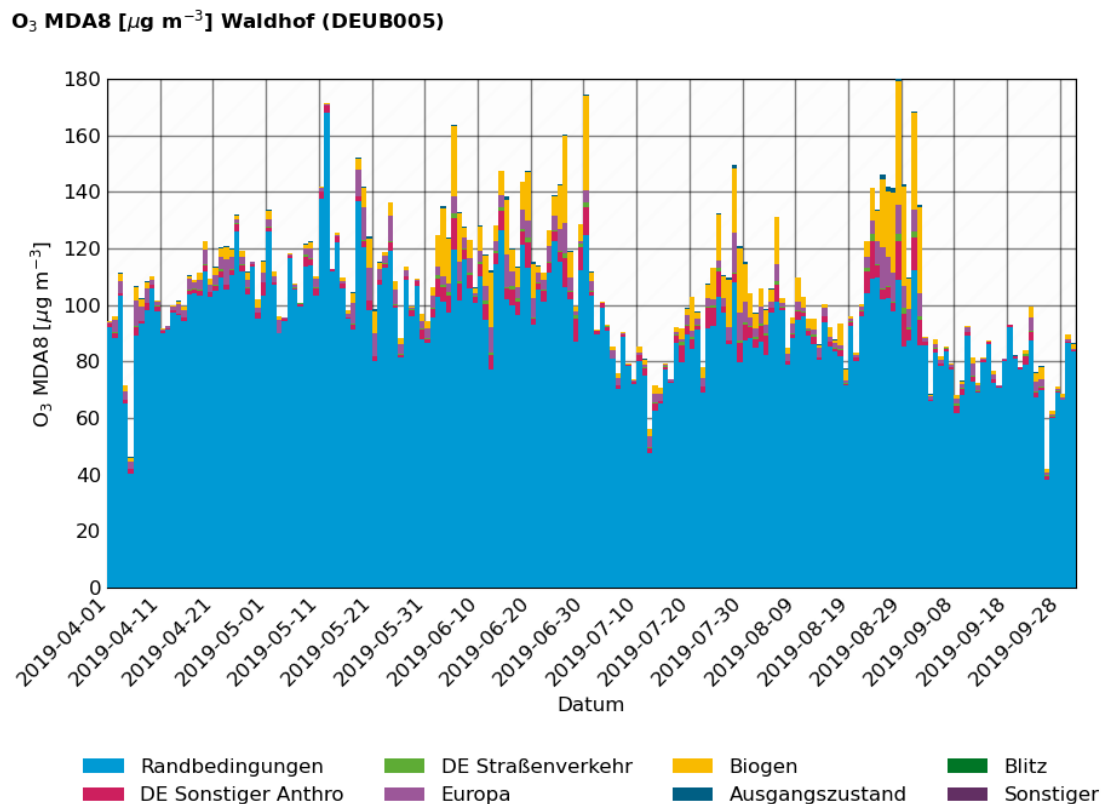


Quelle: eigene Darstellung (TNO)

3.4.2.2 Zeitreihen

Abbildung 11 enthält modellierte Zeitreihen von VOC-gekennzeichnetem Ozon aus verschiedenen Kennzeichnungen für den Standort Waldhof. Diese Zeitreihen zeigen, dass die Randbedingungen den größten Teil zum Ozon am Standort Waldhof beitragen. Daneben wurden einige wenige Episoden mit einem signifikanten Beitrag biogener VOC-Emissionen zur Ozonbildung festgestellt.

Abbildung 11: Zeitreihen der MDA8-Werte für O₃ für die Station Waldhof



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

3.4.2.3 Spezifizierung der Randbedingungen und der anthropogenen Kennzeichnungen

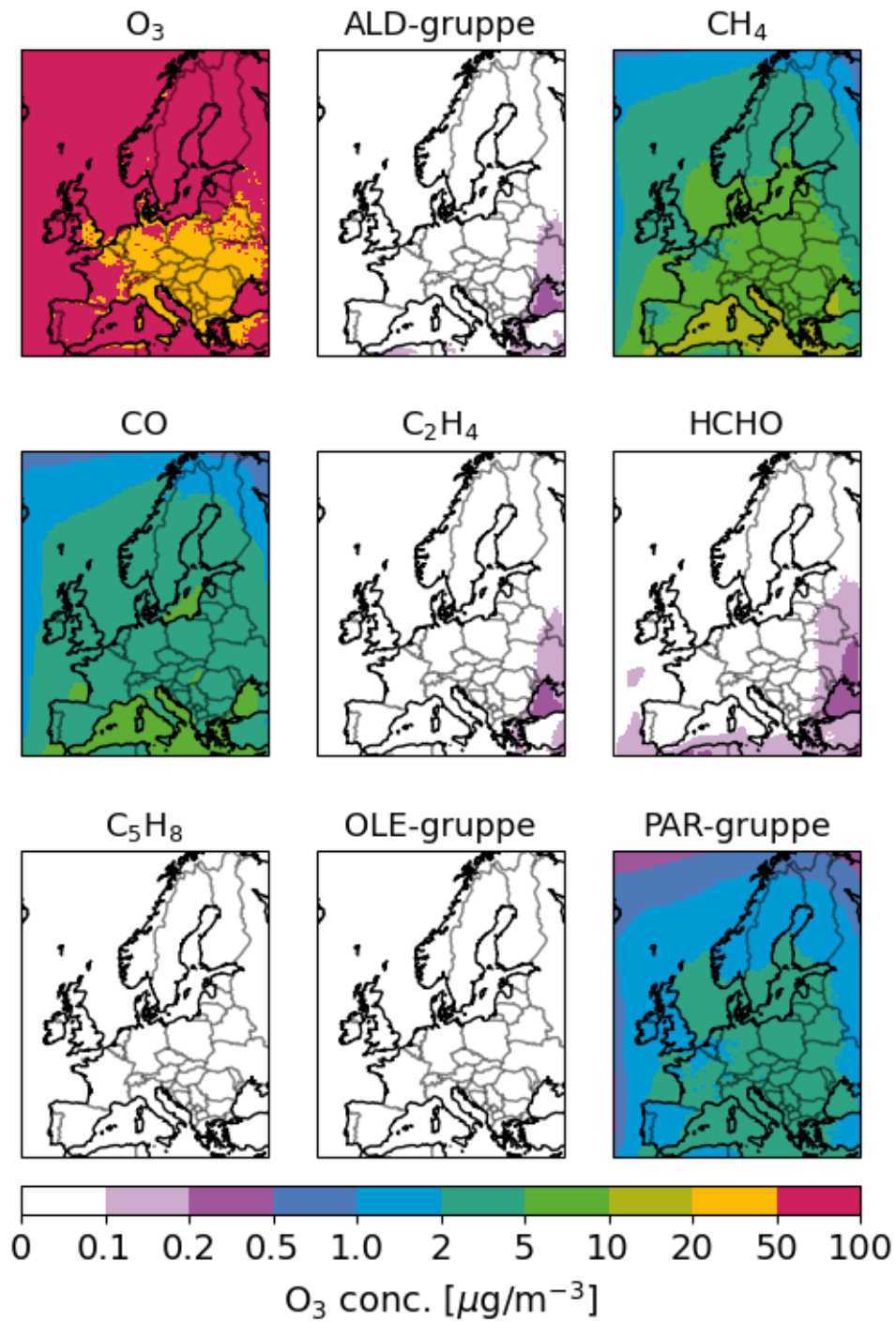
Aufgrund der oben genannten Erfahrungen wurden mehrere Anpassungen an der Definition der VOC-Kennzeichnungsstrategien vorgenommen. Die ursprünglich verwendete Definition ergab große Beiträge einiger weniger Quellen, die für diese zusätzliche Simulation unterteilt wurden. Die angepassten Kennzeichnungen sind in Abbildung 12 zu sehen.

Der große Beitrag der Modellrandbedingung kann, wie bereits in Abschnitt 3.4.2.1 erwähnt, in zwei Teile aufgeteilt werden. Diese beiden Teile enthalten das in den Bereich advektierte Ozon und die Beiträge der Ozonbildung aus langlebigen VOC, die in den Bereich advektiert werden. Es wurde eine Simulation durchgeführt, bei der der Ozonzufluss als Ozon über die Modellgrenze hinein gekennzeichnet wurde („boundary-O₃“). Gleichzeitig wurde das aus dem Zufluss von VOC-Verbindungen gebildete Ozon separat verfolgt. Dies umfasst die Produktion aus acht organischen Verbindungen, die aus den Domängengrenzen stammen: CH₄, CO, HCHO, C₂H₄, C₅H₈, die PAR-Gruppe (Paraffin-Kohlenstoffbindung), die OLE-Gruppe (Olefinische Kohlenstoffbindung) und die ALD-Gruppe (Aldehydische Kohlenstoffbindung). Für jede dieser Verbindungen wird der Beitrag zur Ozonproduktion im Modellgebiet verfolgt und als „boundary-CH₄“, „boundary-ALD“ usw. bezeichnet. In Abbildung 12 sind Ergebnisse dargestellt, die zeigen,

dass neben direktem Ozon aus der Grenze die wichtigsten VOC-Verbindungen aus den Grenzen, die zur Ozonbildung innerhalb des Gebiets beitragen, CH₄, CO und die PAR-Gruppe sind. So erklärt beispielsweise die Oxidation eines kleinen Teils der hemisphärischen Hintergrundkonzentration von Methan zwischen 5 und 10 µg/m³ des Ozons im Sommer in Deutschland. Eine weitere wichtige Erkenntnis ist, dass der Beitrag von direktem Ozon fast identisch ist mit dem Beitrag von interkontinentalem Ozon unter Verwendung der NO_x-Kennzeichnung. Wie bereits im Abschnitt zur NO_x-Kennzeichnung erwähnt, ist der Zufluss von Stickstoffverbindungen sehr gering. Daher wird diese Kennzeichnung unter Verwendung der NO_x-Kennzeichnung von dem direkten O₃-Zufluss dominiert, der hier in perfekter Übereinstimmung mit der direkten O₃-Kennzeichnung unter Verwendung der VOC-Kennzeichnung steht.

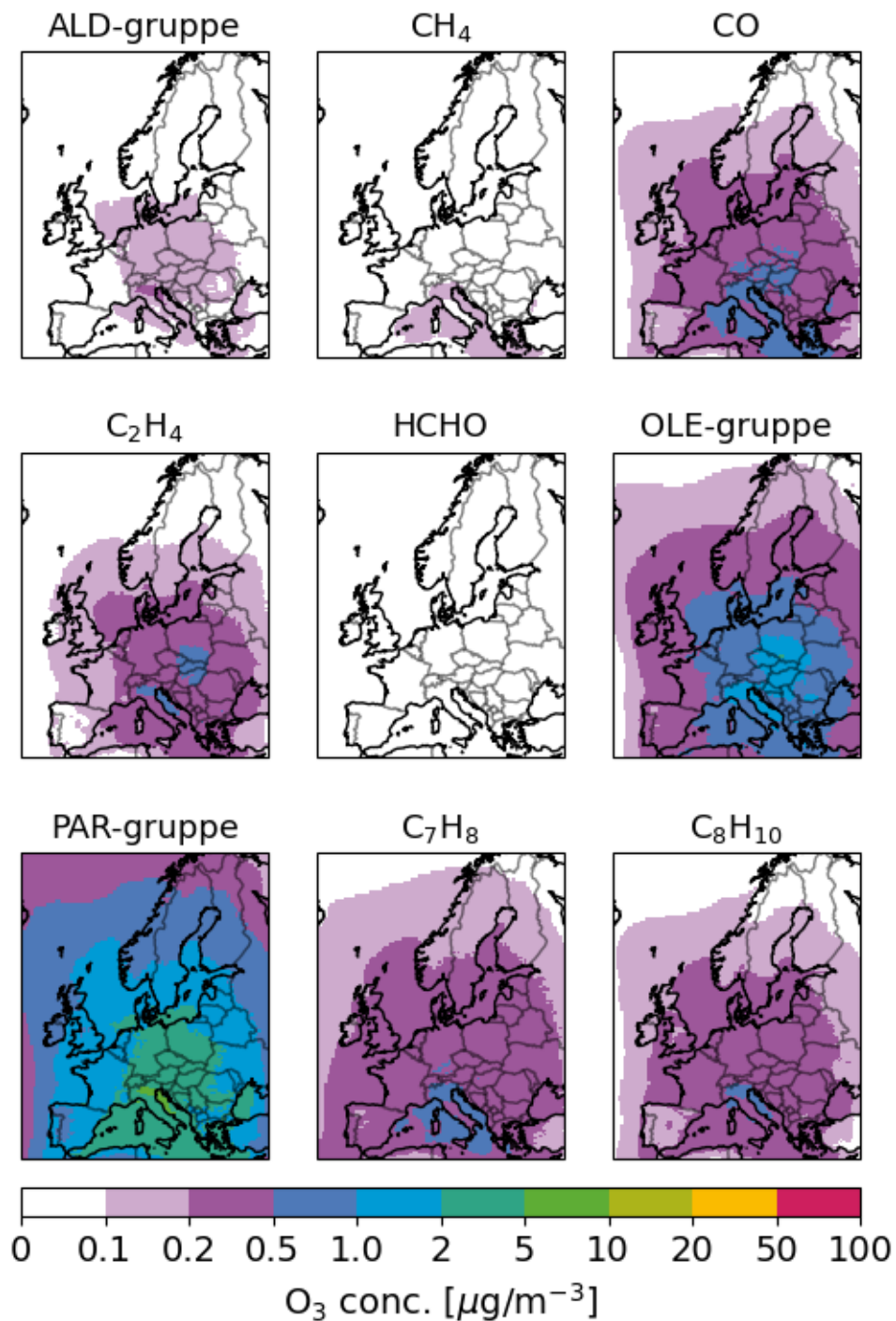
Die anthropogenen Kennzeichnungen wurden ebenfalls angepasst. Die Produktion von Ozon durch organische Verbindungen, die im Modellbereich emittiert werden, wird als anthropogener Beitrag von Verbindungen gekennzeichnet (z. B. anthropogenes CH₄). In der ersten Testsimulation waren diese Beiträge Teil der anthropogenen Kennzeichnungen (Sektor/Land). In der neuen Simulation werden sie verbindungs-spezifischen anthropogenen Kennzeichnungen (CH₄/CO/HCHO/...) ohne Angabe eines Sektors oder Landes zugeordnet. Die resultierenden O₃-Konzentrationen sind in Abbildung 13 dargestellt. Die größten Beiträge finden sich für die PAR-Gruppe und die OLE-Gruppe, aber auch CO und C₂H₄ haben einen relativ großen Beitrag zu O₃.

Abbildung 12: Konzentrationen von O₃ aus Randbedingungen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnung-Technik, aus verschiedenen Komponenten, die über die Modellgrenzen kommen



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

Abbildung 13: Konzentrationen von O₃ aus anthropogenen Quellen, gekennzeichnet mit der VOC-Kennzeichnungsmethode, aus verschiedenen Komponenten, die aus anthropogenen VOC-Emissionen stammen



Quelle: eigene Darstellung (TNO)

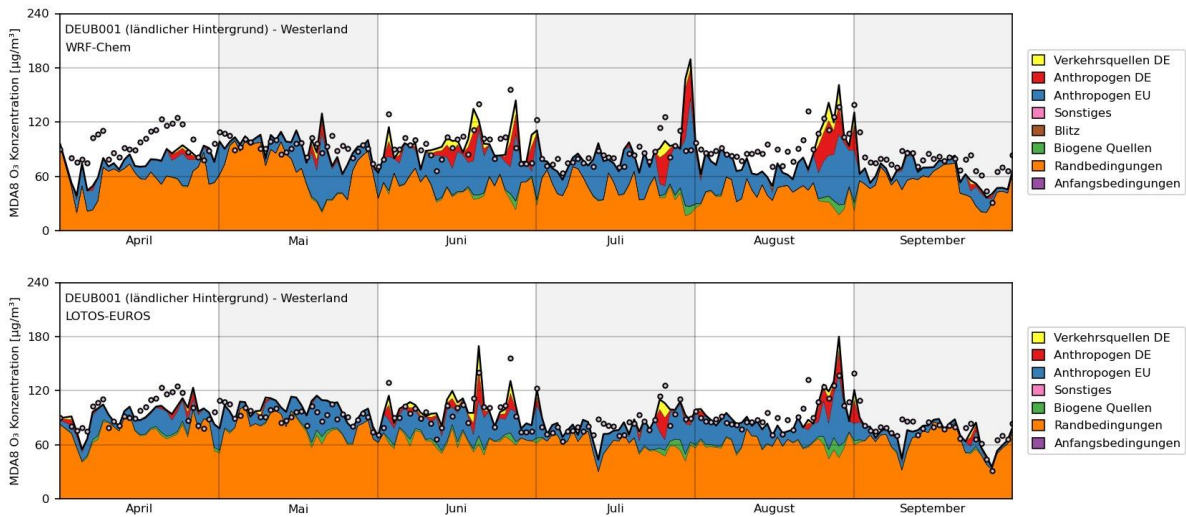
3.5 Vergleich der LOTOS-EUROS-Testsimulationen mit WRF-Chem

3.5.1 Vergleich von NO_x-gekennzeichneten Testläufen

3.5.1.1 Ländliche Hintergrundmessstationen

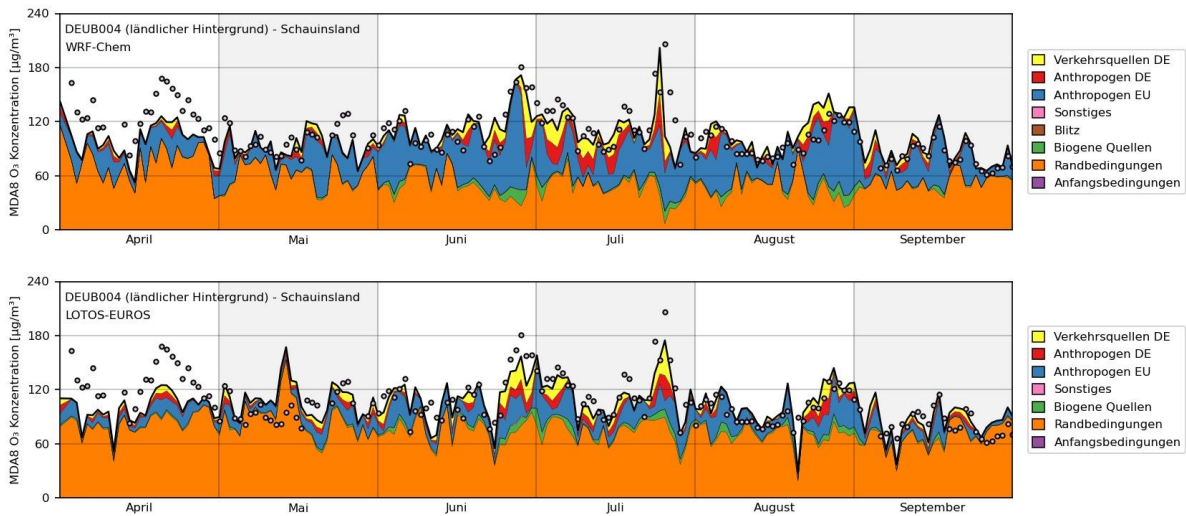
Vergleiche des MDA8-Ozons zwischen den NO_x-gekennzeichneten Testläufen aus WRF-Chem und LOTOS-EUROS werden an ausgewählten ländlichen Hintergrundmessstationen (zusammen mit den Messwerten) in Abbildung 14, Abbildung 15 und Abbildung 16 dargestellt.

Abbildung 14: Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO_x-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB001 (Westerland)



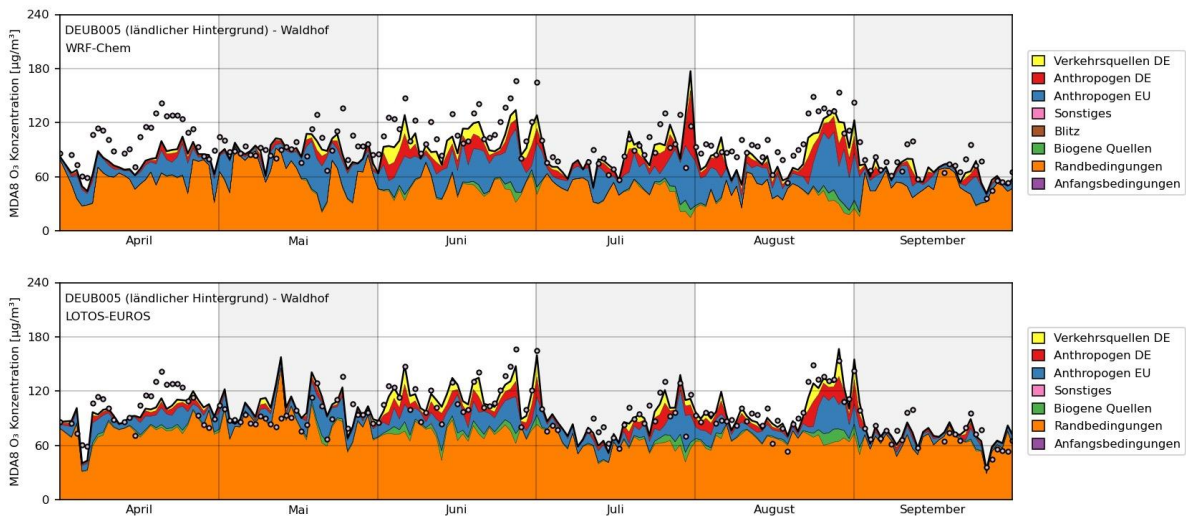
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 15: Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO_x-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB004 (Schausland)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 16: Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO_x-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB005 (Waldhof)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

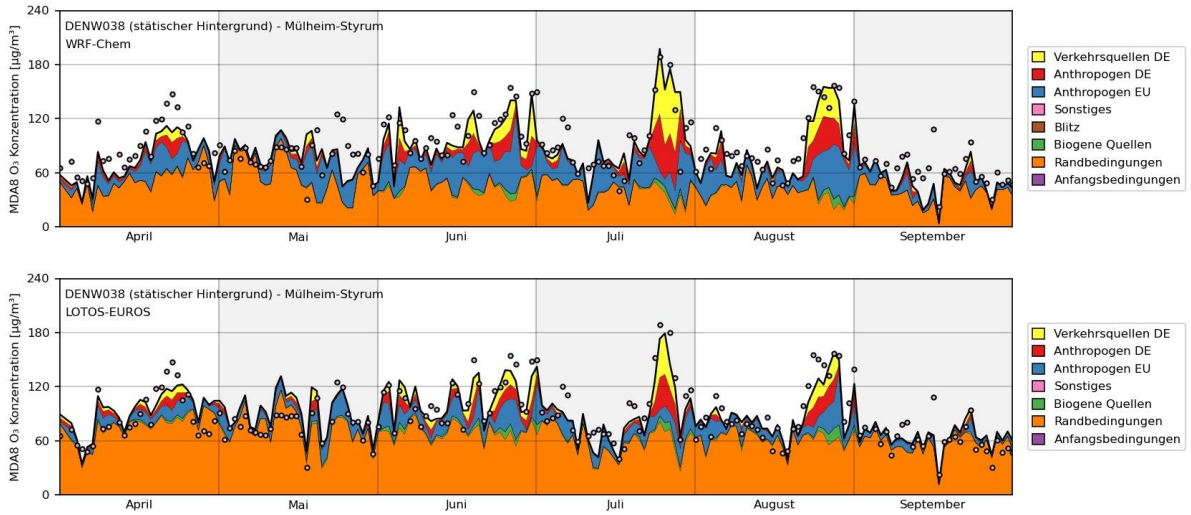
Beide Modelle stimmen relativ gut mit den Messungen überein, wie aufgrund ihrer im OzonEval-Projekt nachgewiesenen guten Leistung zu erwarten war. Beide Modelle zeigen einen starken Einfluss von Ozon, das von der seitlichen Modellgrenze transportiert wird, und einen generell stärkeren Einfluss von anthropogenen NO_x-Emissionen aus anderen europäischen Ländern auf das Ozon an diesen ländlichen Hintergrundstationen als den Einfluss von anthropogenen NO_x-Emissionen aus Deutschland. Während Episoden mit hohen Ozonkonzentrationen in den Sommermonaten zeigen beide Modelle eine stärkere Rolle von NO_x-Vorläufern aus deutschen und europäischen anthropogenen NO_x-Emissionen.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Modellen ist der relative Beitrag des Grenzflächenozons zum gesamten modellierten Ozon. Während beide Modelle tendenziell einen ähnlichen Beitrag des Grenzflächenozons zum Gesamt Ozon im April und September simulieren, sind zwischen Mai und August Unterschiede zu erkennen. In diesen Monaten zeigt WRF-Chem einen geringeren Beitrag des Grenzflächenozons als LOTOS-EUROS, der durch einen höheren Beitrag von Ozon aus anthropogenen NO_x-Quellen in Europa ausgeglichen wird.

3.5.1.2 Städtische Hintergrundmessstationen

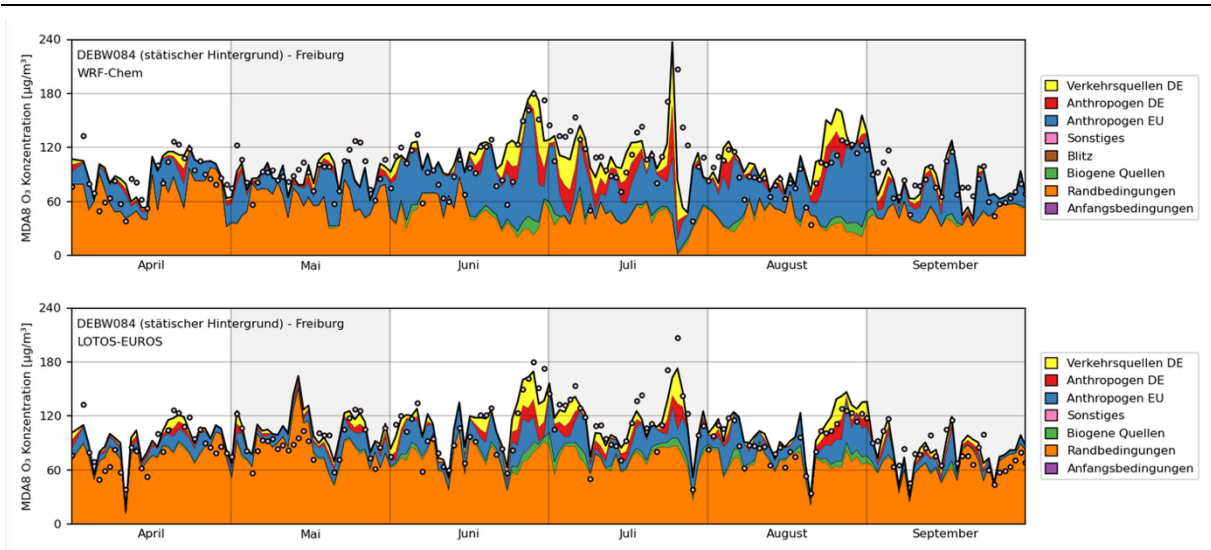
Vergleiche des MDA8-Ozons zwischen den NO_x-gekennzeichneten Testläufen von WRF-Chem und LOTOS-EUROS werden an ausgewählten städtischen Hintergrundmessstationen (zusammen mit den Messwerten) in Abbildung 17, Abbildung 18 und Abbildung 19 dargestellt.

Abbildung 17: Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO_x-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DENW038 (Mühlheim-Styrum)



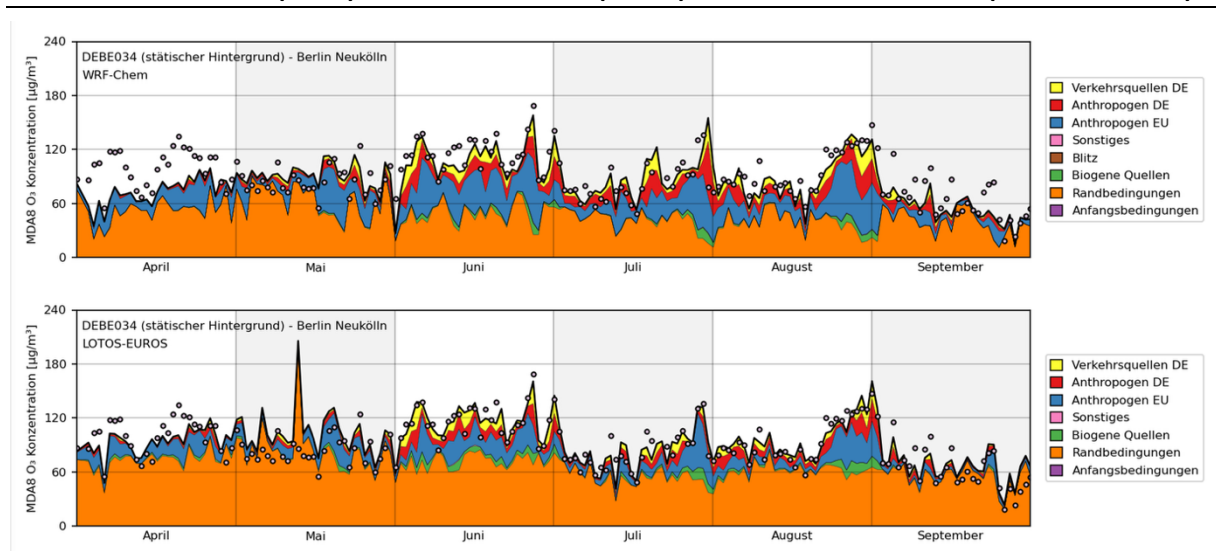
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 18: Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO_x-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBW084 (Freiburg)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 19: Vergleich von MDA8-Ozon aus den NO_x-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBE034 (Berlin Neukölln)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

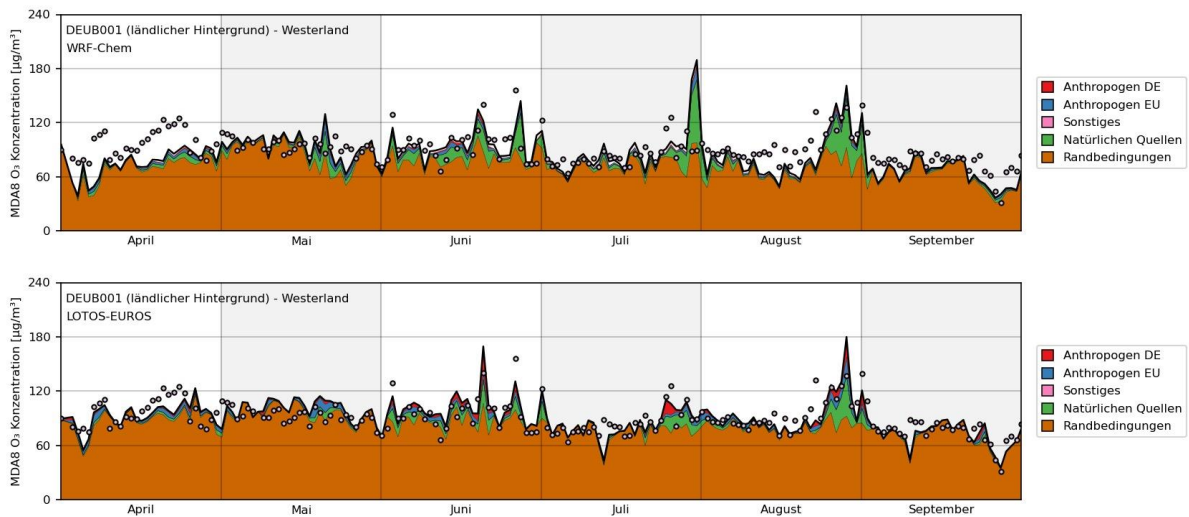
Die allgemeinen Merkmale des Vergleichs zwischen den NO_x-gekennzeichneten Testläufen beider Modelle an ausgewählten städtischen Hintergrundstationen ähneln den Merkmalen, die an den ländlichen Hintergrundstationen beobachtet wurden. Höhere Ozonwerte in beiden Modellen stehen in Zusammenhang mit einem Anstieg des Anteils deutscher und nichtdeutscher europäischer NO_x-Quellen am gesamten simulierten Ozon. In WRF-Chem gehen Perioden mit höheren Ozonwerten auch mit einem geringeren Beitrag des Ozons aus der Grenzschicht einher als in LOTOS-EUROS, was durch eine stärkere Ozonproduktion aus NO_x-Quellen innerhalb des Modellgebiets kompensiert wird.

3.5.2 Vergleich von VOC-gekennzeichneten Testläufen

3.5.2.1 Ländliche Hintergrundmessstationen

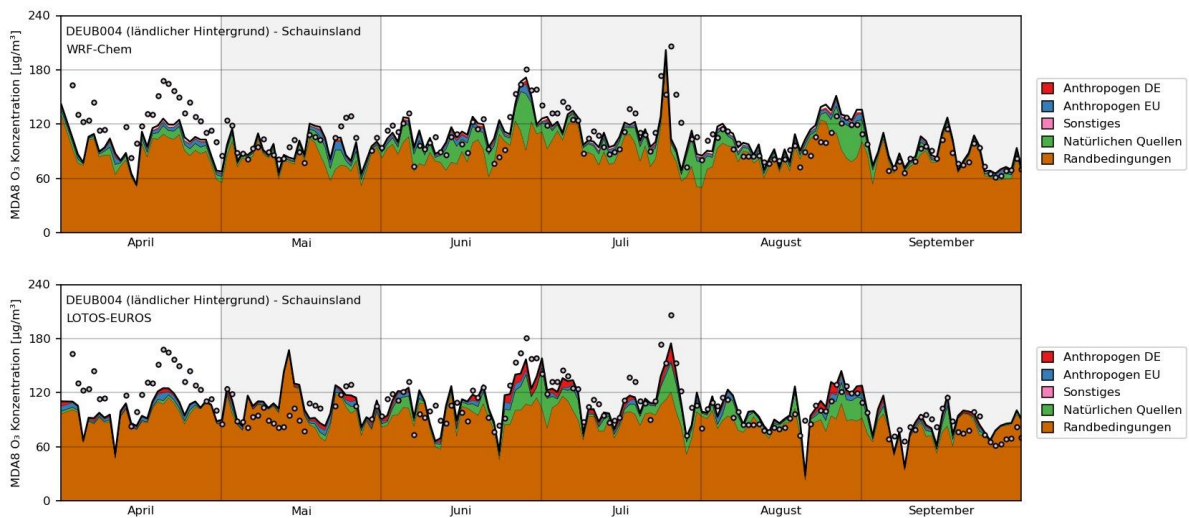
Vergleiche des MDA8-Ozons zwischen den VOC-gekennzeichneten Testläufen von WRF-Chem und LOTOS-EUROS werden an ausgewählten ländlichen Hintergrundmessstationen (zusammen mit den gemessenen Werten) in Abbildung 20, Abbildung 21 und Abbildung 22 dargestellt.

Abbildung 20: Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB001 (Westerland)



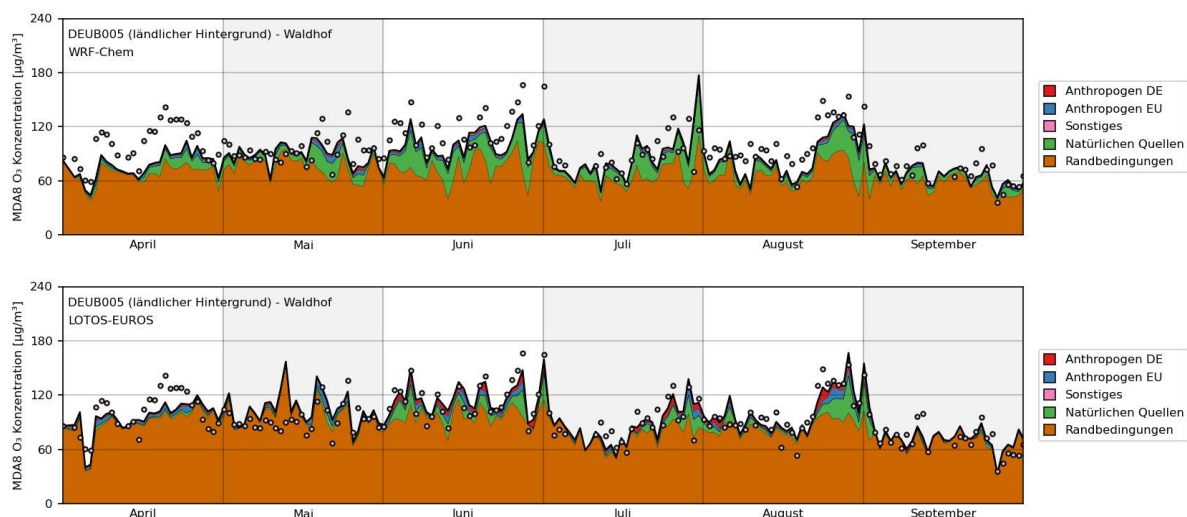
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 21: Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB004 (Schausland)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 22: Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEUB005 (Waldhof)



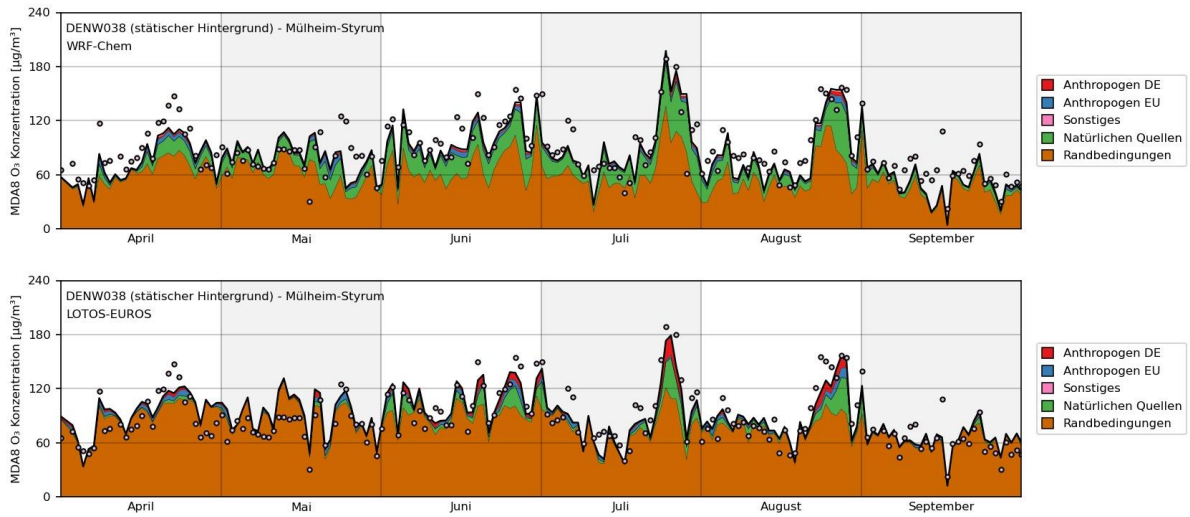
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Das auffälligste Merkmal der VOC-gekennzeichneten Testläufe in beiden Modellen ist der sehr hohe Beitrag der lateralen Modellgrenzen zum simulierten Ozon. Dies hängt mit dem Transport von Methan durch die Grenzen in den Modellbereich zusammen. Transportiertes Methan wird als von der Grenze stammend gekennzeichnet, und diese Kennzeichnung wird an das Ozon weitergegeben, wenn bei der Methanoxidation Ozon entsteht. Beide Modelle zeigen auch einen sehr geringen Beitrag anthropogener VOC aus Europa (einschließlich Deutschland) zum simulierten Ozon. Biogene VOC-Emissionen aus Europa tragen stärker zum modellierten Ozon bei als anthropogene VOC aus Europa.

3.5.2.2 Städtische Hintergrundmessstationen

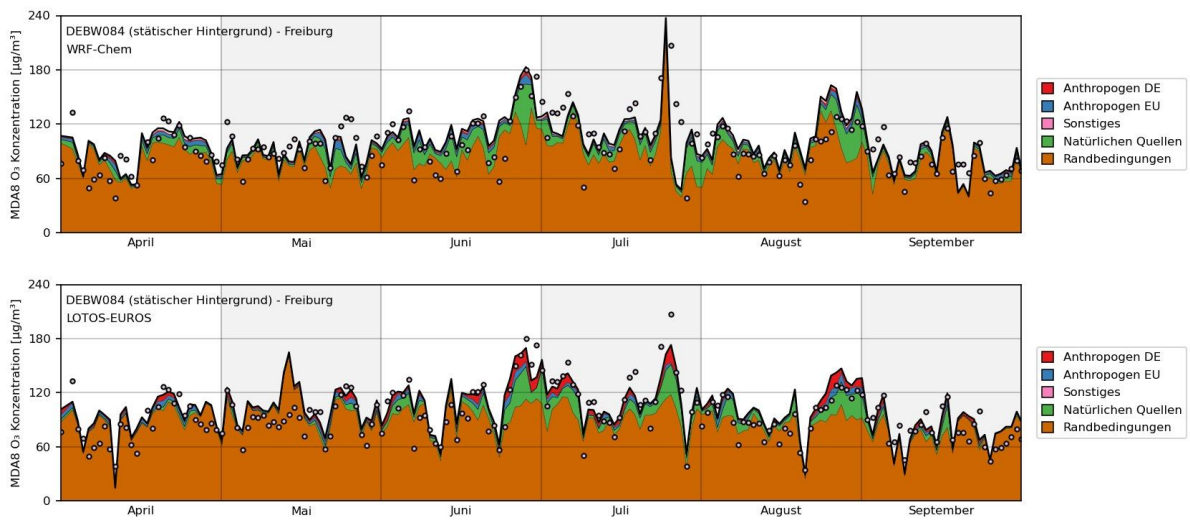
Vergleiche des MDA8-Ozons zwischen den VOC-gekennzeichneten Testläufen von WRF-Chem und LOTOS-EUROS werden an ausgewählten städtischen Hintergrundmessstationen (zusammen mit den Messwerten) in Abbildung 23, Abbildung 24 und Abbildung 25 dargestellt.

Abbildung 23: Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DENW038 (Mühlheim-Styrum)



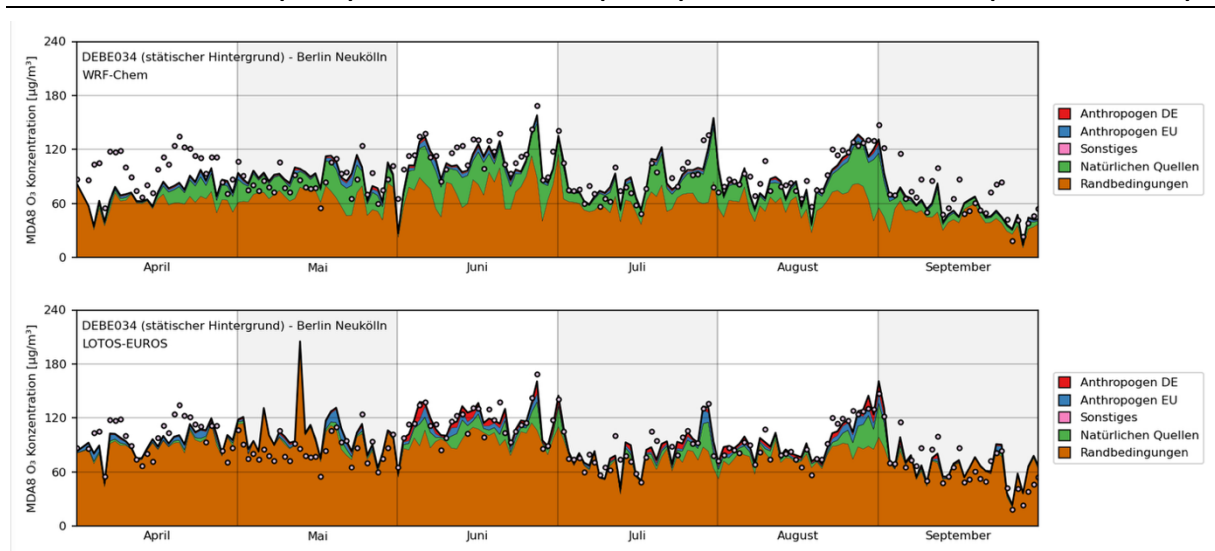
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 24: Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBW084 (Freiburg)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 25: Vergleich von MDA8-Ozon aus den VOC-gekennzeichneten Testläufen für WRF-Chem (oben) und LOTOS-EUROS (unten) an der Station DEBE034 (Berlin Neukölln)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

An der städtischen Hintergrundstation dominiert in beiden Modellen weiterhin der Grenzbeitrag zum simulierten Ozon. Während höherer Ozon-Episoden wird der Beitrag biogener VOC größer, aber der Beitrag anthropogener VOC zum simulierten Ozon bleibt in beiden Modellen gering.

3.6 Schlussfolgerungen aus der ersten Testsimulation

Die NO_x- und VOC-Kennzeichnungsmethoden wurden in das LOTOS-EUROS-Modell implementiert und erfolgreich zur Berechnung der Quellenbeiträge von Ozon für den Sommer 2019 angewendet. Beide Methoden liefern Ergebnisse, die den Erwartungen entsprechen. Darüber hinaus zeigen diese ersten Simulationen bereits die Bedeutung bestimmter Quellsektoren und -prozesse. Bei der VOC-Kennzeichnungsmethode schien beispielsweise der Beitrag der Randbedingungen im Vergleich zu dem auf der NO_x-Kennzeichnungsmethode höher, aber da diese Kennzeichnung unterteilt wurde, konnten relevante Informationen über die Bildung von Ozon aus der VOC-Kennzeichnung abgeleitet werden, nämlich der Beitrag von transportierten VOC, insbesondere Methan und dessen Oxidationsprodukten.

Da das System vollständig in das bestehende Kennzeichnungssystem in LOTOS-EUROS integriert ist, lässt sich zudem ohne großen Aufwand eine große Flexibilität bei der Definition unterschiedlicher Kennzeichnungskonfigurationen realisieren. Da das System hinsichtlich der Rechenleistung aufwändiger ist, darf die Anzahl der Kennzeichnungen nicht zu groß sein, d. h. in der Regel maximal 35.

Im Vergleich zum etablierten Kennzeichnungssystem in WRF-Chem ist der Beitrag von Ozon aus der lateralen Modellgrenze in LOTOS-EUROS höher. Beide Modelle simulieren jedoch vergleichbare Gesamtmengen an Ozon. Der zusätzliche Verlust an Grenzflächenozon in WRF-Chem wird durch eine erhöhte chemische Produktion von Ozon aus lokalen NO_x-Quellen ausgeglichen. Dies deutet auf eine aktivere Photochemie in WRF-Chem im Vergleich zu LOTOS-EUROS hin.

3.7 Aufbau der Produktionssimulationen

Die Produktionssimulationen sind bis auf die folgenden Unterschiede identisch mit den Testsimulationen:

- ▶ Die Liste der Kennzeichnungen für die NO_x- und VOC-Kennzeichnung wurde so ausgewählt, dass sie alle wesentlichen Einflüsse auf das bodennahe Ozon in Deutschland abdeckt, basierend auf den Ergebnissen des LOTOS-EUROS-Testlaufs, wie in den Abschnitten 3.3 und 3.4 beschrieben.
- ▶ Die Randbedingungen werden aus einem Lauf des globalen CAM-chem-Modells unter Verwendung von NO_x- und VOC-Kennzeichnung übernommen, wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben.
- ▶ Anstelle des im Testlauf verwendeten einzelnen Kennzeichnungen für den Ozonzufluss von der seitlichen Grenze wird ein Satz aggregierter Kennzeichnungen ausgewählt, um die wichtigsten Quellen des hemisphärischen Hintergrundozons für den NO_x-gekennzeichneten Fall darzustellen.

3.7.1 Kennzeichnung der endgültigen Simulationen

3.7.1.1 Anfängliche NO_x-Kennzeichnung

In Abschnitt 3.4.1 wird gezeigt, dass der Satz von Kennzeichnungen aus der Testsimulation alle Regionen gut abdeckt. Alle deutschen GNFR-Sektoren und die Nachbarländer werden separat gekennzeichnet. Für keines dieser Kennzeichnungen ist der Beitrag so groß, dass eine weitere Trennung erforderlich wäre. Außerdem haben die Beiträge der kombinierten Länderkennzeichnungen keinen sehr großen Einfluss auf den Ozongehalt in Deutschland. Alle Beiträge der kombinierten Länder zu Ozon in Deutschland liegen unter 2 µg/m³ in Deutschland, was nur 2 % der Gesamtmenge entspricht. Darüber hinaus ist der Beitrag Dänemarks und Luxemburgs sehr gering, sodass diese Kennzeichnungen mit Nordeuropa bzw. Belgien kombiniert werden können. Auch Italien hat einen Beitrag von weniger als 0,5 µg/m³ in Deutschland, sodass diese Kennzeichnung mit anderen südosteuropäischen Ländern kombiniert wird. Der Beitrag von außerhalb Europas, der innerhalb der Modelldomäne emittiert wird, stammt nur aus Nordafrika und wird zur Kennzeichnung mit Spanien und Portugal hinzugefügt.

In der endgültigen Simulation verwenden die Modelle Randbedingungen aus einem globalen Modell CAM-CHEM, das ebenfalls eine Kennzeichnungsmethode für Ozon verwendet. In dieser Simulation werden Kennzeichnungen für die Ozonproduktion aus anthropogenen Emissionen in Europa, außerhalb Europas, aus natürlichen BVOC-Emissionen und stratosphärischem Ozon definiert. Daher wird die Grenzbezeichnung in der endgültigen Simulation in diese vier Bezeichnungen aufgeteilt. Der Gesamtbestand an Bezeichnungen wird somit auf 30 festgelegt und in Liste 2 aufgeführt. Diese Bezeichnungen werden sowohl vom Modell LOTOS-EUROS als auch vom Modell WRF-CHEM verwendet.

Liste 2: Liste der in der endgültigen Simulation mit NO_x-Kennzeichnung verwendeten Kennzeichnungen

- | | |
|--------------------------------------|--|
| ▶ Deutschland | ● Lösungsmittel (5, DEUGNFRE) |
| ● Energiesektor (1, DEUGNFRA) | ● Straßenverkehr (6, DEUGNFRF) |
| ● Industrie (2, DEUGNFRB) | ● Schifffahrt (7, DEUGNFRG) |
| ● Haushalte (3, DEUGNFRC) | ● Luftfahrt (8, DEUGNFRH) |
| ● Flüchtige Emissionen (4, DEUGNFRD) | ● Sonstige Transportleistungen (9, DEUGNFRI) |

- Abfall (10, DEUGNFRJ)
- Landwirtschaft Viehzucht (11, DEUGNFRK)
- Landwirtschaft Sonstiges (12, DEUGNFRL)
- ▶ Niederlande (13, NLD)
- ▶ Frankreich (14, FRA)
- ▶ Schweiz (15, CHE)
- ▶ Österreich (16, AUT)
- ▶ Tschechische Republik (17, CZE)
- ▶ Polen (18, POL)
- ▶ Russland + Weißrussland (19, RBU)
- ▶ Belgien + Luxemburg (20, BLL)
- ▶ Spanien + Portugal, Vereinigtes Königreich + Irland (21, SPP)
- ▶ Südosteuropa (22, SOE)
- ▶ Nordeuropa (23, SCN)
- ▶ Seeschifffahrt (24, SHIP)
- ▶ Biogen (25, BGN)
- ▶ Interkontinental
 - Anthropogene Emissionen außerhalb Europas (26, GLOBAPG)
 - Durch europäische Emissionen erzeugtes O₃, das wieder nach Europa gelangt (27, GLOBEUR)
 - Biogene VOC-Emissionen außerhalb des europäischen Raums (28, GLOBNAT)
 - Stratosphärisches O₃ (29, GLOBSTR)
- ▶ Ausgangsbedingungen (30, INIT)

3.7.1.2 Anfängliche VOC-Kennzeichnung

Wie in Abschnitt 3.4.2 dargestellt, tragen die Kennzeichnungen für VOC-Emissionen aus einzelnen Sektoren in Deutschland nur in geringem Maße zum Ozon in Deutschland bei. Daher werden in der endgültigen Simulation alle Kennzeichnungen für alle deutschen Quellen zusammengefasst. Auch alle anderen Länder haben jeweils einen geringen Beitrag, sodass diese Kennzeichnungen zu einer Kennzeichnung für alle anderen europäischen Länder zusammengefasst werden. Andererseits ist der Beitrag der biogenen Emissionen relativ groß. Daher wird die biogene Kennzeichnung in zwei Teile aufgeteilt: Deutschland und andere europäische Länder. Die vollständige Liste der Kennzeichnungen für die VOC-Kennzeichnung ist in Liste 3 aufgeführt und wird sowohl von LOTOS-EUROS als auch von WRF-CHEM verwendet.

Liste 3: Liste der Kennzeichnungen für die endgültige Simulation unter Verwendung der VOC-Kennzeichnung

- ▶ Deutsch anthropogen (1, DEUAPG)
- ▶ Europäisch (nicht deutsch) anthropogen (2, ROEAPG)
- ▶ Deutsch biogen (3, DEUBVOC)
- ▶ Europa (nicht deutsch) biogen (4, ROEBVOC)
- ▶ Langstreckentransport in die Modelldomäne (GLOB)
- ▶ Ausgangsbedingungen (11, INIT)

3.7.1.3 Verfeinerte Kennzeichnung

Um die Beiträge verschiedener deutscher Regionen zum modellierten Ozon in Deutschland zu verstehen, wird für jedes Modell ein NO_x-gekennzeichneter Lauf durchgeführt, bei dem anthropogene NO_x-Emissionen entsprechend dem Bundesland, in dem sie emittiert werden, gekennzeichnet werden. In diesem Lauf werden alle anthropogenen Sektoren aggregiert, sodass nur die gesamten anthropogenen NO_x-Emissionen jedes Bundeslandes gekennzeichnet werden.

3.7.1.4 Szenarioläufe

Eine zusätzliche Reihe von Modellläufen mit NO_x- und VOC-Kennzeichnung wird mit Szenarien für das Jahr 2030 von beiden Modellen unter Verwendung derselben Kennzeichnung durchgeführt wie in den Abschnitten 3.7.1.1 und 3.7.1.2 beschrieben.

4 Analyse der Produktionsläufe

4.1 Modellbewertung

Die Bewertung der LOTOS-EUROS- und WRF-Chem-Produktionsläufe gemäß den FAIRMODE-Metriken ist in Tabelle 2 dargestellt. Beide Modelle weisen einen MQI von weniger als 1 auf, was bedeutet, dass sie die FAIRMODE-Qualitätsanforderungen erfüllen.

Tabelle 2: Modellevaluation für LOTOS-EUROS und WRF-Chem

Modell und Art des Messorts	Anzahl der Messorte	Mittlere Verzerrung ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Mittlerer quadratischer Fehler ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Korrelationskoeffizient (R)	Indikator für die Modellqualität (MQI)
LOTOS-EUROS alle Messorte	43.599	-9,92	18,45	0,80	0,46
LOTOS-EUROS ländlicher Hintergrund	14.381	-11,80	18,79	0,80	0,47
LOTOS-EUROS Stadtrand	12.502	-9,55	18,48	0,80	0,46
LOTOS-EUROS urbaner Hintergrund	16.716	-8,56	18,11	0,81	0,46
WRF-Chem alle Messorte	43.599	2,16	23,66	0,62	0,59
WRF-Chem ländlicher Hintergrund	14.381	1,49	21,98	0,64	0,55
WRF-Chem Stadtrand	12.502	1,24	24,68	0,61	0,62
WRF-Chem urbaner Hintergrund	16.716	3,42	24,26	0,62	0,61

LOTOS-EUROS zeigt eine mittlere Verzerrung von $-9,92 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Vergleich zu Messungen an allen deutschen Standorten. Die insgesamt negative Abweichung in LOTOS-EUROS resultiert höchstwahrscheinlich aus der Verwendung der lateralen Modellrandbedingung aus dem globalen CAM-chem-Modell, die im europäischen Zuflussgebiet im Vergleich zur Reanalyse aus CAMS zu niedrig angesetzt ist.

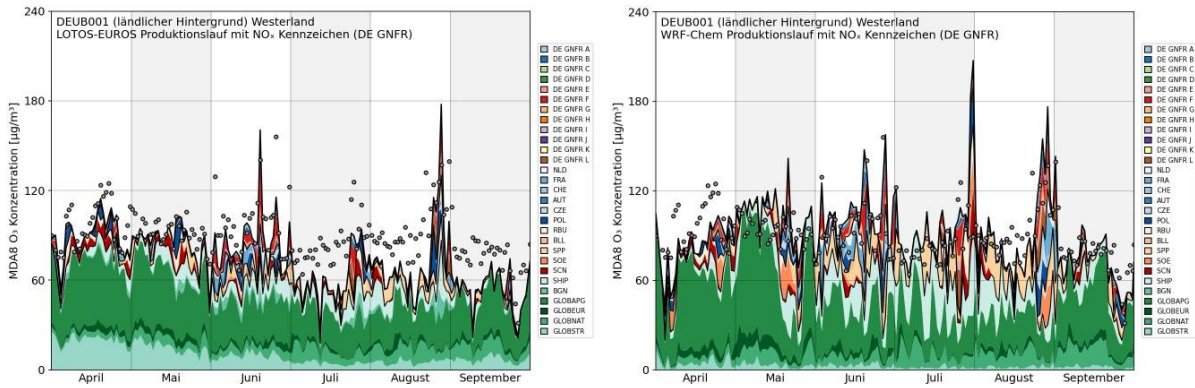
WRF-Chem zeigt eine positive mittlere Verzerrung von $2,16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Vergleich zu Messungen an allen deutschen Standorten. Diese positive Abweichung ist an städtischen Standorten stärker als an ländlichen Standorten, was der Erwartung einer geringeren mittleren Abweichung an städtischen Standorten entgegensteht. Die insgesamt positive mittlere Abweichung von WRF-Chem trotz Verwendung derselben lateralen Randbedingung wie LOTOS-EUROS und die höhere positive Abweichung an städtischen Standorten deuten auf eine überaktive Photochemie in WRF-Chem hin, die auch in der Analyse der Testläufe festgestellt wurde und bereits zuvor im OzonEval-Projekt beobachtet wurde.

WRF-Chem zeigt auch einen höheren RMSE und eine geringere Korrelation mit den Messungen als LOTOS-EUROS. Insgesamt wird LOTOS-EUROS positiver bewertet als WRF-Chem.

4.2 NO_x-gekennzeichneter Produktionslauf

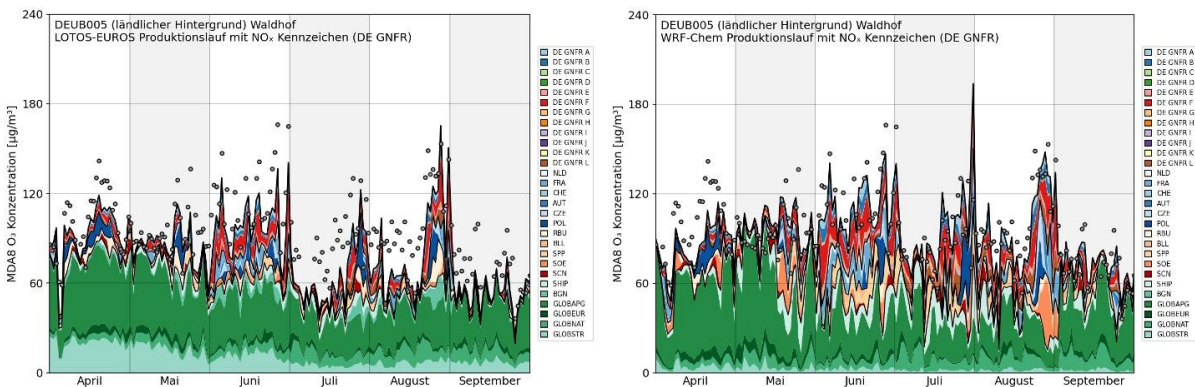
Die täglichen Zeitreihen von MDA8-Ozon aus WRF-Chem und LOTOS-EUROS für den NO_x-gekennzeichneten Produktionslauf sind in Abbildung 26, Abbildung 27 und Abbildung 28 für drei ausgewählte Stationen aus dem UBA-Messnetz dargestellt.

Abbildung 26: Zeitreihe von MDA8-Ozon in Westerland



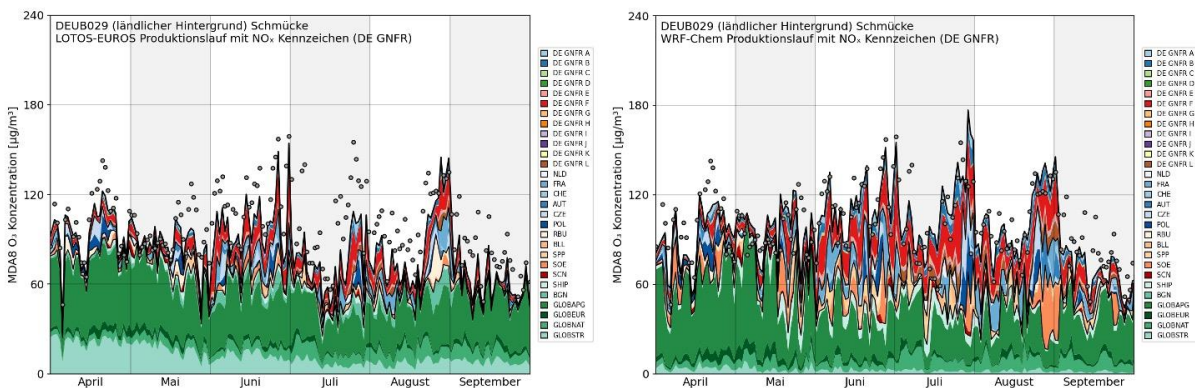
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 27: Zeitreihe von MDA8-Ozon am Waldhof



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 28: Zeitreihen von MDA8-Ozon in Schmücke

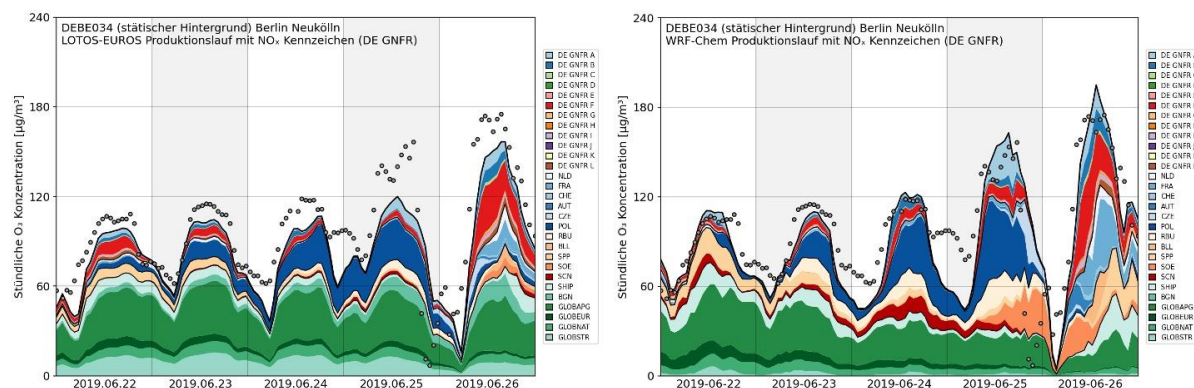


Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Die geringe mittlere Abweichung von LOTOS-EUROS und die deutlich höhere Ozonproduktivität der nahe gelegenen NO_x-Quellen in WRF-Chem sind deutlich zu erkennen. WRF-Chem zeigt trotz der Verwendung derselben lateralen Randbedingungen einen geringeren Beitrag des Fernverkehrs als LOTOS-EUROS, was mit der zuvor festgestellten überaktiven Photochemie in WRF-Chem übereinstimmt.

Die stündlichen Zeitreihen des Ozons aus beiden Modellen sind für eine Beispiel-Ozonepisode an der Station Berlin Neukölln in Abbildung 29 dargestellt. Beide Modelle zeigen ähnliche Änderungen in der Herkunft des Ozons über Berlin in dieser Episode, mit einer Verschiebung von östlichen zu westlichen Winden am letzten Tag der Episode.

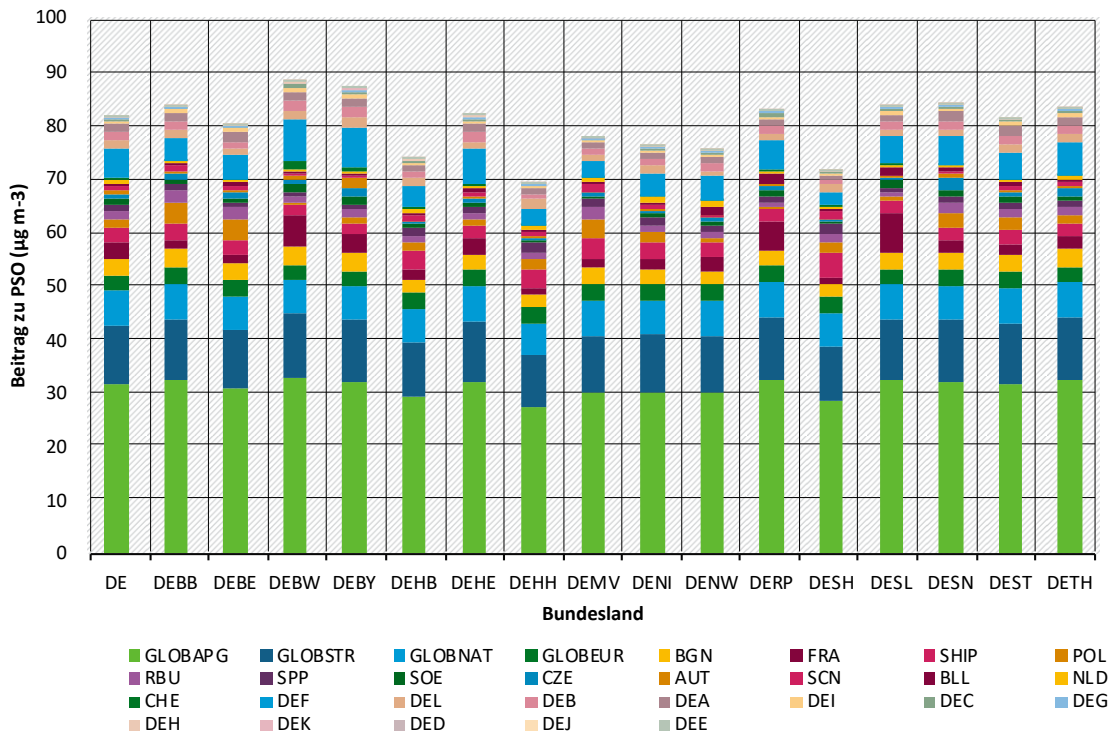
Abbildung 29: Beispiel einer Ozon-Episode in Berlin Neukölln



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

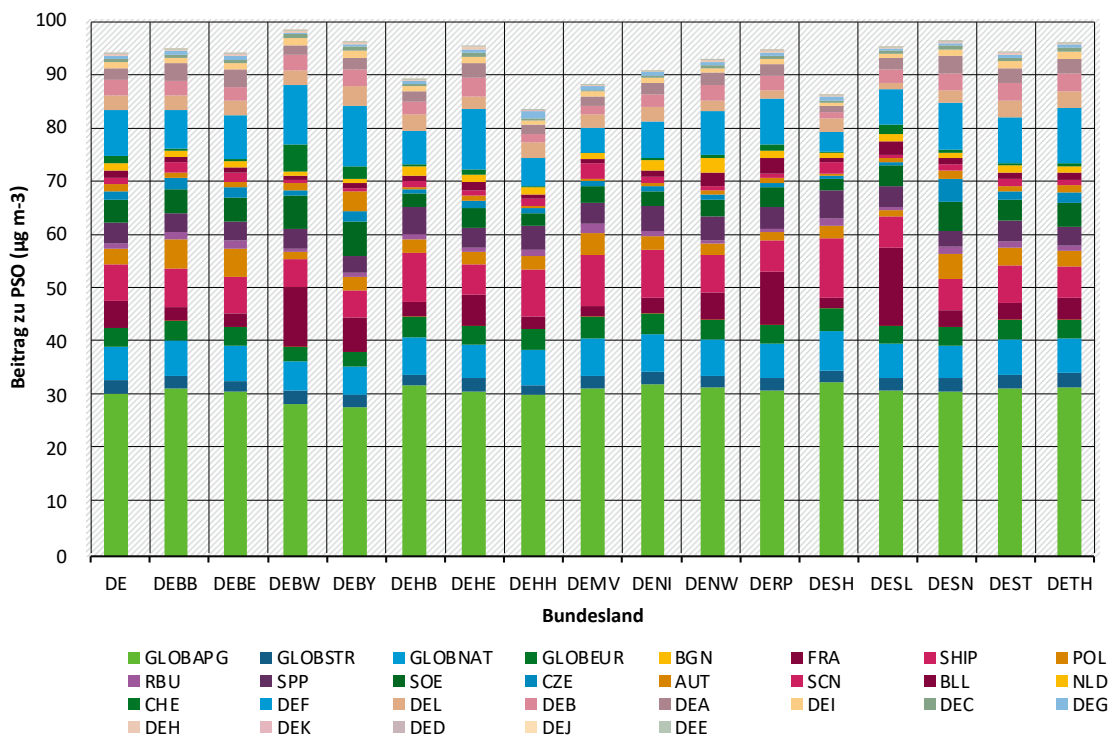
Der flächengewichtete PSO für Deutschland und jedes Bundesland wird in Abbildung 30 und Abbildung 31 für beide Modelle dargestellt, einschließlich des Beitrags verschiedener NO_x-Quellen. Der geringere Beitrag des Langstrecken-Ozontransports in WRF-Chem im Vergleich zu LOTOS-EUROS wurde bereits oben erwähnt und ist hauptsächlich auf einen geringeren Beitrag von Ozon aus der Stratosphäre in WRF-Chem zurückzuführen. Der höhere Beitrag deutscher und benachbarter europäischer anthropogener NO_x-Quellen zum PSO in Deutschland wurde auch in den vorangegangenen Abbildungen gezeigt und steht im Einklang mit der überaktiven Photochemie in WRF-Chem. Diese Abbildungen zeigen auch, dass das WRF-Chem-Modell ohne biogene NO_x-Emissionen betrieben wurde.

Abbildung 30: Peak Season Ozon in Deutschland und jedem Bundesland (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 31: Peak Season Ozon in Deutschland und jedem Bundesland (WRF-Chem)

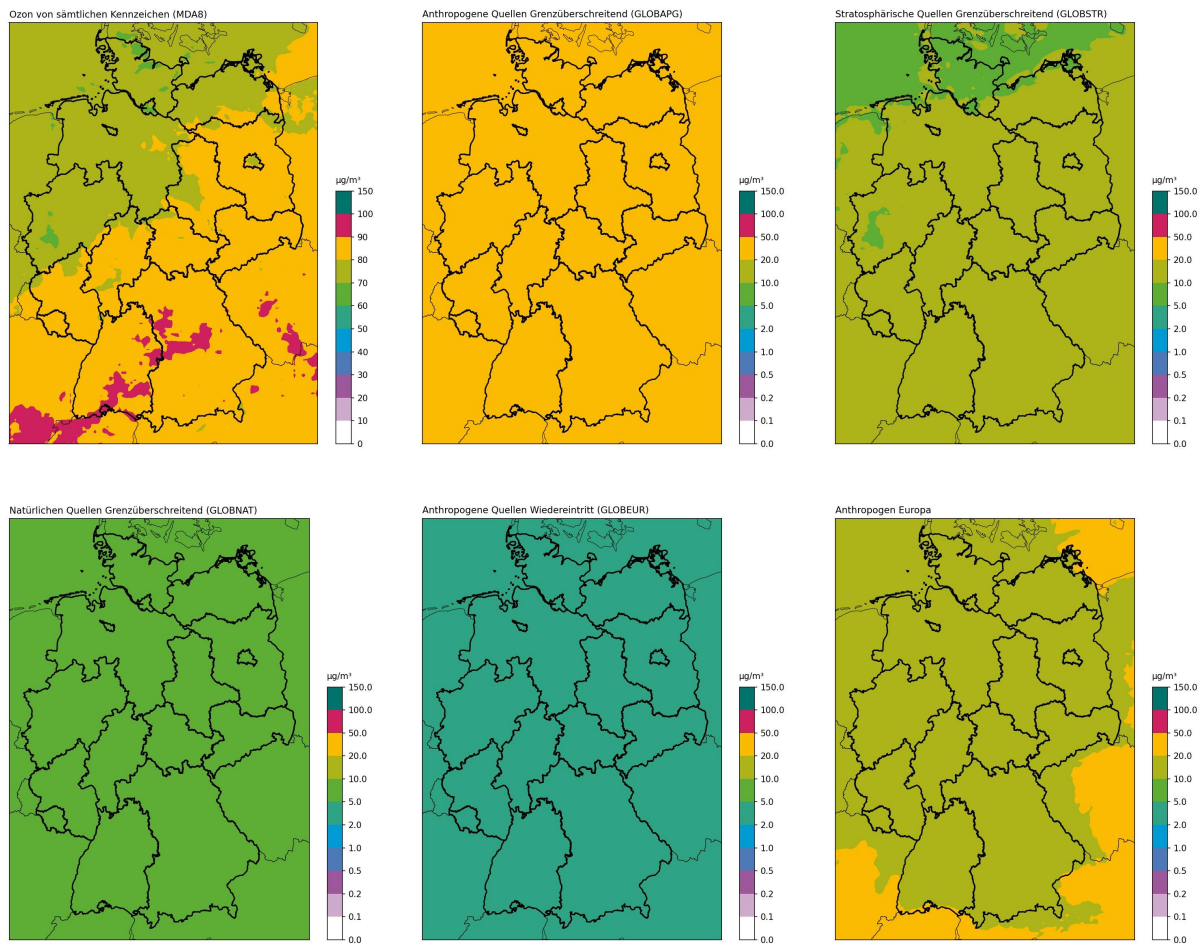


Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Der Gesamt-PSO über Deutschland aus beiden Modellen mit den Beiträgen aus dem Fernverkehr sind in Abbildung 32 und Abbildung 33 dargestellt. Der durchschnittliche PSO über Deutschland für den Simulationszeitraum ist in LOTOS-EUROS niedriger und in WRF-Chem deutlich höher, was mit den Zeitreihendiagrammen übereinstimmt. Der PSO ist in LOTOS-EUROS im Norden

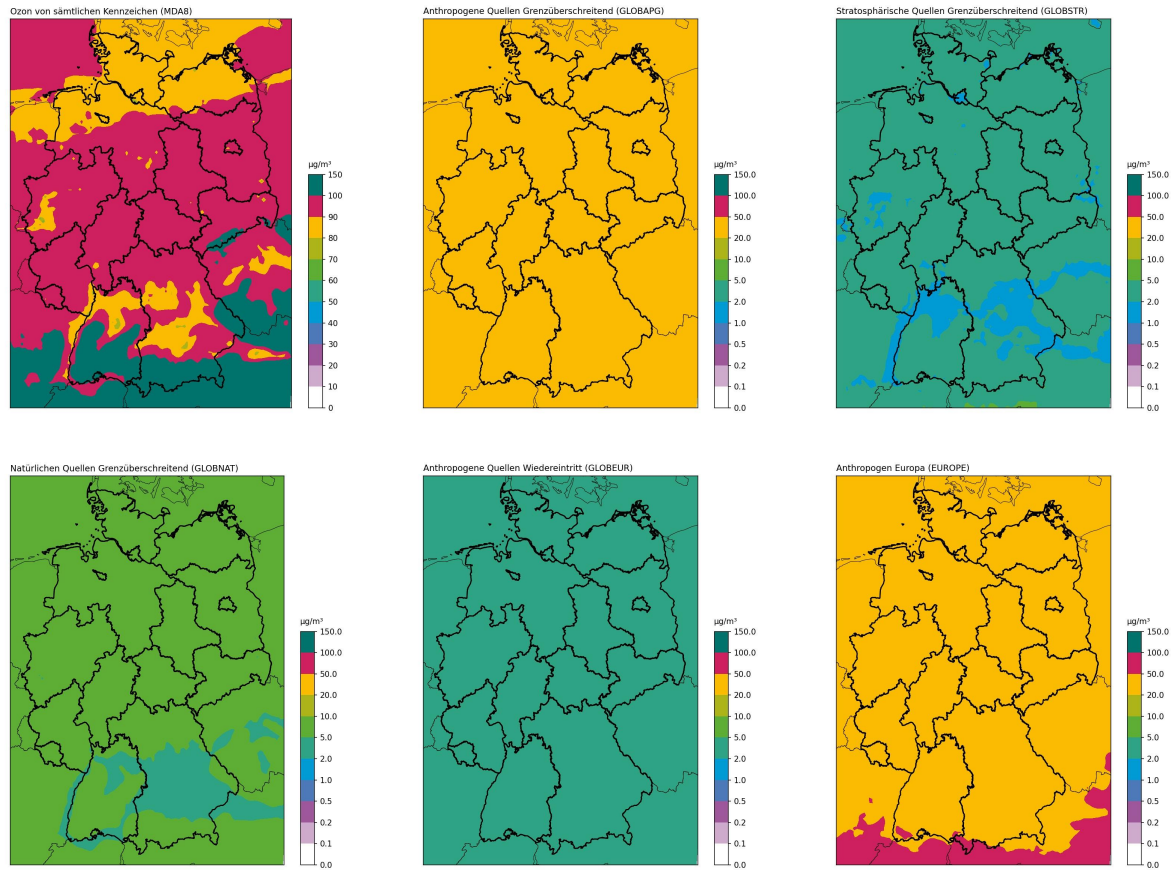
Deutschlands generell niedriger und im Süden höher, aber dieser Gradient ist in WRF-Chem deutlich weniger ausgeprägt als in LOTOS-EUROS. In LOTOS-EUROS ist der interkontinentale Transport von Ozon aus anthropogenen NO_x -Quellen der größte einzelne Langstreckenbeitrag zum Ozon über ganz Deutschland, gefolgt vom Transport aus der Stratosphäre, dem interkontinentalen Transport von Ozon aufgrund natürlicher NO_x -Quellen und Ozon aus europäischen anthropogenen NO_x -Quellen, das wieder in den Modellbereich gelangt ist. In WRF-Chem liegen diese Beiträge zum deutschen Ozon in ähnlichen Größenordnungen, aber der Beitrag der Stratosphäre ist deutlich geringer, was wahrscheinlich auch mit der überaktiven Photochemie in WRF-Chem zusammenhängt, die zu einer geringeren Lebensdauer des Ozons führt.

Abbildung 32: Peak Season Ozon in Deutschland aus dem NO_x -gekennzeichneten Produktionslauf und den Beiträgen der großräumigen Kennzeichnungen (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

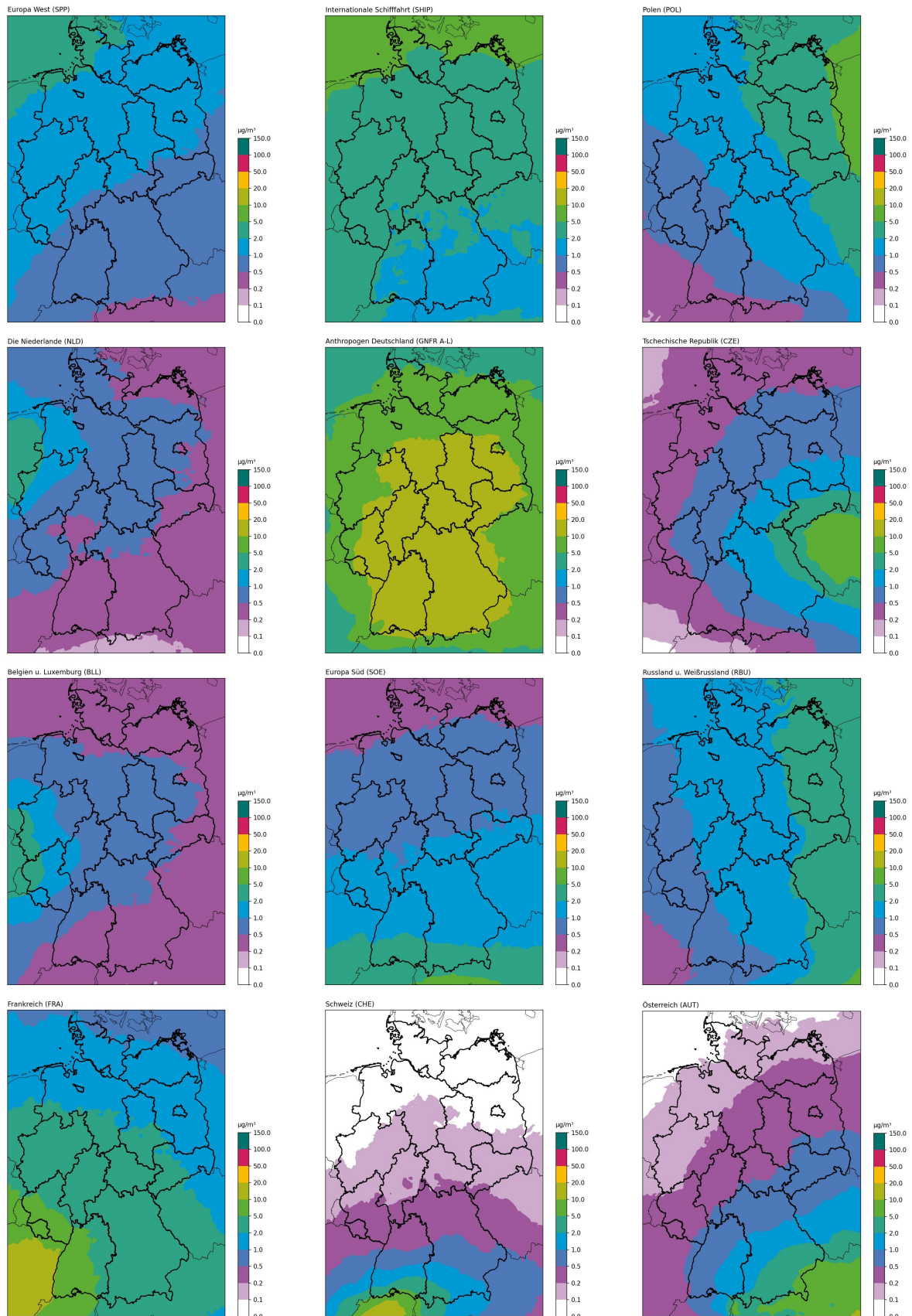
Abbildung 33: Peak Season Ozon in Deutschland aus dem NO_x-gekennzeichneten Produktionslauf und den Beiträgen der großräumigen Kennzeichnungen (WRF-Chem)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

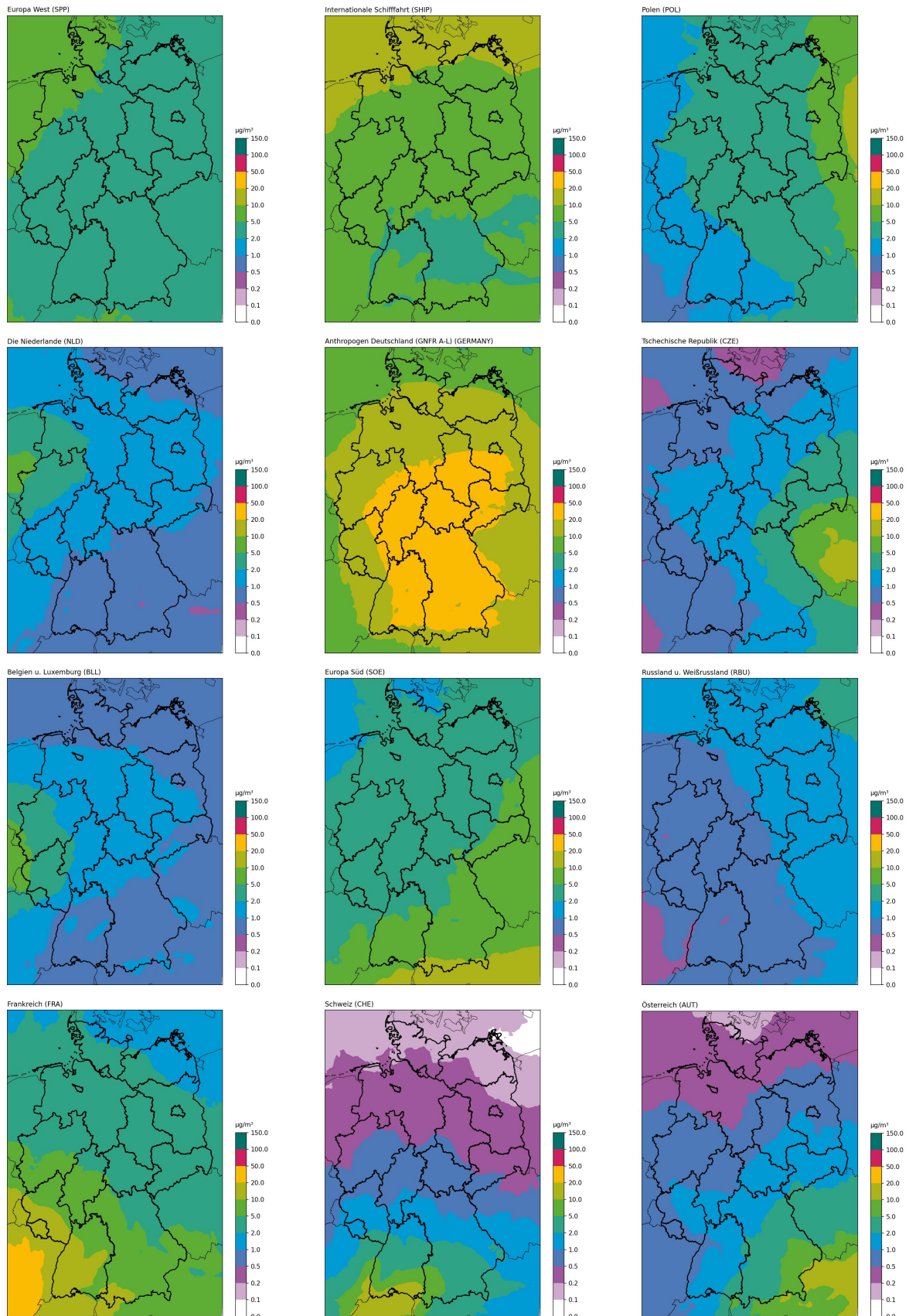
Der Beitrag der nach Ländern gekennzeichneten anthropogenen NO_x-Quellen in Europa zum PSO ist für beide Modelle in Abbildung 34 und Abbildung 35 dargestellt. WRF-Chem zeigt einen höheren Beitrag deutscher NO_x-Quellen zum PSO über Deutschland, was mit der zuvor dargestellten überaktiven Photochemie übereinstimmt. In beiden Modellen weisen die Beiträge der NO_x-Emissionen aus Nachbarländern zum PSO über Deutschland im Allgemeinen starke räumliche Gradienten auf, wobei diese Beiträge näher an den Grenzen zwischen Deutschland und den jeweiligen Ländern stärker sind.

Abbildung 34: Beiträge der europäischen Kennzeichnungen zum Peak Season Ozon im NO_x-gekennzeichneten Produktionslauf (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

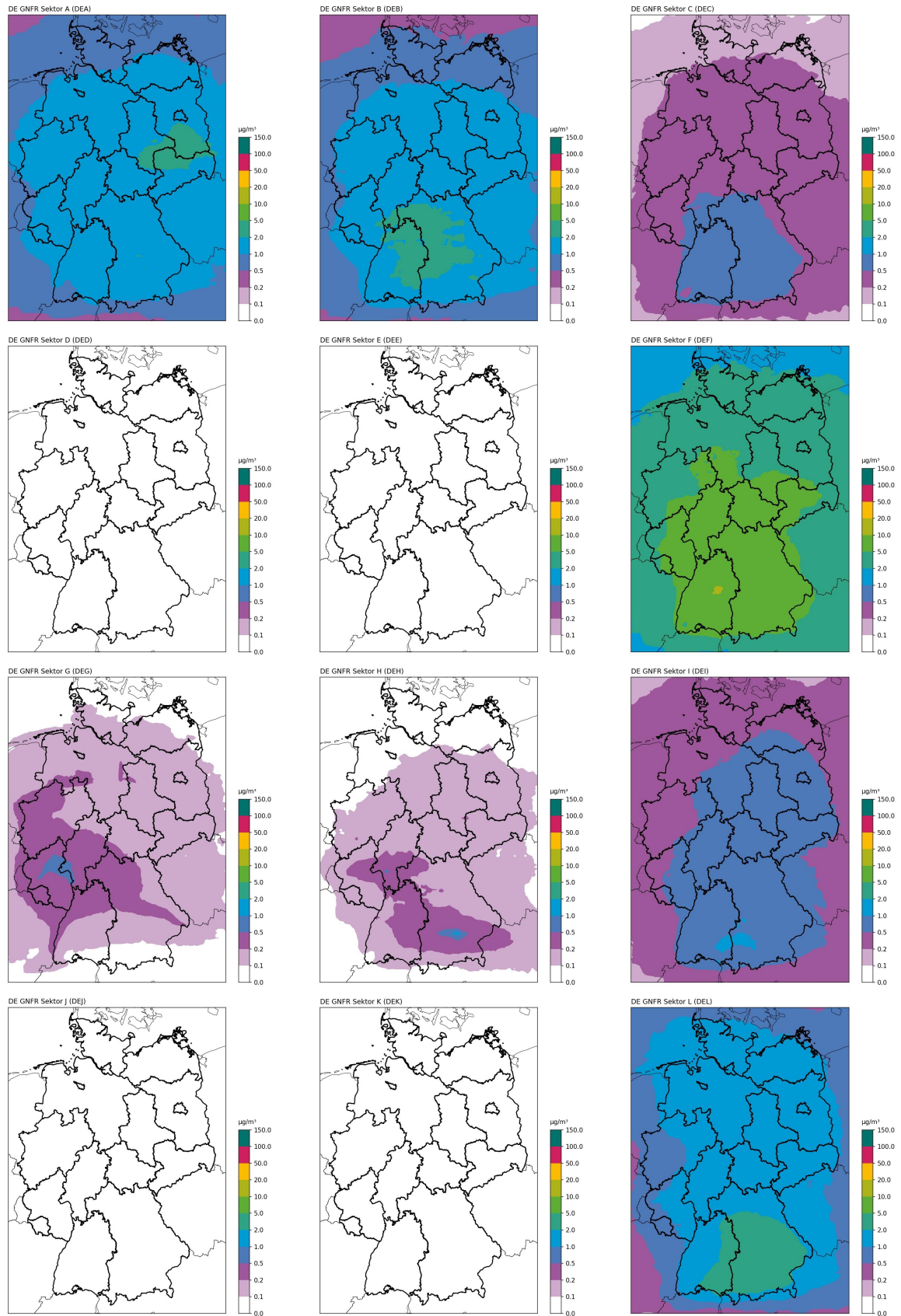
Abbildung 35: Beiträge der europäischen Kennzeichnungen zum Peak Season Ozon im NO_x-gekennzeichneten Produktionslauf (WRF-Chem)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

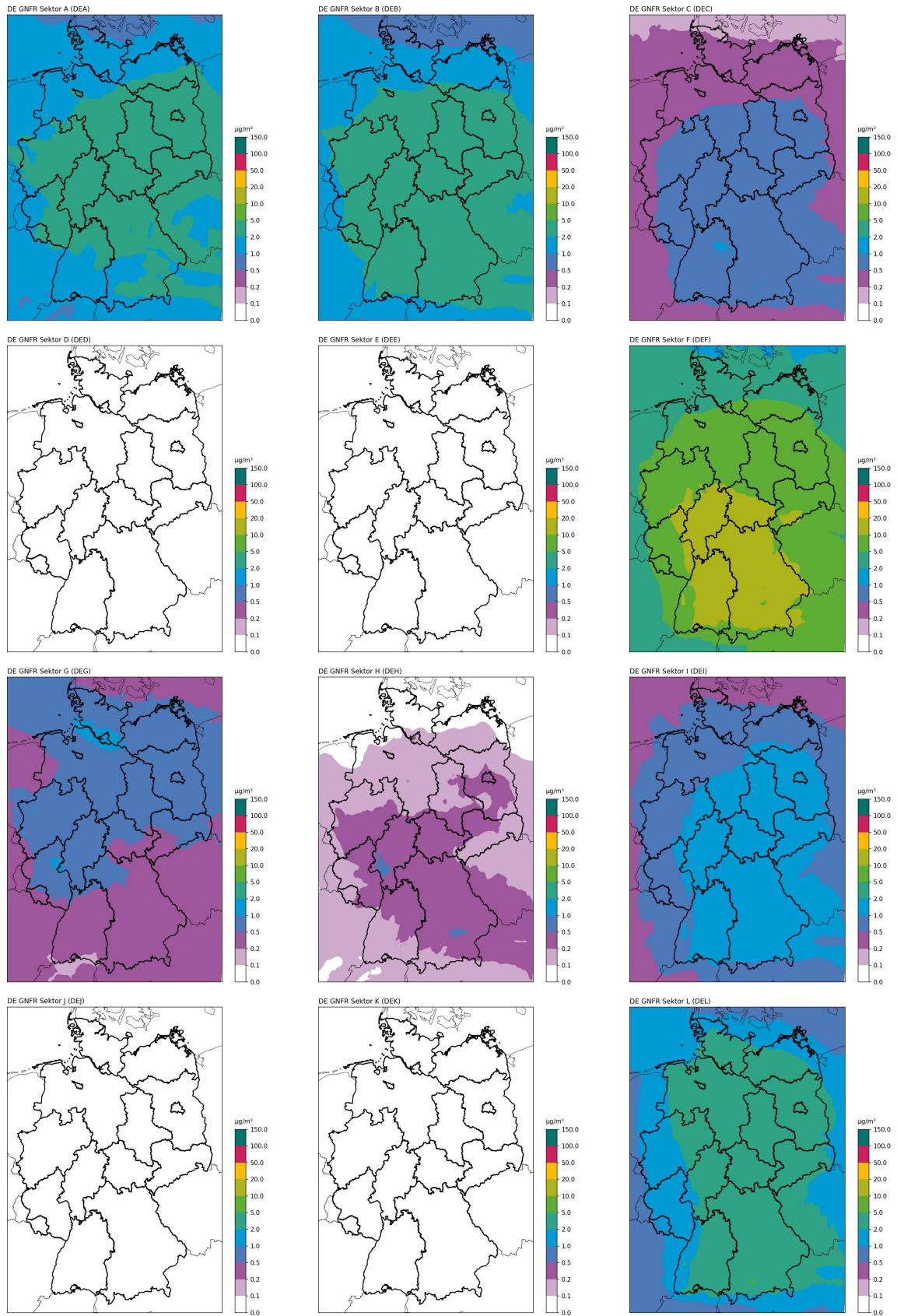
Die Beiträge der NO_x-Emissionen aus jedem GNFR-Sektor innerhalb Deutschlands zum deutschen PSO sind für beide Modelle in Abbildung 36 und Abbildung 37 dargestellt. Entsprechend der höheren photochemischen Aktivität in WRF-Chem im Vergleich zu LOTOS-EUROS ist der Beitrag jedes Sektors zum PSO in WRF-Chem höher als in LOTOS-EUROS. Der größte einzelne NO_x-Emissionssektor, der in beiden Modellen zum PSO in Deutschland beiträgt, ist GNFR_F (Straßenverkehr). Der Beitrag zeigt in beiden Modellen einen räumlichen Gradienten mit höheren Konzentrationen im Süden und niedrigeren Konzentrationen im Norden.

Abbildung 36: Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum Peak Season Ozon (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 37: Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum Peak Season Ozon (WRF-Chem)

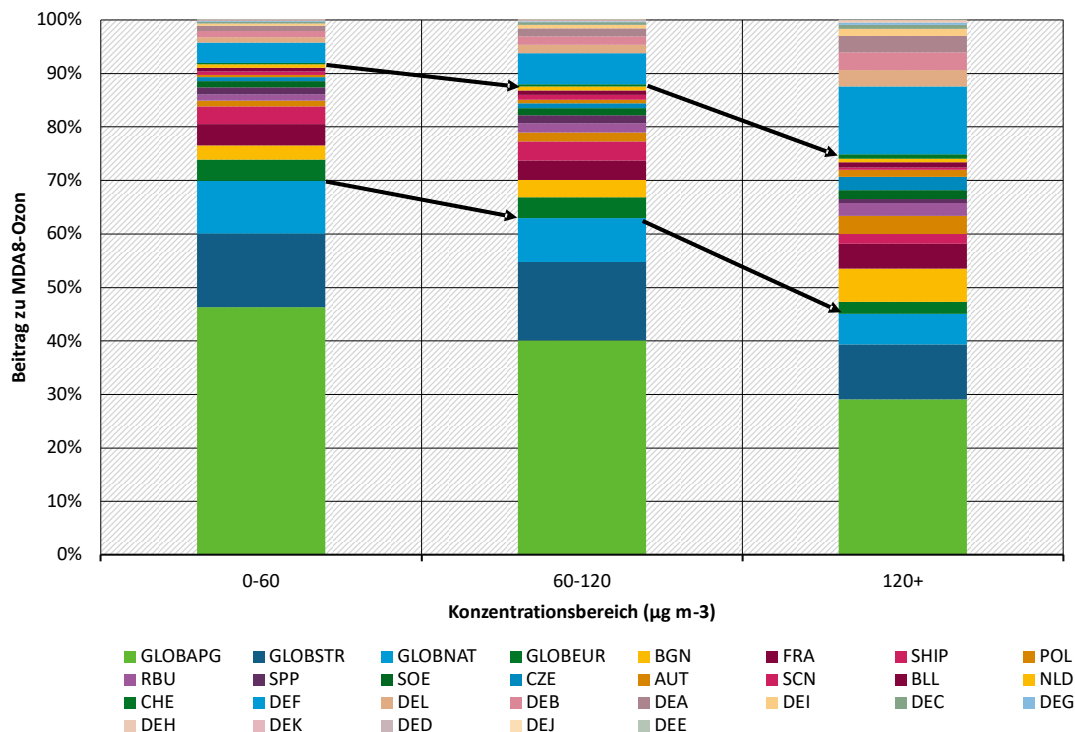


Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Die drei Sektoren mit den nächsthöchsten NO_x-Emissionen, die zum PSO in Deutschland beitragen, sind GNFR_L (Nicht-Viehzucht), GNFR_A (Energie) und GNFR_B (Industrie), die zusammen immer noch einen geringeren Beitrag zum PSO leisten als die NO_x-Emissionen aus dem Straßenverkehr. Die relative Stärke dieser Quellen ist in beiden Modellen ähnlich, jedoch erzeugt WRF-Chem aufgrund einer überaktiven Photochemie mehr Ozon aus diesen NO_x-Quellen. Die PSO-Werte aufgrund von NO_x aus dem Energiesektor sind über Nordostdeutschland höher, während die PSO-Werte aufgrund von NO_x aus dem Industrie- und Landwirtschaftssektor über Süddeutschland höher sind. Die NO_x-Emissionen aus der Verbrennung in Wohngebäuden (GNFR_C) und aus Offroad-Maschinen (GNFR_I) tragen beide weniger als 1 µg/m³ zum PSO über Deutschland bei. Die NO_x-Emissionen aus dem Luftverkehr (GNFR_H) und dem Schiffsverkehr (GNFR_G) leisten auf nationaler Ebene einen noch geringeren Beitrag, können jedoch in der Nähe von Flughäfen und in Flusstälern lokal hohe Beiträge leisten.

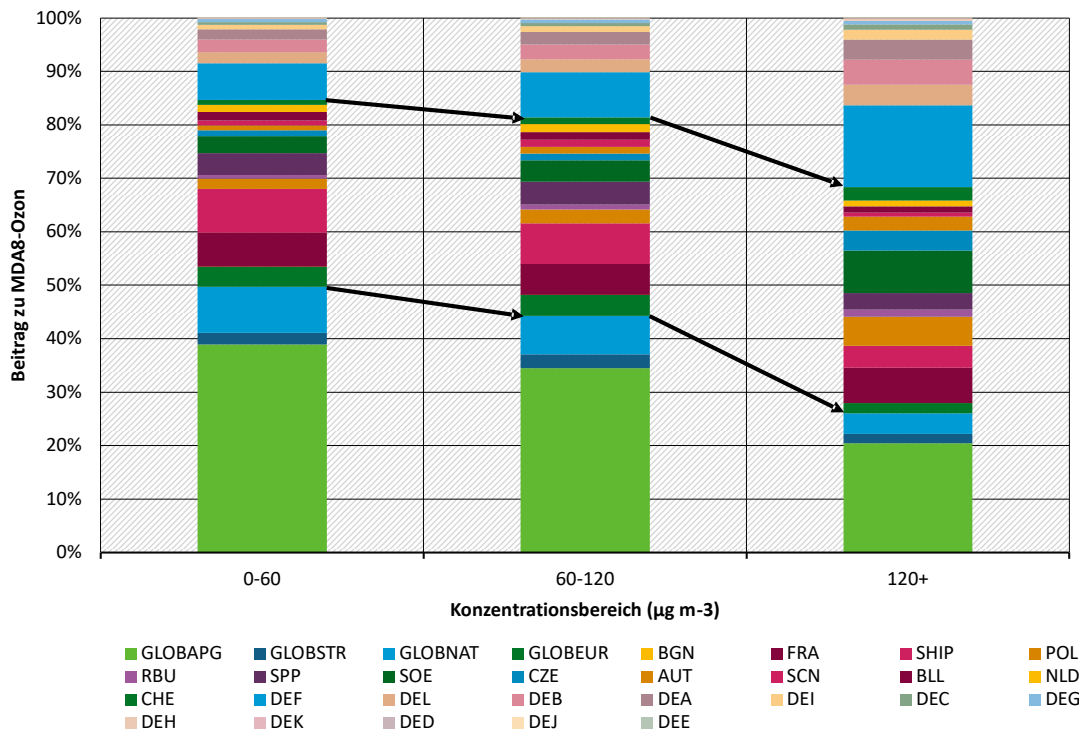
Abbildung 38 und Abbildung 39 zeigen den Beitrag der gekennzeichneten NO_x-Quellen zum MDA8 in verschiedenen Konzentrationsbereichen. Die Konzentrationsbereiche basieren auf den beobachteten Zeitreihen von MDA8 an allen deutschen Messstationen. Die modellierten Werte werden diesen Konzentrationsbereichen unabhängig von der tatsächlich modellierten Konzentration zugeordnet. Die Ergebnisse werden als prozentualer Beitrag der gekennzeichneten NO_x-Quellen zum modellierten Ozon über jeden der Konzentrationsbereiche dargestellt.

Abbildung 38: Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 39: Beitrag der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (WRF-Chem)



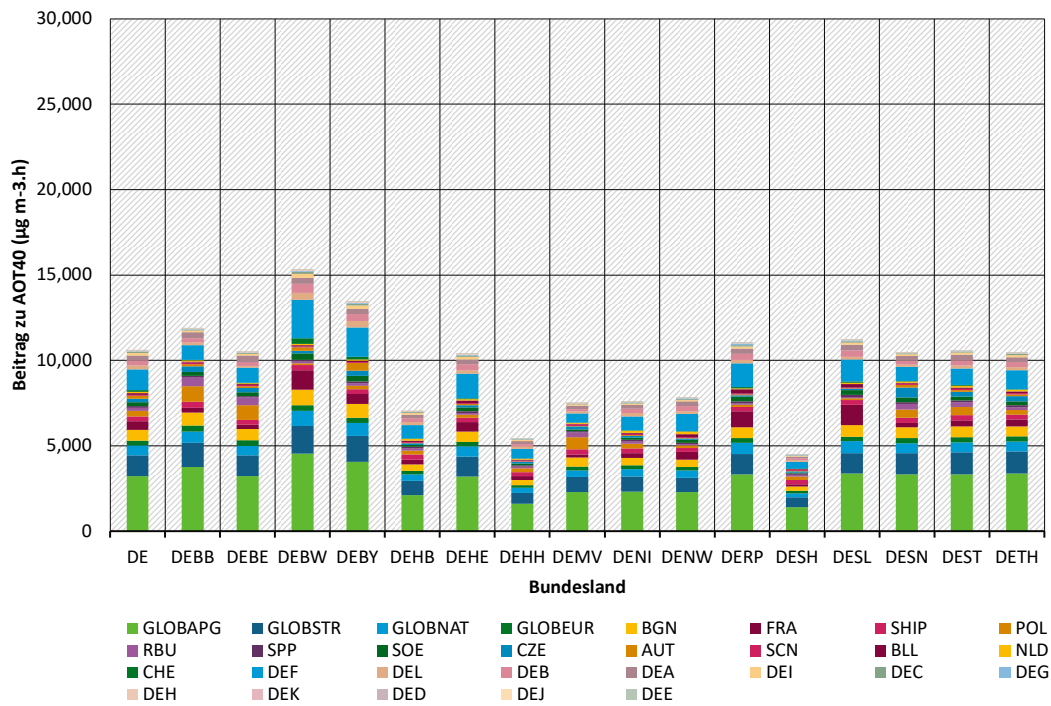
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

In niedrigeren Konzentrationsbereichen (0 – 60 µg/m³) zeigen beide Modelle einen großen Einfluss von Ozon aus dem Fernverkehr aus entfernten NO_x-Quellen (70 % Beitrag in LOTOS-EUROS und 50 % Beitrag in WRF-Chem). Bei höheren Konzentrationen (über 120 µg/m³) sinkt dieser Anteil auf 44 % aus weiträumigen NO_x-Quellen in LOTOS-EUROS und auf 27 % aus diesen Quellen in WRF-Chem.

Der Beitrag deutscher und benachbarter europäischer NO_x-Quellen zu MDA8 in Deutschland steigt entsprechend bei höheren gemessenen MDA8-Konzentrationen, was die Bedeutung der Reduzierung der NO_x-Emissionen in der Nähe für die Kontrolle hoher Ozonwerte zeigt.

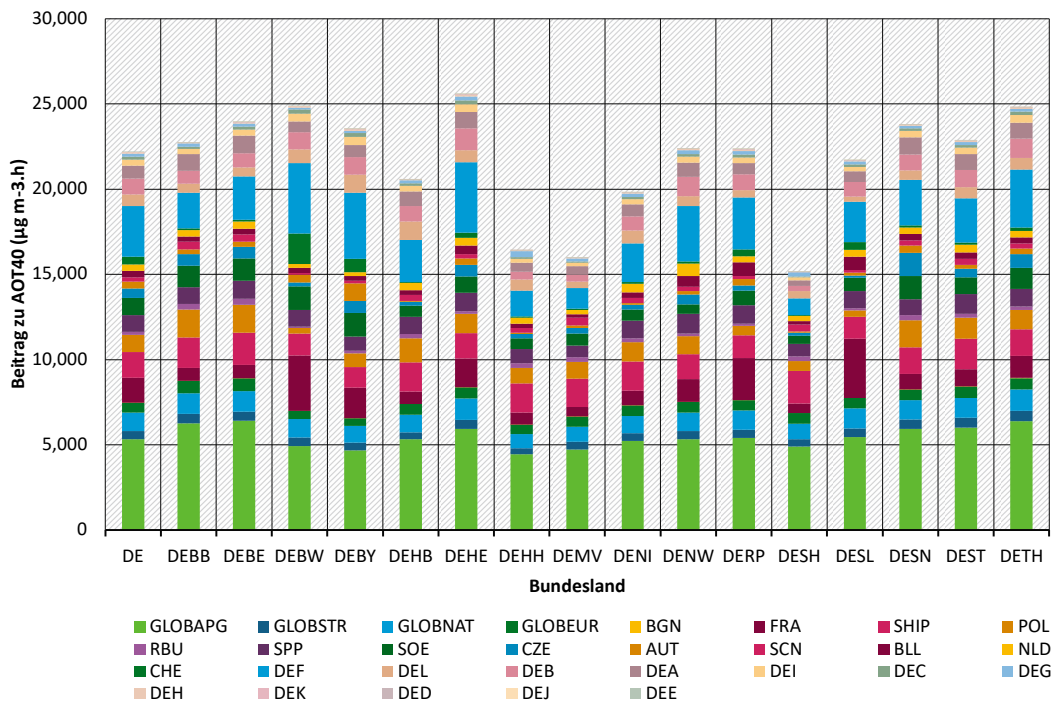
Der AOT40 ist ein Maß für die Auswirkungen von Ozon auf die Vegetation. Er ist definiert als die kumulierte Ozonbelastung über einem Schwellenwert von 40 ppb (80 µg/m³) zwischen 8:00 und 20:00 Uhr in den Monaten Mai, Juni und Juli. Der AOT40-Wert aus LOTOS-EUROS und WRF-Chem sowie die Zuordnung zu NO_x-Vorläufern sind in Abbildung 40 und Abbildung 41 dargestellt. Aufgrund der Verwendung des Schwellenwerts von 40 ppb ist der Beitrag benachbarter NO_x-Quellen zum AOT40 größer als ihr Beitrag zum PSO (Abbildung 30 und Abbildung 31). Der AOT von WRF-Chem ist aufgrund der höheren von WRF-Chem simulierten Ozonkonzentration (Tabelle 2, Abbildung 32, und Abbildung 33) deutlich größer als der von LOTOS-EUROS.

Abbildung 40: AOT40 in Deutschland und jedem Bundesland (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 41: AOT40 in Deutschland und jedem Bundesland (WRF-Chem)



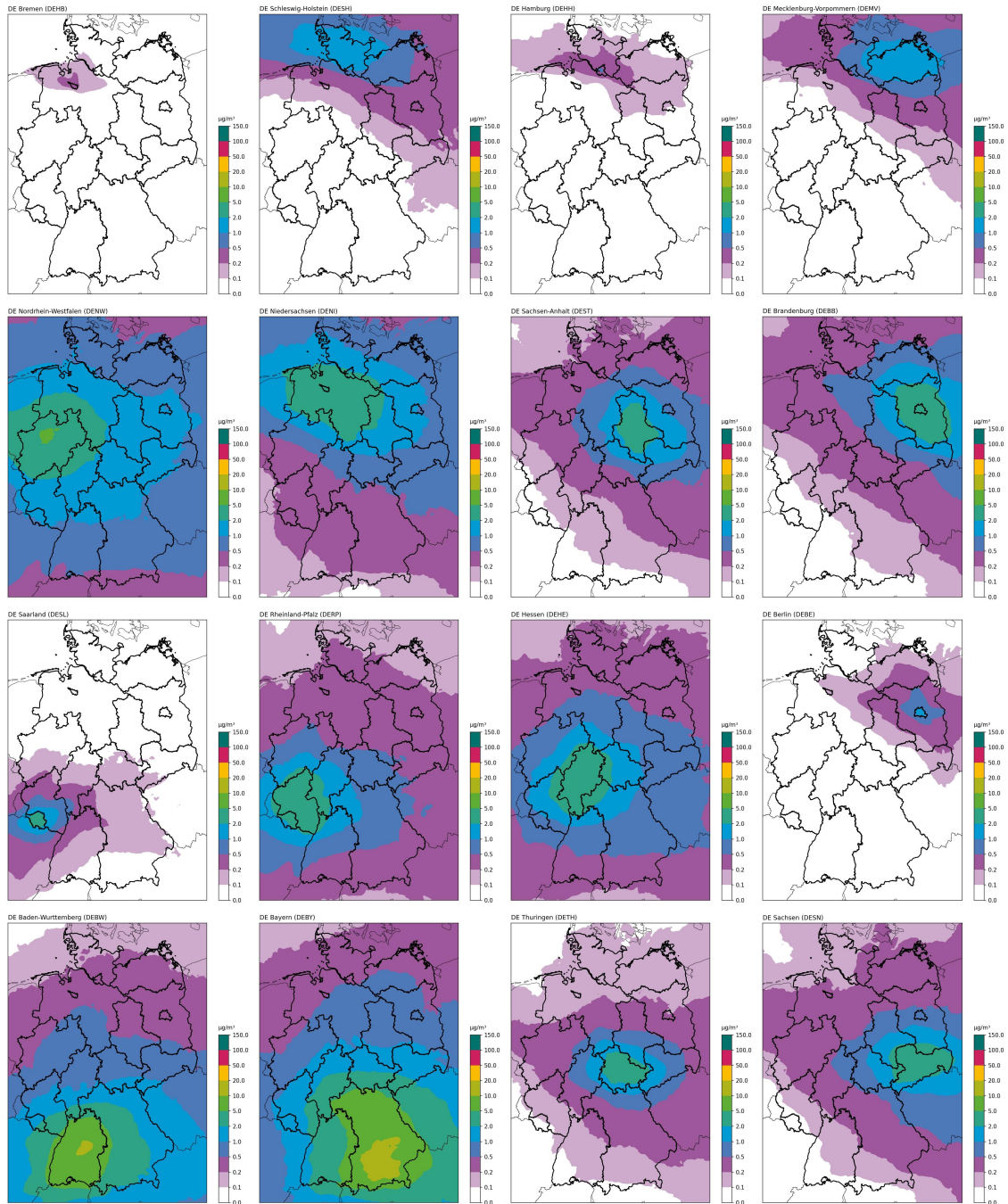
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

4.2.1 Verfeinerte NO_x-Kennzeichnung

Der NO_x-gekennzeichnete Lauf mit verfeinerter Kennzeichnung wurde in Abschnitt 3.7.1.3 beschrieben. Der Beitrag der NO_x-Emissionen jedes deutschen Bundeslandes zum PSO über Deutschland, modelliert mit LOTOS-EUROS, ist in Abbildung 42 dargestellt. Der größte Einfluss der NO_x-Emissionen jedes Bundeslandes ist durchweg über dem Gebiet des jeweiligen

Bundeslandes selbst zu beobachten. Im Allgemeinen gilt: Je größer das Bundesland und je weiter südlich es liegt, desto mehr Ozon wird aus den NO_x-Emissionen in diesem Bundesland gebildet. Dies steht im Einklang mit den höheren NO_x-Emissionen in größeren Gebieten und der höheren Ozonbildung im Süden Deutschlands im LOTOS-EUROS-Modell.

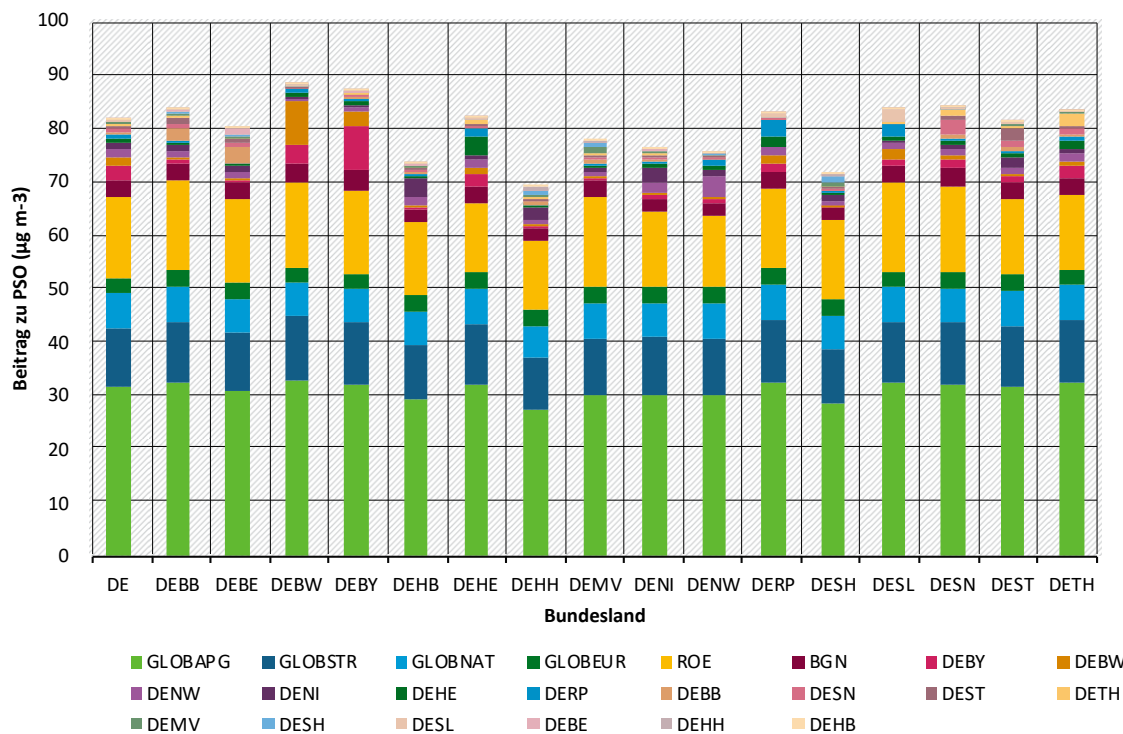
Abbildung 42: Beiträge der NO_x-Emissionen in jedem deutschen Bundesland zum PSO über Deutschland (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Die gleichen Ergebnisse sind in Abbildung 43 als räumliche Durchschnittswerte des PSO für jedes Bundesland sowie für Deutschland insgesamt dargestellt. Der relativ starke Beitrag Bayerns und Baden-Württembergs zu ihrem eigenen PSO fällt deutlich ins Auge, obwohl dieser Beitrag im Vergleich zum Gesamt-PSO relativ gering ist.

Abbildung 43: Peak Season Ozon-Werte ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) für Deutschland und jedes Bundesland mit Beiträgen verschiedener NO_x -Quellen aus dem verfeinerten NO_x -Produktionslauf (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Der prozentuale Beitrag jedes Bundeslandes zu seinem eigenen PSO ist in Tabelle 3 als Heatmap dargestellt. Maximalwerte von rund 9 % sind für Bayern und Baden-Württemberg zu verzeichnen, während die meisten anderen Bundesländer mit Ausnahme der kleinen Stadtstaaten Berlin, Bremen und Hamburg Beiträge zu ihrem eigenen PSO im Bereich von 2 bis 4 % aufweisen.

Tabelle 3: Beitrag (%) der NO_x -Emissionen in jedem Bundesland zum PSO in diesem Bundesland

	BB	BE	BW	BY	HB	HE	HH	MV	NI	NW	RP	SH	SL	SN	ST	TH
BB	2.9	3.7	0.1	0.2	0.7	0.2	0.8	1.3	0.7	0.3	0.1	0.5	0.1	0.9	1.3	0.4
BE	0.5	1.4	0.0	0.0	0.1	0.0	0.2	0.3	0.1	0.0	0.0	0.1	0.0	0.1	0.2	0.1
BW	0.4	0.4	8.9	3.0	0.5	1.4	0.4	0.3	0.6	0.8	2.1	0.3	2.3	0.9	0.6	1.0
BY	0.8	0.7	4.3	9.5	0.6	2.9	0.6	0.6	0.8	1.0	1.9	0.5	1.5	1.8	1.1	2.6
HB	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4	0.0	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.1	0.0
HE	0.6	0.5	0.7	0.9	0.6	4.3	0.5	0.4	0.8	1.4	1.9	0.4	1.0	0.9	0.9	1.9
HH	0.1	0.1	0.0	0.0	0.1	0.0	0.6	0.2	0.1	0.0	0.0	0.3	0.0	0.1	0.1	0.0
MV	0.5	0.4	0.0	0.1	0.2	0.0	0.9	1.8	0.2	0.1	0.0	0.9	0.0	0.1	0.2	0.1
NI	1.4	1.3	0.3	0.4	4.6	0.6	3.2	1.4	3.8	1.1	0.3	1.8	0.3	0.9	2.1	1.0
NW	1.3	1.3	0.8	1.0	2.4	2.2	1.3	1.0	2.5	5.2	1.7	1.1	1.3	1.2	1.7	1.8
RP	0.4	0.3	0.9	0.7	0.5	1.9	0.4	0.3	0.5	1.1	3.9	0.3	2.8	0.6	0.5	0.8
SH	0.4	0.4	0.1	0.1	0.3	0.1	1.2	0.8	0.3	0.1	0.0	1.9	0.0	0.2	0.2	0.1
SL	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.3	0.1	0.1	0.1	0.1	0.8	0.1	2.8	0.1	0.1	0.1
SN	1.1	0.8	0.2	0.4	0.3	0.5	0.3	0.4	0.4	0.4	0.2	0.3	0.1	3.3	1.3	1.4
ST	1.2	1.0	0.1	0.2	0.6	0.4	0.5	0.6	0.8	0.4	0.1	0.4	0.1	1.3	2.7	0.9
TH	0.4	0.3	0.2	0.4	0.2	0.9	0.2	0.2	0.4	0.4	0.2	0.2	0.1	1.1	0.9	2.8

Eine ähnliche Heatmap ist in Tabelle 4 dargestellt, jedoch mit dem Beitrag jedes Bundeslandes zu seinem eigenen PSO als Prozentsatz des gesamten deutschen Beitrags zum PSO dieses Bundeslandes. Die Beiträge Bayerns und Baden-Württembergs zu ihrem eigenen PSO steigen entsprechend auf 56 % bzw. 53 %, während die anderen Bundesländer im Bereich von etwa 20 bis 40 % liegen. Auch benachbarte Bundesländer leisten erhebliche Beiträge zu den PSO der anderen, was zeigt, dass die PSO-Werte in Deutschland erheblich durch den atmosphärischen Transport zwischen den Bundesländern beeinflusst werden.

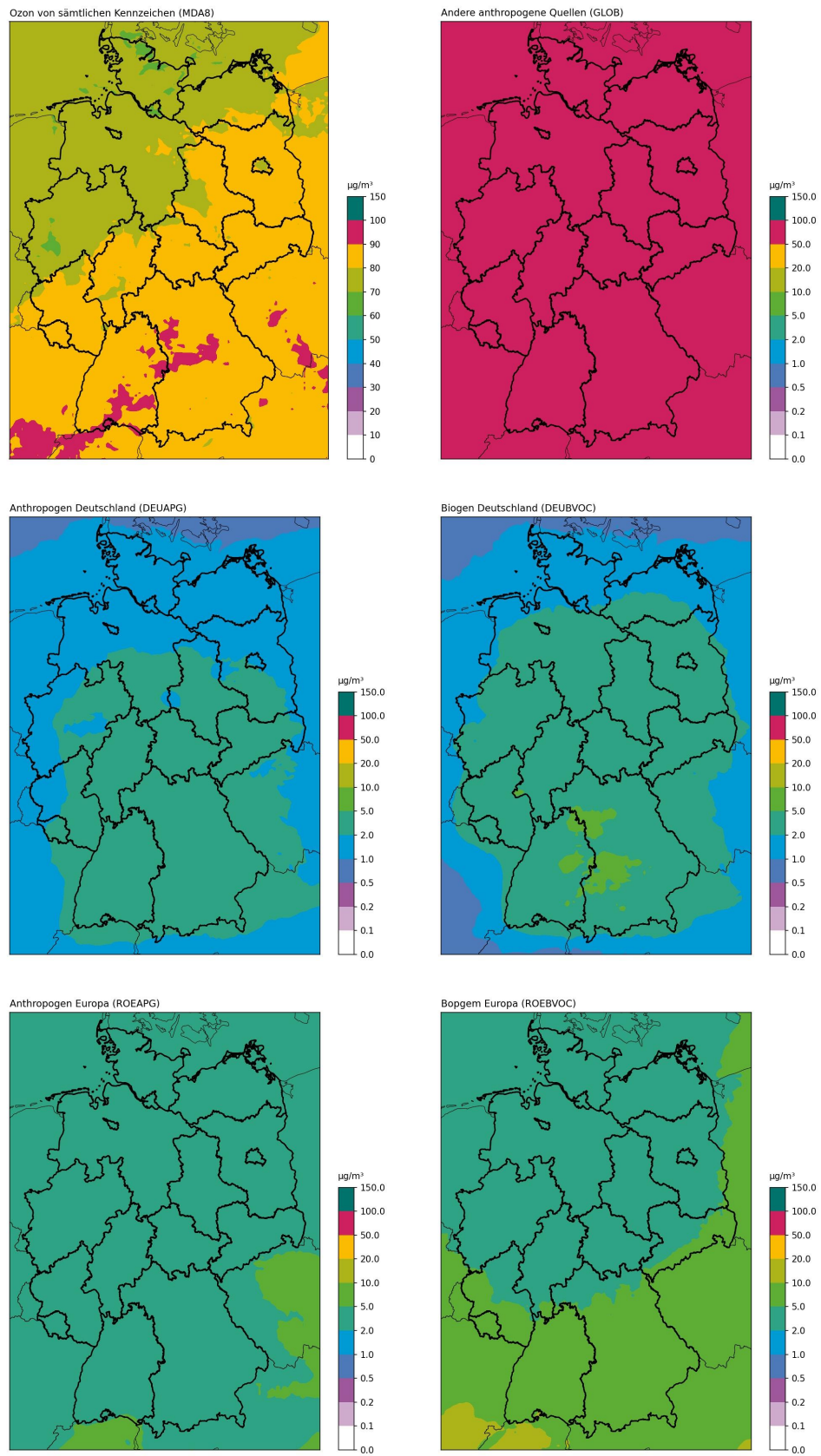
Tabelle 4: Beitrag (%) der NO_x-Emissionen jedes Bundeslandes zum PSO in diesem Bundesland als Prozentsatz des gesamten deutschen Beitrags zum PSO in diesem Bundesland

	BB	BE	BW	BY	HB	HE	HH	MV	NI	NW	RP	SH	SL	SN	ST	TH
BB	24	29	1	1	6	2	7	14	5	2	1	5	1	7	9	3
BE	4	11	0	0	1	0	1	3	1	0	0	1	0	1	1	0
BW	4	3	53	18	4	9	4	3	5	6	16	3	18	6	4	7
BY	7	6	26	56	5	18	6	7	6	8	14	5	12	13	8	17
HB	0	0	0	0	3	0	1	1	1	0	0	1	0	0	0	0
HE	5	4	4	6	5	27	5	4	7	12	14	5	8	6	7	13
HH	1	1	0	0	1	0	6	2	1	0	0	3	0	0	1	0
MV	4	3	0	0	1	0	8	19	2	1	0	10	0	1	2	0
NI	11	10	2	2	38	4	28	14	31	9	2	20	2	7	15	7
NW	10	10	5	6	20	14	12	10	21	42	13	13	10	9	12	12
RP	3	3	5	4	4	12	4	3	4	9	29	4	22	4	3	5
SH	3	3	0	0	2	0	10	8	2	0	0	21	0	1	2	1
SL	1	1	1	1	1	2	1	1	1	1	6	1	23	1	1	1
SN	9	6	1	2	3	3	2	4	3	3	1	3	1	25	9	9
ST	10	8	1	1	5	2	4	6	7	3	1	4	1	9	19	6
TH	3	2	1	2	2	5	2	2	3	3	1	2	1	8	6	19

4.3 VOC-gekennzeichnete Produktionsläufe

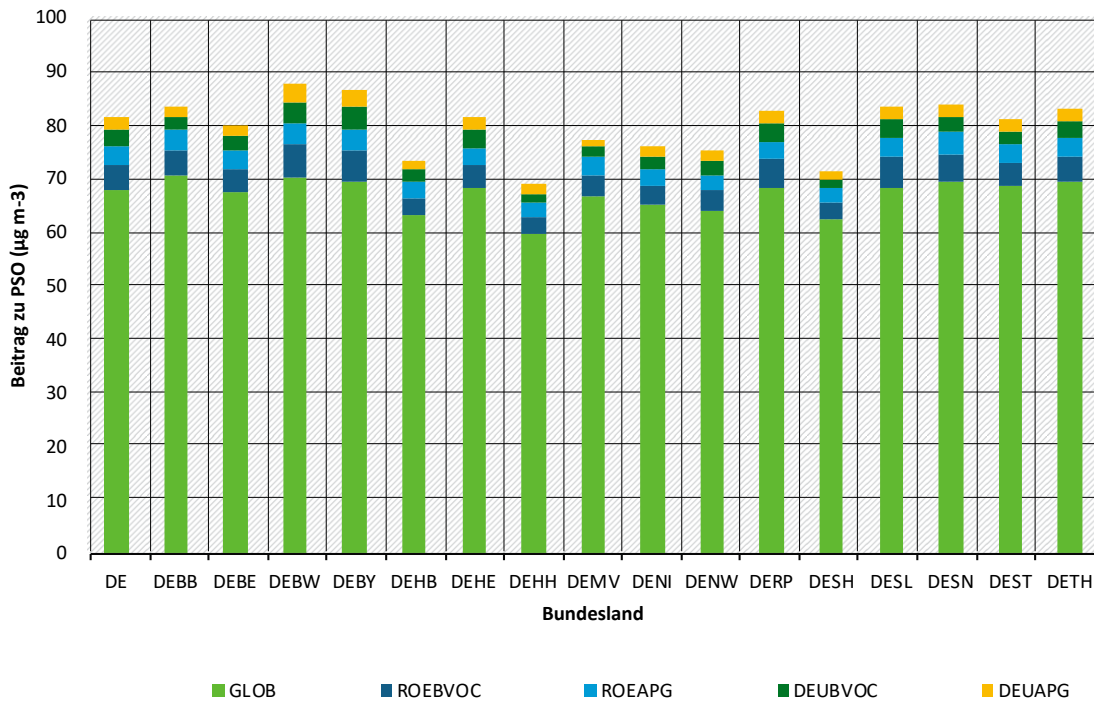
Der Beitrag aller gekennzeichneten VOC-Quellen zum PSO über Deutschland aus der VOC-gekennzeichneten Produktionsreihe ist in Abbildung 44 und Abbildung 45 als Karten und räumliche Durchschnittswerte des PSO über jedem Bundesland bzw. Deutschland insgesamt dargestellt. Im Gegensatz zur NO_x-gekennzeichneten Reihe umfasst die GLOB-Kennzeichnung in dieser Reihe durch die Modellgrenzen transportiertes Ozon sowie transportierte VOCs einschließlich Methan. Der Beitrag des Ferntransports zum PSO in Deutschland ist in der VOC-gekennzeichneten Simulation wesentlich höher als der Ferntransportbeitrag in der NO_x-gekennzeichneten Simulation, was auf einen erheblichen Transport von NMVOC-Ozonvorläufern über interkontinentale Entfernungen hindeutet. Bei diesen über große Entfernungen transportierten VOC handelt es sich höchstwahrscheinlich um Methan und Kohlenmonoxid, da diese im Vergleich zu anderen VOC eine relativ lange Lebensdauer in der Atmosphäre haben.

Abbildung 44: Peak Season Ozon-Werte in Deutschland aus dem LOTOS-EUROS-VOC-gekennzeichneten Produktionslauf und den Beiträgen aller Kennzeichnungen



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 45: Peak Season Ozon-Werte ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) für Deutschland und jedes Bundesland mit Beiträgen verschiedener VOC-Quellen aus dem LOTOS-EUROS-VOC-Produktionslauf



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Der Beitrag der europäischen (einschließlich deutscher) NMVOC-Emissionen zum deutschen PSO im VOC-gekennzeichneten Lauf ist wesentlich geringer als der Beitrag der europäischen (einschließlich deutscher) NO_x -Emissionen im NO_x -gekennzeichneten Lauf. Dies deutet darauf hin, dass eine große Menge globaler Hintergrund-VOC (höchstwahrscheinlich Methan und CO) im europäischen Raum oxidiert wird und zur Ozonbildung beiträgt. Europäische NMVOC-Emissionen tragen im Allgemeinen stärker zum PSO in Deutschland bei als deutsche NMVOC-Emissionen. BVOC-Emissionen tragen im Allgemeinen stärker zum PSO bei als AVOC-Emissionen.

4.4 Szenarioläufe für 2030

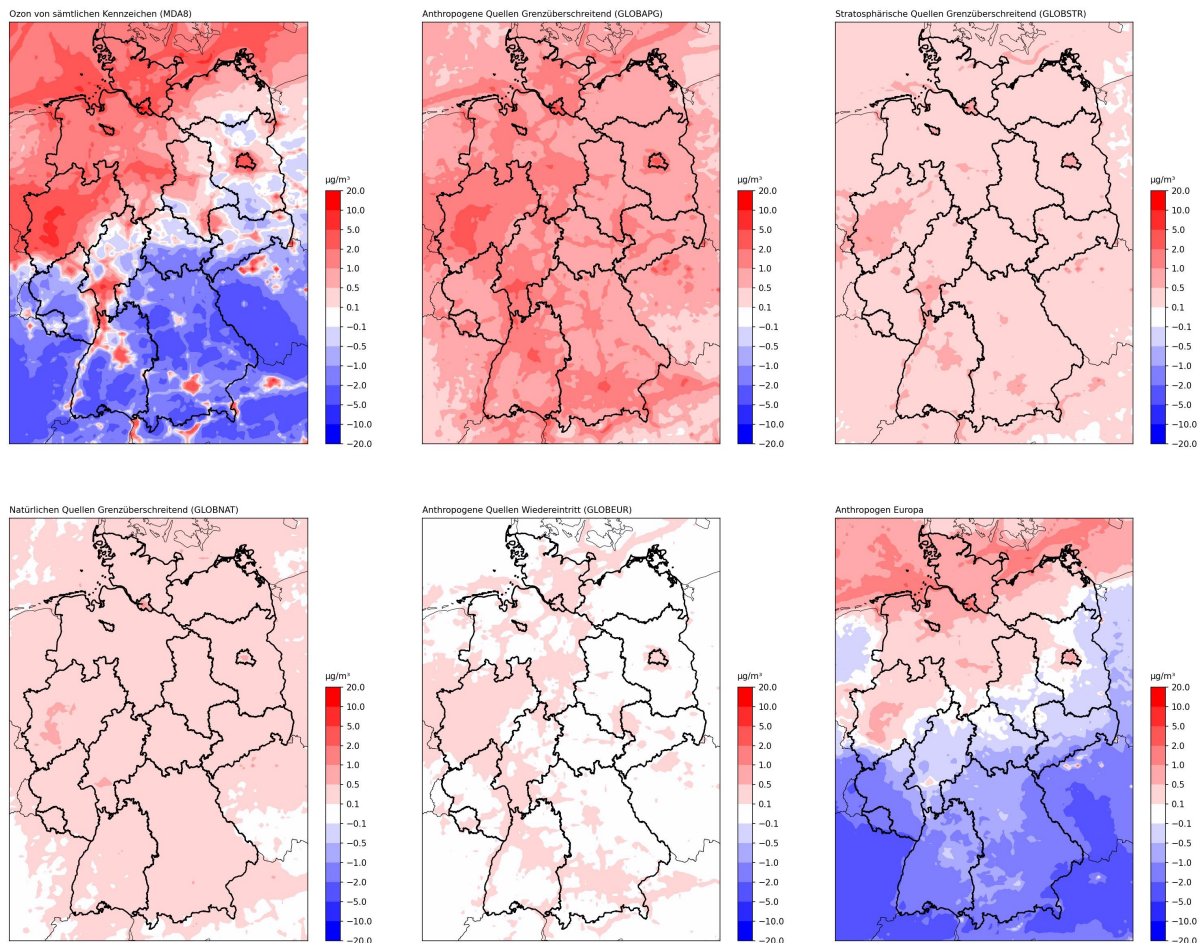
Die Emissionsszenarien für diese Modellläufe wurden in Abschnitt 2.3 vorgestellt. Die Veränderung des PSO von 2019 bis 2030 ist für beide Modelle in Abbildung 46 und Abbildung 47 dargestellt, zusammen mit der Veränderung der Beiträge der globalen NO_x -Kennzeichnungen und der Veränderung des Beitrags der NO_x -Emissionen aus dem übrigen Europa.

4.4.1 NO_x -gekennzeichnete Simulation für 2030

In LOTOS-EUROS steigt der PSO in Ballungsräumen und über Norddeutschland, also in Regionen, die im NO_x -gekennzeichneten Produktionslauf 2019 eine geringere Ozonproduktion aus lokalen NO_x -Quellen aufwiesen. Dies steht im Einklang mit einer Verringerung der Ozontitration über diesen Regionen infolge der geringeren NO_x -Emissionen im Jahr 2030 im Vergleich zu 2019. LOTOS-EUROS zeigt für 2030 einen gewissen Anstieg des Ozons über ländlichen Gebieten im Vergleich zu 2019, insbesondere in Süddeutschland. WRF-Chem zeigt eine ganz andere Veränderung des PSO von 2019 bis 2030 im Vergleich zu LOTOS-EUROS. Der Anstieg des PSO aufgrund der verringerten Titration beschränkt sich hierbei auf die größten Siedlungsgebiete im Süden Deutschlands, während überall sonst ein starker Rückgang des PSO zu beobachten ist.

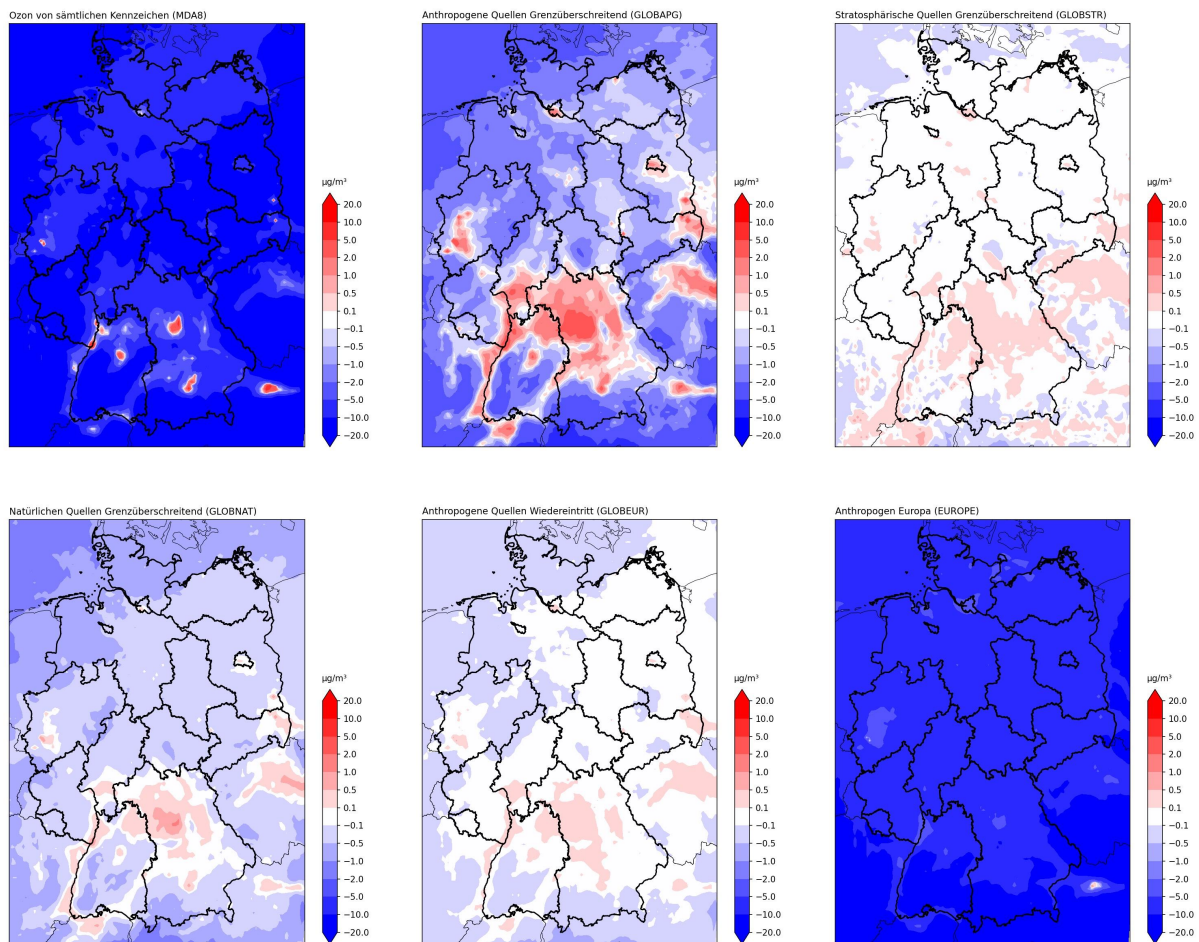
Dies steht im Einklang mit der zuvor festgestellten überaktiven Photochemie in WRF-Chem. Es scheint, dass WRF-Chem für 2019 ein weitgehend NO_x -limitiertes chemisches Regime simuliert und dass die NO_x -Emissionsminderungen im Jahr 2030 zu einer erheblichen Verringerung des Ozons über große Gebiete führen. Im Gegensatz dazu simuliert LOTOS-EUROS für 2019 eine Mischung aus NO_x -limitierten und NO_x -gesättigten (VOC-limitierten) Regionen, und die Reaktion auf Veränderungen der NO_x -Emissionen von 2019 bis 2030 ist heterogener.

Abbildung 46: Veränderung des PSO von 2019 bis 2030 und Veränderung des Beitrags der globalen NO_x -Kennzeichnungen (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 47: Veränderung des PSO von 2019 bis 2030 und Veränderung des Beitrags globaler NO_x-Kennzeichnungen (WRF-Chem)

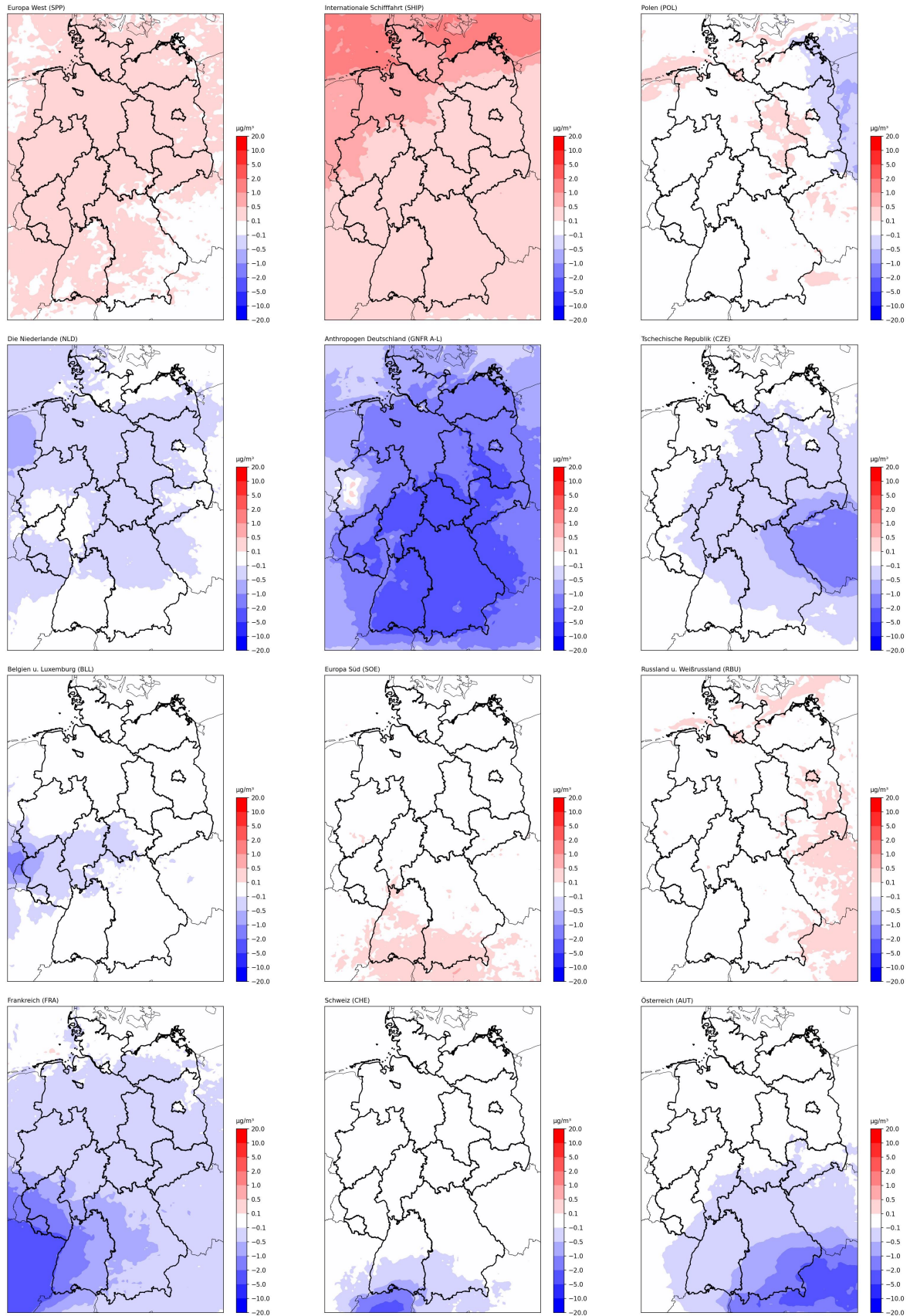


Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Die Reaktionen der Beiträge von weiträumig transportiertem Ozon und Ozon, das aus NO_x-Vorläufern gebildet wird, die im restlichen Europa emittiert werden, unterscheiden sich zwischen den beiden Modellen erheblich. Dies liefert weitere Belege für erheblich unterschiedliche chemische Regime in beiden Modellen und ist wahrscheinlich letztlich auf die bereits zuvor festgestellte überaktive Photochemie in WRF-Chem zurückzuführen. Unterschiedliche chemische Regime zwischen den Modellen würden zu unterschiedlichen Lebensdauern von Ozon und NO_x führen, was die Unterschiede in den Reaktionen der Beiträge verschiedener Kennzeichnungen zum PSO von 2019 bis 2030 erklären könnte.

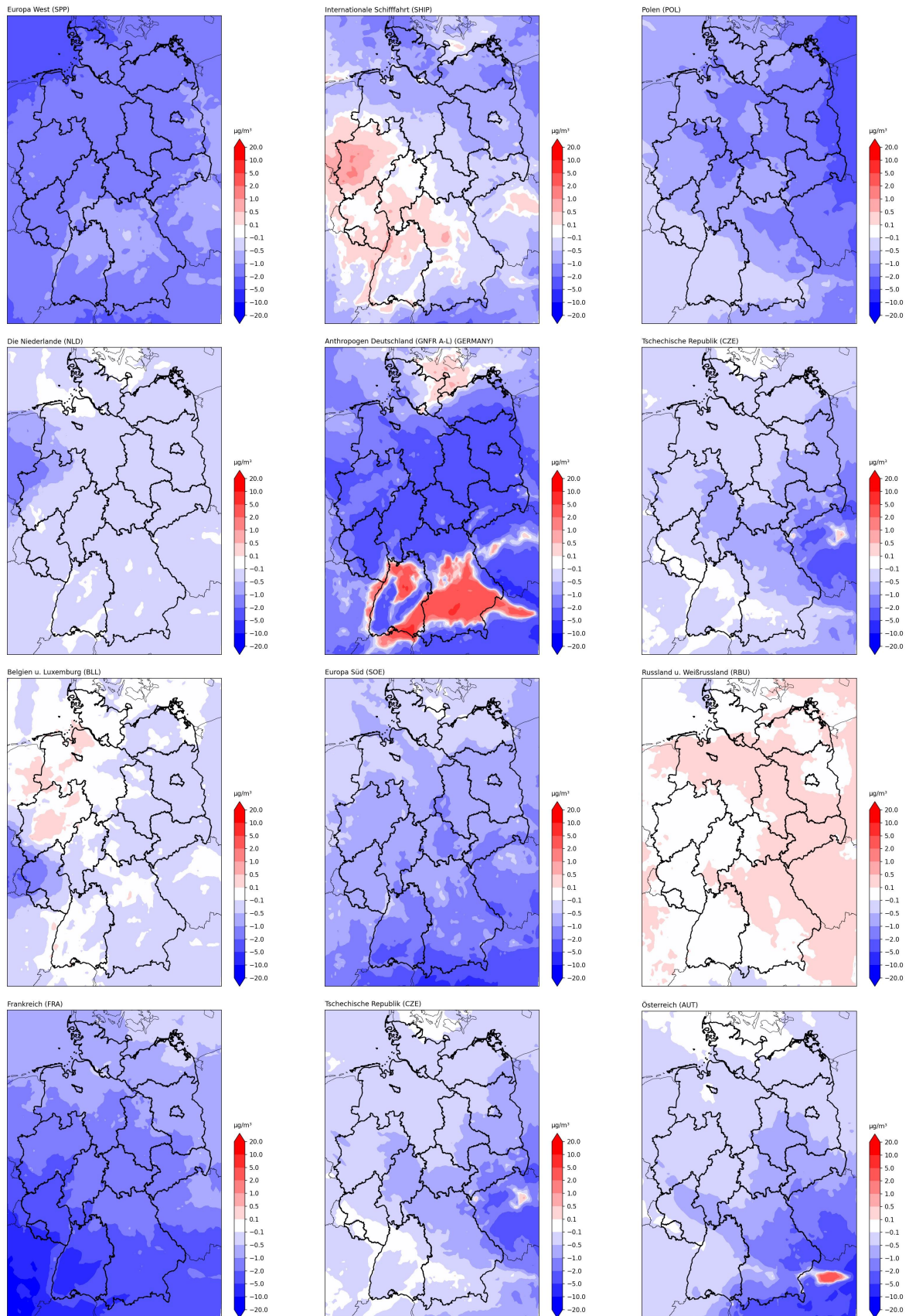
Die Veränderung des Beitrags verschiedener europäischer NO_x-Emissionsquellen zum PSO von 2019 bis 2030 über Deutschland ist in Abbildung 46 und Abbildung 47 für beide Modelle dargestellt. LOTOS-EUROS zeigt von 2019 bis 2030 geringe Veränderungen mit gemischten Vorzeichen bei diesen Beiträgen, während WRF-Chem überwiegend Rückgänge dieser Beiträge zeigt. Diese Unterschiede sind wahrscheinlich auch auf die im Vergleich zu LOTOS-EUROS überaktive Photochemie in WRF-Chem zurückzuführen. Für die vorliegende Studie betrachten wir das LOTOS-EUROS-Modell als realistischere Simulation der PSO-Werte im Jahr 2019 und damit auch als bessere Darstellung der Veränderungen des PSO von 2019 bis 2030.

Abbildung 48: Veränderung des Beitrags europäischer NO_x-Kennzeichnungen zum PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

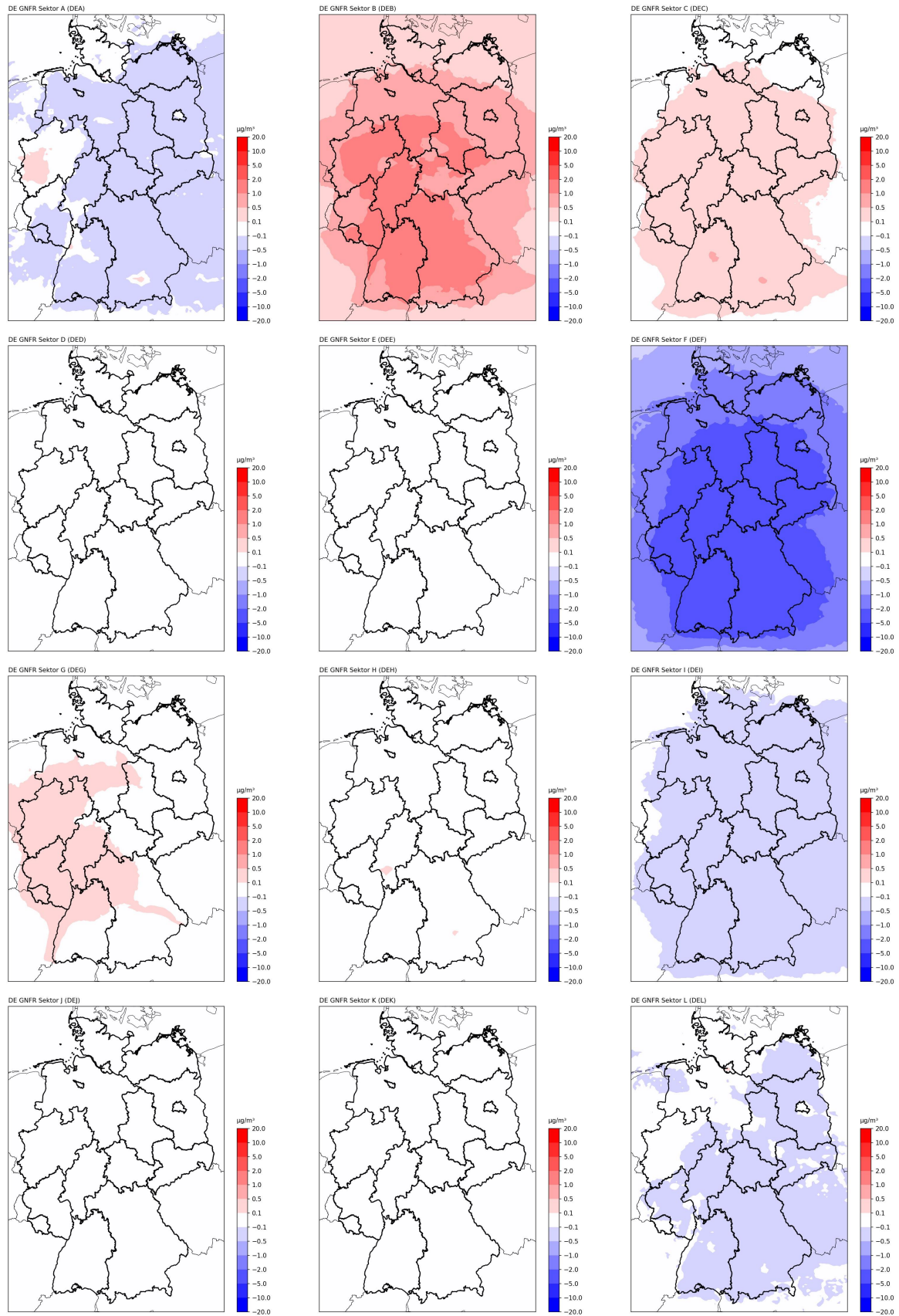
Abbildung 49: Veränderung des Beitrags europäischer NO_x-Kennzeichnungen zum PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 (WRF-Chem)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

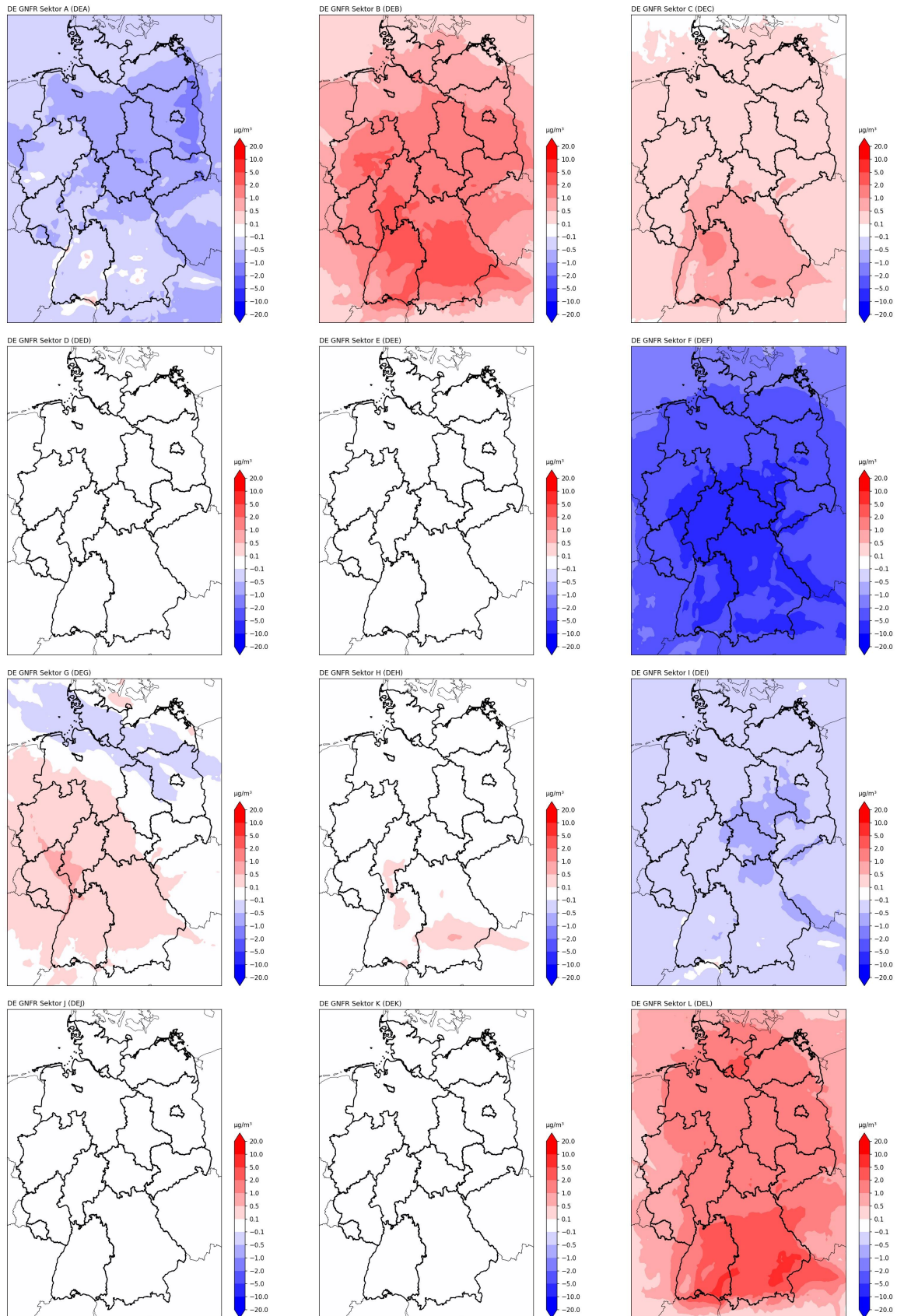
Die Veränderung des Beitrags verschiedener deutscher GNFR-Emissionssektoren zum PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 ist für beide Modelle in Abbildung 48 und Abbildung 49 dargestellt. Mit einigen Ausnahmen zeigen beide Modelle ähnliche Veränderungen des Beitrags der NO_x-Emissionen aus verschiedenen deutschen GNFR-Emissionssektoren zum PSO von 2019 bis 2030. Die Veränderungen dieser Beiträge in WRF-Chem sind jedoch im Vergleich zu den von LOTOS-EUROS modellierten Veränderungen übertrieben. Wie oben erwähnt, halten wir die LOTOS-EUROS-Simulationen für realistischer als die für diese Studie durchgeführten WRF-Chem-Simulationen.

Abbildung 50: Veränderung des Beitrags deutscher GNFR-NO_x-Quellen zum PSO in Deutschland von 2019 bis 2030 (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 51: Veränderung des Beitrags deutscher GNFR-NO_x-Quellen zum PSO in Deutschland von 2019 bis 2030 (WRF-Chem)

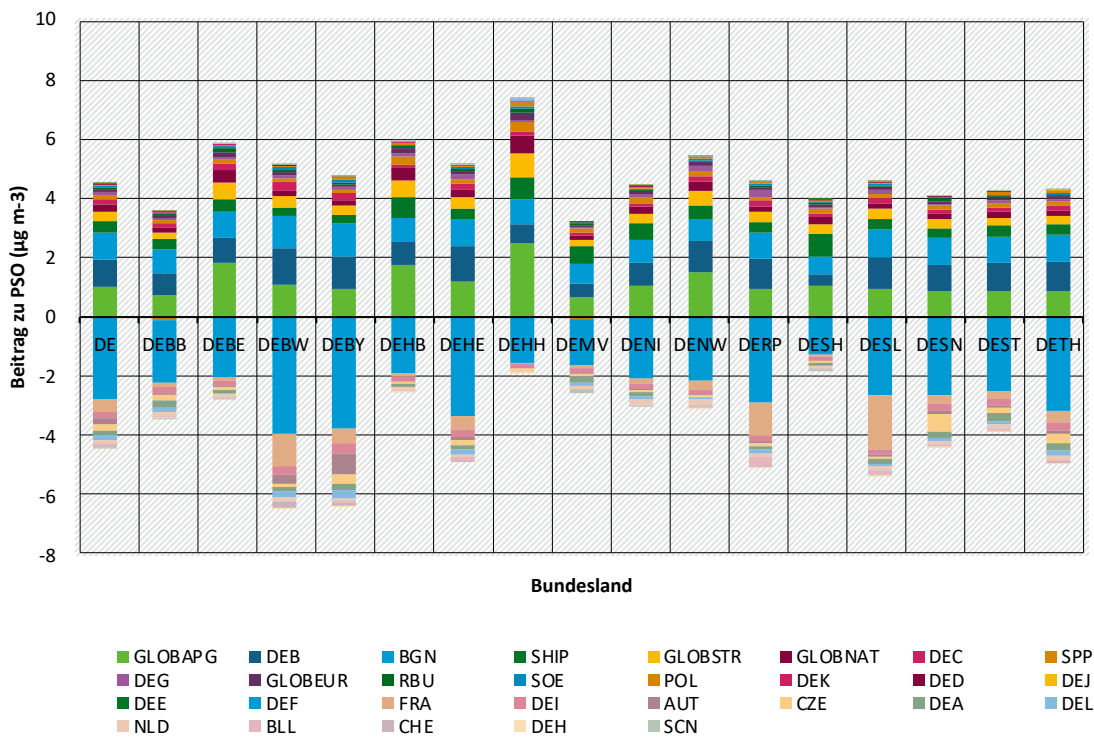


Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

LOTOS-EUROS zeigt einen starken Rückgang des Beitrags der NO_x-Emissionen aus dem Emissionssektor GNFR_F (Straßenverkehr) zum PSO über Deutschland, was die Dominanz dieses Sektors an den gesamten NO_x-Emissionen sowie die starken Reduktionen in diesem Emissionssektor zwischen 2019 und 2030 widerspiegelt. Interessanterweise ist in LOTOS-EUROS von 2019 bis 2030 ein Anstieg des Beitrags der NO_x-Emissionen aus dem Emissionssektor GNFR_B (Industrie) zu beobachten. Die NO_x-Emissionen in diesem Sektor bleiben von 2019 bis 2030 unverändert. Der Anstieg des Anteils der NO_x-Emissionen aus GNFR_B am PSO über Deutschland im LOTOS-EUROS-Modell steht im Einklang mit einem allgemeinen Anstieg der Ozonproduktivität der verbleibenden NO_x-Emissionen, der auf einen allgemeinen Rückgang der NO_x-Emissionen über Deutschland zurückzuführen ist.

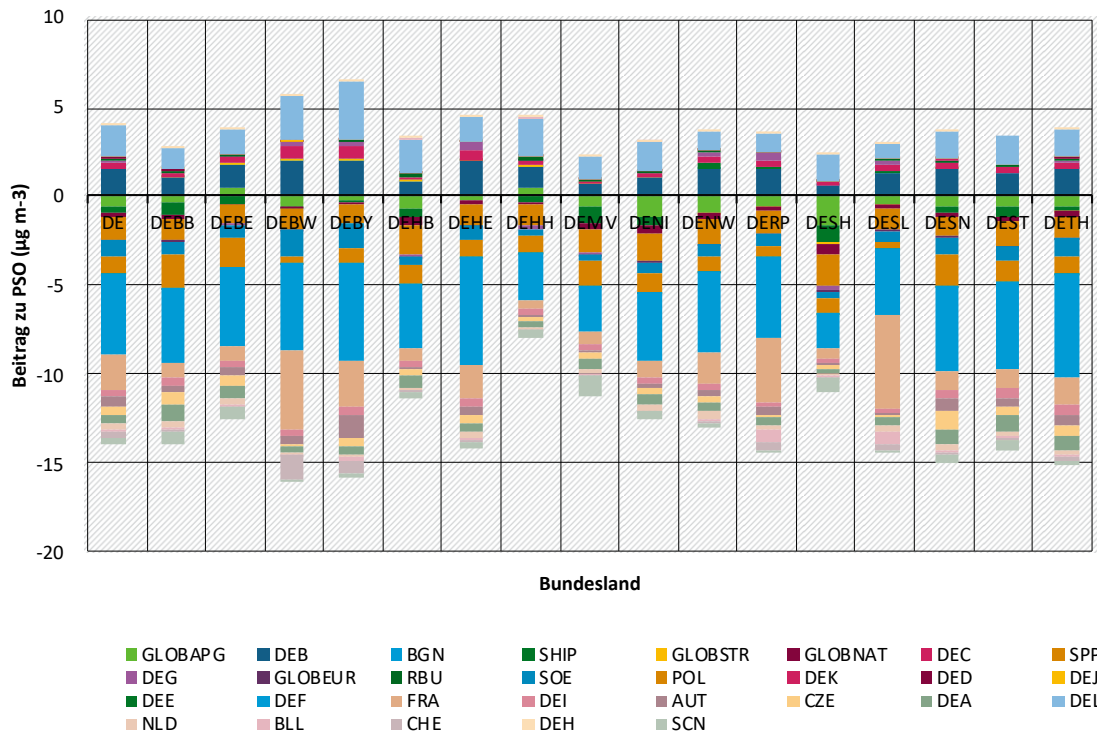
Die räumlich gemittelten Veränderungen des PSO über Deutschland und jedem Bundesland von 2019 bis 2030 und die Veränderungen der Beiträge aller gekennzeichneten NO_x-Quellen sind für beide Modelle in Abbildung 50 und Abbildung 51 dargestellt. WRF-Chem zeigt einen konsistenten Rückgang des PSO von 2019 bis 2030 in allen Bundesländern, während LOTOS-EUROS ein differenzierteres Bild zeigt, bei dem der Rückgang des PSO durch einige Quellen durch den Anstieg des PSO durch andere Quellen ausgeglichen wird. Wie bereits erwähnt, werden die Ergebnisse von LOTOS-EUROS in dieser Studie als zuverlässiger angesehen als die Ergebnisse von WRF-Chem.

Abbildung 52: Veränderung der PSO-Werte (µg/m³) von 2019 bis 2030 über Deutschland und jedem Bundesland sowie Veränderungen der Beiträge verschiedener NO_x-Quellen (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 53: Veränderung der PSO-Werte ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) von 2019 bis 2030 über Deutschland und jedem Bundesland sowie Veränderungen der Beiträge verschiedener NO_x -Quellen (WRF-Chem)

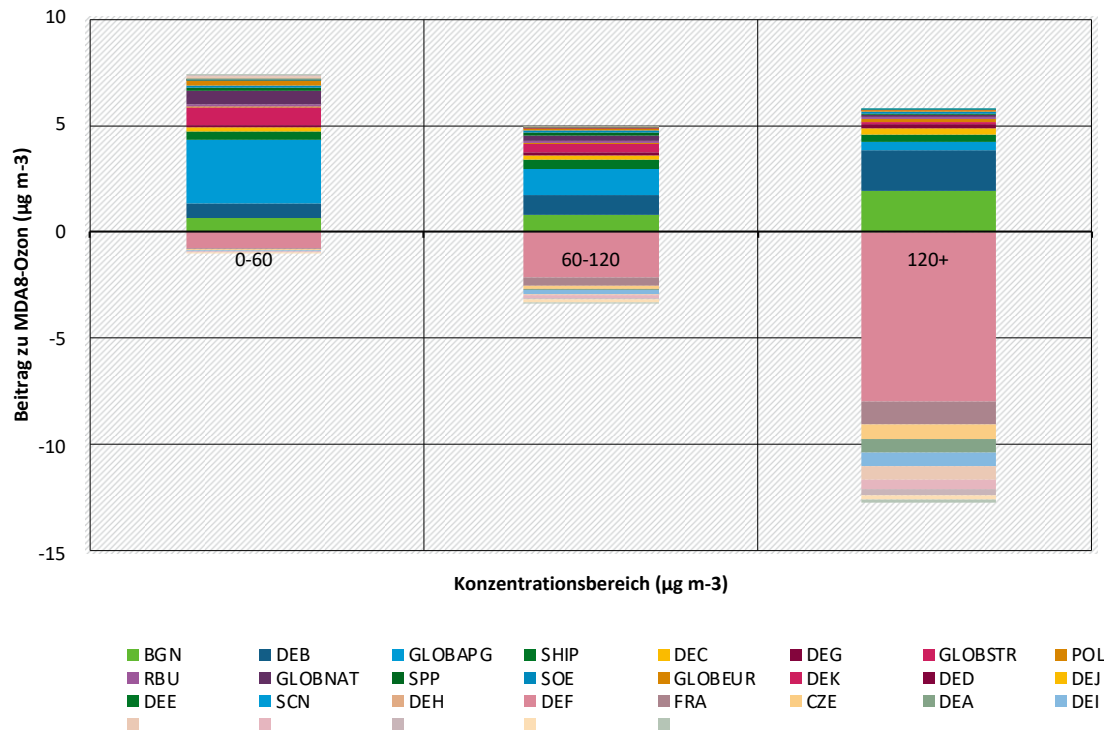


Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

In LOTOS-EUROS steigt der PSO in den Stadtstaaten und in den nördlichen Bundesländern tendenziell an, während er in den südlichen Bundesländern abnimmt, was mit der Simulation eines NO_x -limitierten chemischen Regimes in diesen Regionen durch LOTOS-EUROS im Jahr 2019 und dem Rückgang der NO_x -Emissionen von 2019 bis 2030 übereinstimmt. Der größte Rückgang des PSO-Anteils in allen Bundesländern in LOTOS-EUROS ist auf NO_x -Emissionen aus dem GNFR_F-Sektor zurückzuführen. Geringere Rückgänge des deutschen PSO sind auf den Rückgang von NO_x aus GNFR A, I und L sowie auf den Rückgang des NO_x -Anteils aus Nachbarländern, insbesondere Frankreich, zurückzuführen. Der Anstieg der Beiträge zum PSO in LOTOS-EUROS ist in erster Linie auf das globale Hintergrundozon zurückzuführen, teilweise aufgrund einer Verringerung der Ozontitration und möglicherweise auch aufgrund einer Verlängerung der Lebensdauer des großräumigen Ozons in diesen Simulationen. Ein Anstieg der PSO-Werte aufgrund von GNFR_B und der internationalen Schifffahrt ist ebenfalls in allen Bundesländern zu beobachten, was wahrscheinlich mit der erhöhten Ozonproduktivität von NO_x aus diesen Quellen zusammenhängt.

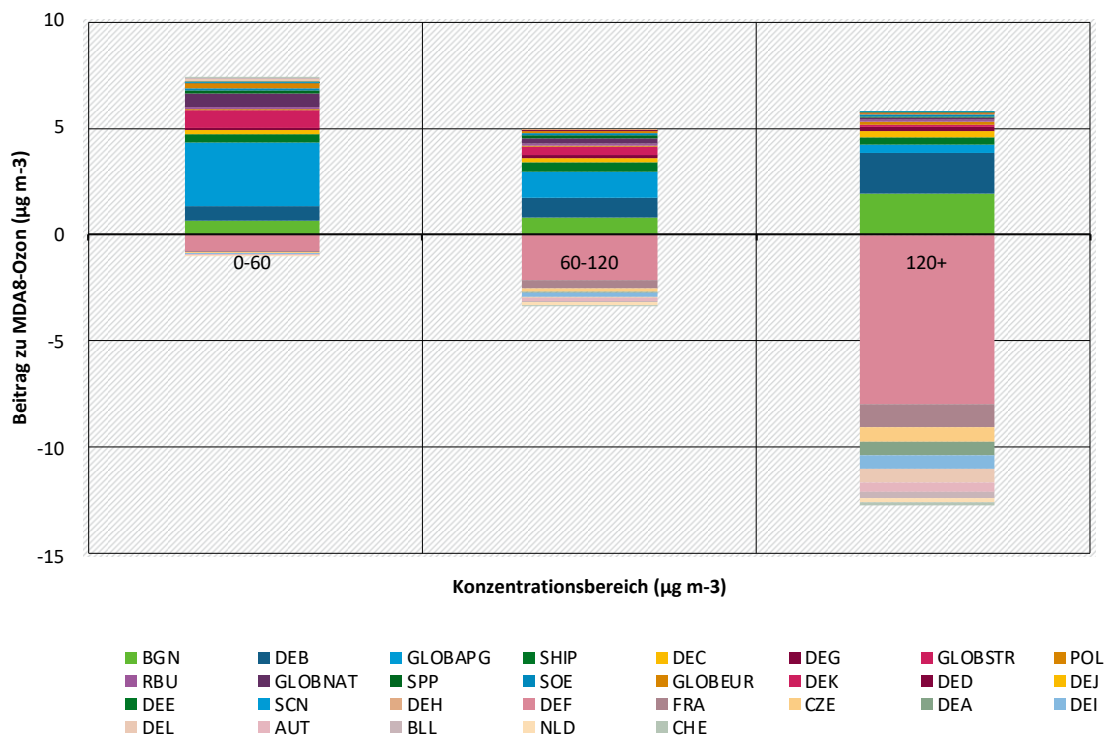
Abbildung 54 und Abbildung 55 zeigen die Veränderungen von 2019 bis 2030 in den Beiträgen der gekennzeichneten NO_x -Quellen zum MDA8-Ozon in verschiedenen Konzentrationsbereichen für beide Modelle. Die Konzentrationsbereiche basieren auf den beobachteten Zeitreihen von MDA8 an allen deutschen Messstellen im Jahr 2019. Die modellierten Werte werden diesen Konzentrationsbereichen unabhängig von der tatsächlich modellierten Konzentration zugeordnet. Die Ergebnisse werden als Veränderung des Beitrags der gekennzeichneten NO_x -Quellen zum modellierten MDA8-Ozon in jedem der Konzentrationsbereiche dargestellt. WRF-Chem zeigt eine ganz andere Reaktion als LOTOS-EUROS. Wie bereits erwähnt, halten wir die Ergebnisse von LOTOS-EUROS für zuverlässiger als die Ergebnisse von WRF-Chem, die in der vorliegenden Studie vorgestellt werden.

Abbildung 54: Veränderung (2019 bis 2030) des Beitrags der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (LOTOS-EUROS)



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 55: Veränderung (2019 bis 2030) des Beitrags der GNFR-Sektoren innerhalb Deutschlands zum MDA8-Ozon in verschiedenen gemessenen Konzentrationsbereichen (WRF-Chem)



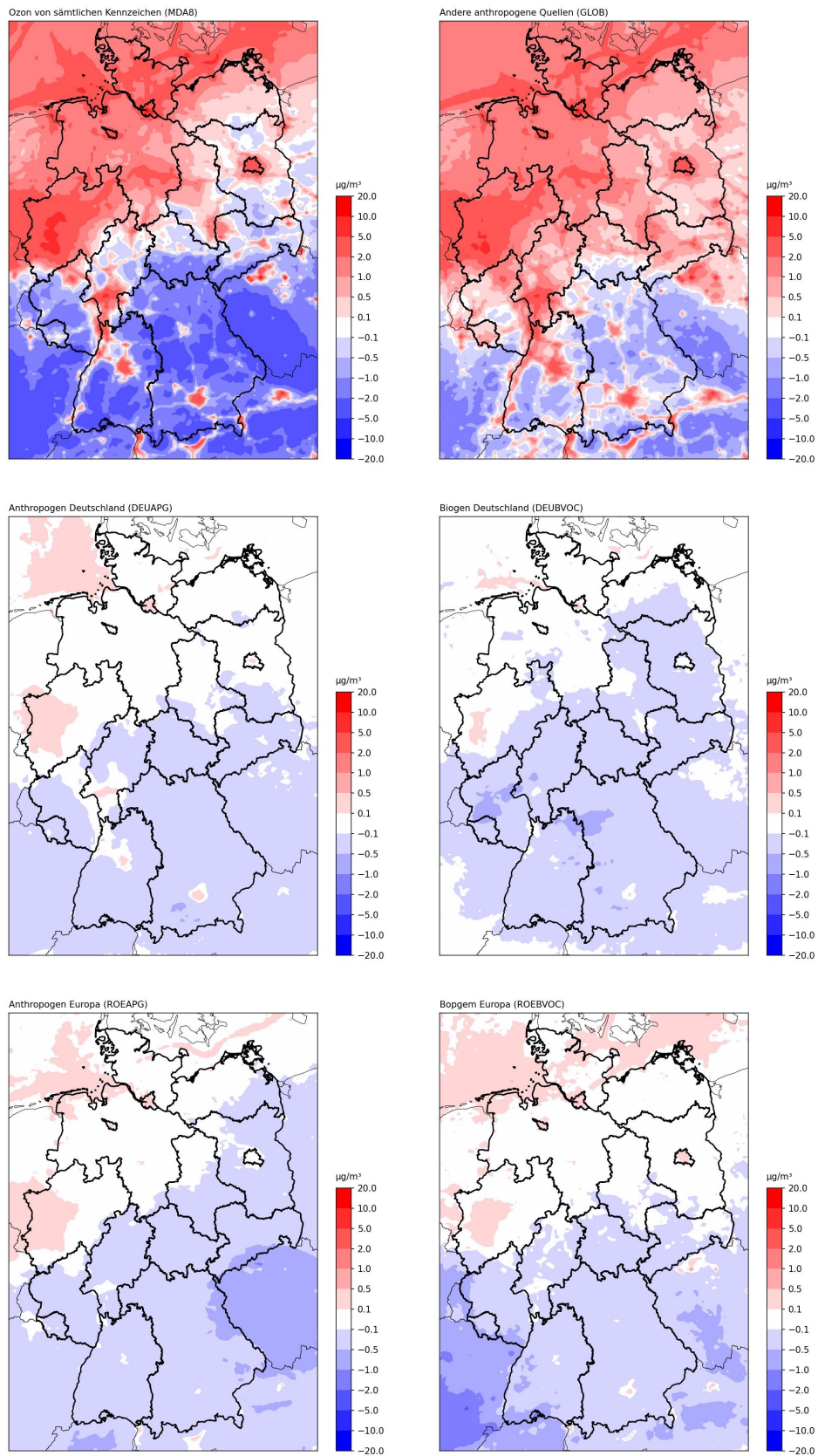
Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

LOTOS-EUROS zeigt einen Anstieg von etwa $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei MDA8-Werten in niedrigeren Konzentrationsbereichen ($0\text{-}60 \mu\text{g}/\text{m}^3$), der in erster Linie auf einen Anstieg des globalen Hintergrundozons zurückzuführen ist, und einen Rückgang um etwa $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei Konzentrationen über $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$, der in erster Linie auf eine starke Verringerung um etwa $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aufgrund reduzierter NO_x -Emissionen aus dem GNFR_F-Sektor sowie geringere Verringerungen der Beiträge aus den Nachbarländern zurückzuführen ist. Die Verringerungen der Beiträge zu MDA8 bei hohen Konzentrationen werden durch einen Anstieg der Beiträge aus GNFR_B, wie bereits erwähnt, sowie durch einen Anstieg des Beitrags von NO_x aus biogenen Quellen ausgeglichen, der in den LOTOS-EUROS-Simulationen zwischen 2019 und 2030 ebenfalls unverändert bleibt.

4.4.2 VOC-gekennzeichnete Simulation für 2030

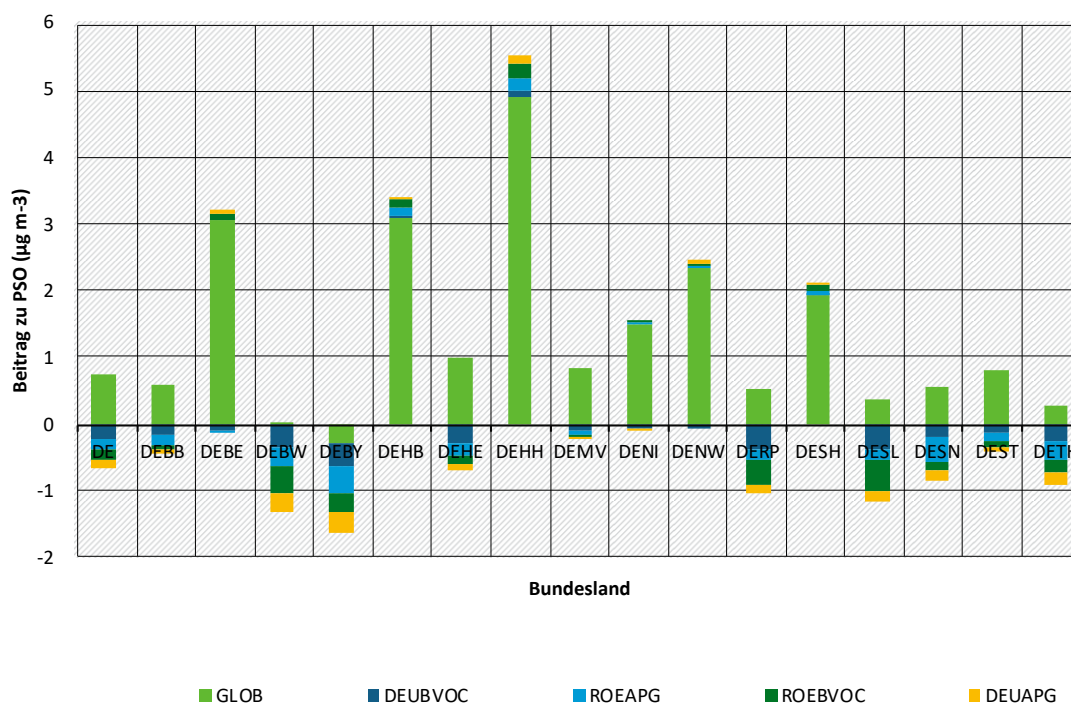
Die Veränderung des PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 und die Beiträge verschiedener VOC-Quellen aus LOTOS-EUROS sind in Abbildung 56 und Abbildung 57 als Karten und als räumlich gemittelte Beiträge dargestellt. Wie bereits bei der Erörterung der VOC-gekennzeichneten Simulation von LOTOS-EUROS für 2019 erwähnt, wurde festgestellt, dass ein großer Teil des PSO auf transportierte VOC-Vorläufer von außerhalb des Modellgebiets zurückzuführen ist und dass der Beitrag der VOC-Emissionen innerhalb des Modellgebiets zum PSO im Vergleich zum Beitrag der NO_x -Emissionen zum PSO in den NO_x -gekennzeichneten Simulationen sehr gering war. Ein ähnliches Muster zeigt sich bei den Veränderungen der Beiträge der gekennzeichneten VOC-Beiträge von 2019 bis 2030 in LOTOS-EUROS. Diese Veränderungen werden durch die Veränderung des Beitrags des weiträumig transportierten Ozons dominiert.

Abbildung 56: Veränderung des PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 und die Veränderungen der Beiträge verschiedener VOC-Quellen



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Abbildung 57: Veränderung des PSO ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) über Deutschland und jedem Bundesland mit der Veränderung der Beiträge verschiedener VOC-Quellen



Quelle: eigene Darstellung (RIFS)

Trotz der Verringerung der anthropogenen VOC-Emissionen in Europa und Deutschland steigt ihr Beitrag zum PSO in Norddeutschland, möglicherweise aufgrund einer Verringerung der Ozontitration und der damit verbundenen Verschiebung des chemischen Regimes hin zu einer höheren lokalen Ozonproduktion. In den südlicheren Bundesländern, in denen die von LOTOS-EUROS simulierte PSO-Werte von 2019 bis 2030 abnehmen, führt LOTOS-EUROS diese Verringerungen sowohl auf anthropogene als auch auf biogene VOC zurück, obwohl in LOTOS-EUROS von 2019 bis 2030 keine Verringerung der biogenen VOC-Emissionen zu verzeichnen ist.

Der im Vergleich zu den europäischen NO_x -Emissionen geringere Einfluss der deutschen und europäischen AVOC- und BVOC-Emissionen auf die Veränderung des PSO (Abbildung 52) könnte auf die Rolle von weiträumig transportierten VOC-Vorläufern hinweisen, insbesondere von Methan, das mit den europäischen NO_x -Emissionen interagiert.

Zusammengenommen deuten diese Ergebnisse stark darauf hin, dass die Veränderungen der PSO-Werte von 2019 bis 2030 in erster Linie auf reduzierte anthropogene NO_x -Emissionen zurückzuführen sind und dass Veränderungen der anthropogenen VOC-Emissionen von 2019 bis 2030 eine viel geringere Rolle bei den modellierten Veränderungen des PSO spielen.

5 Diskussion und Schlussfolgerungen

Das im WRF-Chem-Modell etablierte TOAST-System zur Quellenzuordnung wurde erfolgreich im LOTOS-EUROS-Modell implementiert und demonstriert. Die Ergebnisse der Ozonquellenzuordnung mit LOTOS-EUROS stehen im Einklang mit dem aktuellen Verständnis der Chemie des bodennahen Ozons.

Im Vergleich zu den Beobachtungen erfüllen sowohl LOTOS-EUROS als auch WRF-Chem das FAIRMODE-Modellqualitätsziel. LOTOS-EUROS zeigt eine negative Abweichung gegenüber den Beobachtungen, was zu erwarten war, da die Randbedingungen aus dem in diesem Projekt verwendeten globalen CAM-Chem-Modell den Ozonzufluss in die Modelldomäne im Vergleich zum Reanalyseprodukt aus dem ECMWF-IFS-System unterschätzen. WRF-Chem hingegen zeigt im Vergleich zu den Messungen eine positive Abweichung beim Ozon. Dies steht im Einklang mit einer überaktiven Photochemie in WRF-Chem, die höchstwahrscheinlich auf hohe Photolyse-Raten zurückzuführen ist, wie im früheren Projekt OzonEval festgestellt wurde. Die überaktive Photochemie in WRF-Chem wird besonders deutlich bei der Simulation der Ozonveränderungen von 2019 bis 2030. Das WRF-Chem-Modell zeigt eine Verringerung des deutschen PSO um $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Vergleich zu fast keiner Verringerung des PSO über Deutschland im Jahr 2030 aus der LOTOS-EUROS-Simulation. Dies deutet darauf hin, dass WRF-Chem wesentlich empfindlicher auf NO_x -Emissionen reagiert als LOTOS-EUROS, was genau den Erwartungen bei einer überaktiven Photochemie entspricht. Quantitative Schlussfolgerungen aus dieser Studie basieren daher auf den Simulationen mit LOTOS-EUROS.

Wenn Ozon den NO_x -Emissionen zugeschrieben wird, ist von den $81 \mu\text{g}/\text{m}^3$ PSO (Peak Season Ozonwert, Ozon in den Monaten April bis September), die von LOTOS-EUROS unter den Bedingungen von 2019 über Deutschland modelliert wurden, mehr als die Hälfte ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) auf den Ferntransport von Ozon zurückzuführen. Der Ferntransport von in der Stratosphäre gebildetem Ozon macht $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aus, während $45 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf die photochemische Produktion in der Troposphäre aus NO_x -Emissionen zurückzuführen sind. Der größte Teil davon ($32 \mu\text{g}/\text{m}^3$) ist auf anthropogene NO_x -Emissionen außerhalb Europas zurückzuführen. Von den verbleibenden $31 \mu\text{g}/\text{m}^3$ PSO aufgrund europäischer Emissionen sind $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf biogene NO_x -Emissionen aus Böden zurückzuführen, während sich die restlichen $27 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ungefähr zu gleichen Teilen auf NO_x -Emissionen aus Deutschland und NO_x -Emissionen aus dem übrigen Europa verteilen.

Wenn Ozon den VOC-Emissionen zugeschrieben wird, ist der Beitrag europäischer VOC-Quellen gering. Alle europäischen VOC-Quellen, einschließlich anthropogener und natürlicher Quellen, machen nur $13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ des PSO aus. Die restlichen $68 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sind auf den Transport über die Modellgrenzen zurückzuführen. Da bei der NO_x -Zuordnung $45 \mu\text{g}/\text{m}^3$ des PSO auf ferntransportiertes und aus NO_x -Vorläufern produziertes Ozon zurückgeführt wird, müssen unter der Annahme von geringem NO_x -Transport in die Modellregion die verbleibenden $23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ des Ozons, das in der VOC-markierten Simulation dem Ferntransport zugeordnet wurde, auf den Transport langlebiger VOC in die Modelldomäne zurückgeführt werden. Diese VOC bilden innerhalb des Modells durch chemische Reaktionen mit in Europa emittiertem NO_x Ozon. Dies zeigt, dass die Kontrolle der NO_x -Emissionen für die Verringerung des Ozons viel wirksamer ist als die Kontrolle der VOC-Emissionen.

Innerhalb Deutschlands tragen die NO_x -Emissionen des Straßenverkehrs etwa die Hälfte des gesamten deutschen Beitrags zum PSO über Deutschland im Jahr 2019 bei. Dies entspricht angesichts des Umfangs der Emissionen aus diesem Sektor den Erwartungen. Bei der Zuordnung von Ozon zu NO_x -Emissionen auf Basis der Bundesländer tragen die größeren und südlicher gelegenen Bundesländer, insbesondere Bayern und Baden-Württemberg, mit etwa 9 – 10 % mehr zu ihrem eigenen PSO aus ihren eigenen NO_x -Emissionen bei als kleinere und nördlicher

gelegene Bundesländer, die etwa 2 – 5 % zu ihrem eigenen PSO beitragen. Wenn man diese Beiträge der Bundesländer zu ihrem eigenen PSO als Prozentsatz des gesamten anthropogenen Beitrags Deutschlands zum PSO über diesen Bundesländern im Jahr 2019 ausdrückt, machen Bayern und Baden-Württemberg 53 – 56 % des gesamten deutschen Beitrags zum PSO über ihrem eigenen Gebiet aus, während die kleineren und nördlicher gelegenen Bundesländer in der Regel 20 – 30 % des gesamten deutschen Beitrags zum PSO über ihrem eigenen Gebiet ausmachen. Die Stadtstaaten (Berlin, Bremen und Hamburg) sind stärker von den NO_x -Emissionen ihrer größeren Nachbarstaaten beeinflusst als von ihren eigenen NO_x -Emissionen. Dies zeigt, dass Maßnahmen zur Ozonminderung in Deutschland nicht isoliert auf Ebene einzelner Bundesländer betrachtet werden können. Vielmehr sind eine länderübergreifende Abstimmung sowie nationale und internationale Rahmenbedingungen von zentraler Bedeutung. Höhere MDA8-Ozonwerte werden stärker von NO_x -Emissionen aus der Umgebung beeinflusst. Wenn das von LOTOS-EUROS an den Standorten der Messstationen in Deutschland simulierte MDA8-Ozon auf der Grundlage der beobachteten MDA8-Ozonkonzentration in Klassen eingeteilt wird, zeigen Konzentrationen im Bereich von 0 bis $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ einen Einfluss des weiträumigen Ozontransports über die Modellgrenzen hinweg von 74 %. Bei Konzentrationen über $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sinkt dieser Anteil auf 47 %. Deutsche anthropogene NO_x -Quellen tragen 25 % zu MDA8-Ozonkonzentrationen über $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei, wobei etwa die Hälfte davon auf NO_x -Emissionen aus dem Straßenverkehr zurückzuführen ist. Dies zeigt, wie wichtig NO_x -Emissionskontrollen für die Verringerung hoher Ozonwerte sind.

In einem Emissionsszenario für 2030, in dem die anthropogenen NO_x - und VOC-Emissionen über Deutschland etwa halbiert werden, bleibt der von LOTOS-EUROS für Deutschland insgesamt simulierte PSO nahezu unverändert. Die starken Reduzierungen der NO_x -Emissionen des deutschen Straßenverkehrs im Jahr 2030 gegenüber 2019 führen zu einer Verringerung des Beitrags dieser Quelle zum PSO über Deutschland und allen Bundesländern. Reduktionen der NO_x -Emissionen von Offroad-Maschinen, Kraftwerken, der Landwirtschaft und des Luftverkehrs führen ebenfalls zu geringeren Beiträgen all dieser Sektoren zum PSO über Deutschland im Jahr 2030 im Vergleich zu 2019. NO_x -Emissionsreduktionen in Frankreich, Österreich, Tschechien, den Niederlanden, Belgien, Luxemburg, der Schweiz und den skandinavischen Ländern verringern ebenfalls den Beitrag dieser Länder zum PSO über Deutschland im Jahr 2030.

Die Verringerung der Beiträge dieser Sektoren und Länder zum PSO über Deutschland im Jahr 2030 wird durch einen Anstieg der Beiträge anderer Regionen und Sektoren ausgeglichen. Der Beitrag des weiträumigen Transports von Ozon über die Modellgrenzen steigt im Jahr 2030 aufgrund einer Verringerung der Titration des Hintergrundozons durch NO_x , insbesondere über Norddeutschland und in bebauten Gebieten. Nicht alle Emissionssektoren weisen von 2019 bis 2030 eine Verringerung der NO_x -Emissionen auf. Die biogenen NO_x -Emissionen aus Böden bleiben in den Läufen mit LOTOS-EUROS sowohl für 2019 als auch für 2030 konstant, und auch die anthropogenen NO_x -Emissionen aus der Industrie bleiben unverändert. Wenn die gesamten NO_x -Emissionen reduziert werden, steigt die Ozonproduktivität der verbleibenden NO_x -Emissionen. Dies führt dazu, dass der Beitrag dieser unveränderten Emissionssektoren zum PSO im Jahr 2030 im Vergleich zu 2019 zunimmt. Über Norddeutschland und Ballungsräumen führt die Verringerung der Ozontitration durch reduzierte NO_x -Emissionen zu einer Zunahme des PSO im Jahr 2030. Über ländlichen Gebieten Süddeutschlands führen die reduzierten NO_x -Emissionen im Jahr 2030 zu einer geringeren lokalen Ozonproduktion und einem insgesamt geringeren PSO.

Die MDA8-Ozonwerte an Tagen und an Standorten, an denen 2019 Werte unter $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gemessen wurden, steigen 2030 vor allem aufgrund der Verringerung der Ozon-Titration durch reduzierte NO_x -Emissionen an. Die 2019 im Bereich von 0 bis $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beobachteten Werte steigen im Durchschnitt um $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$, während die Werte im Bereich von 60 bis $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im

Durchschnitt um $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ steigen. Die 2019 beobachteten MDA8-Werte über $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sinken im Jahr 2030 um durchschnittlich $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Der Rückgang der hohen MDA8-Werte im Jahr 2030 gegenüber 2019 ist in erster Linie auf die Verringerung der NO_x -Emissionen des deutschen Straßenverkehrssektors zurückzuführen.

Die Ergebnisse der VOC-gekennzeichneten Simulation mit LOTOS-EUROS für 2030 zeigen, dass die Veränderungen des PSO über Deutschland von 2019 bis 2030 in erster Linie auf die Veränderungen der NO_x -Emissionen von 2019 bis 2030 zurückzuführen sind und nicht auf Veränderungen der VOC-Emissionen. In Bundesländern, die 2030 einen Anstieg des PSO verzeichnen, ist dieser Anstieg überwiegend auf einen Anstieg des Beitrags von weiträumig transportiertem Ozon zurückzuführen, das über die Modellgrenzen eintritt, was auf eine verringerte Titration hindeutet. Der Beitrag der europäischen VOC-Emissionen zum PSO im Jahr 2030 ist in vielen Bundesländern im Vergleich zu 2019 zurückgegangen, wobei jedoch sowohl bei den Beiträgen biogener VOC (deren Emissionen 2030 nicht reduziert werden) als auch bei den anthropogenen VOC (die 2030 reduziert werden) Rückgänge zu verzeichnen sind. Dies deutet stark darauf hin, dass die Gesamt-Ozonproduktionsleistung aller VOC (sowohl anthropogener als auch biogener) aufgrund einer geringeren Verfügbarkeit von NO_x sinkt, wobei die reduzierten Emissionen anthropogener VOC in Deutschland und Europa im Jahr 2030 nur eine untergeordnete Rolle bei der Verringerung des Beitrags dieser Quelle zum PSO im Jahr 2030 spielen.

Die quantitativen Ergebnisse dieser Studie stammen fast ausschließlich aus einem einzigen Modell. Obwohl die Studie als Modellvergleich mit zwei Modellen (WRF-Chem und LOTOS-EUROS) konzipiert war, zeigte das Ozonquellenzuordnungssystem, dass die in dieser Studie verwendete spezielle Konfiguration von WRF-Chem fehlerhaft war. Dieses Ergebnis zeigt zwar die Nützlichkeit der Ozonquellenzuordnung für die Diagnose von Modellmängeln, dennoch besteht weiterhin Bedarf an einer Multi-Modell-Studie zur Ozonquellenzuordnung, um sicherzustellen, dass die quantitativen Ergebnisse nicht nur auf einem einzigen Modell basieren. Zukünftige Studien sollten die Ergebnisse der Ozonquellenzuordnung unter Verwendung mehrerer Modelle vergleichen, möglicherweise einschließlich einer ordnungsgemäß konfigurierten Version von WRF-Chem.

Die Verwendung lateraler Randbedingungen aus dem globalen Modell CAM-chem in dieser Studie ermöglichte die Zuordnung des Hintergrundozons zu verschiedenen globalen Quellen, erschwerte jedoch den direkten Vergleich der regionalen Modellergebnisse mit Beobachtungen aufgrund einer systematischen negativen Verzerrung in den globalen Modellergebnissen. Darüber hinaus war die Verwendung der aktuellen Randbedingungen für die Modellläufe des Szenarios für 2030 angesichts der zu erwartenden Veränderungen der globalen Emissionen in diesem Zeitraum unrealistisch. Angesichts des in dieser Studie aufgezeigten starken Einflusses des interkontinentalen Langstreckentransports von Ozon sollten sich zukünftige Studien darauf konzentrieren, realistischere globale Randbedingungen für regionale Modellsimulationen bereitzustellen, einschließlich der zu erwartenden Veränderungen der Emissionen von Ozonvorläufern außerhalb Europas.

Diese Studie hat gezeigt, dass der Ferntransport von VOC-Ozonvorläufern von außerhalb Europas einen erheblichen Beitrag zur Ozonbildung innerhalb Europas leisten kann. Es werden weitere Arbeiten empfohlen, um die globalen oder hemisphärischen Ursprünge dieser ferngetransportierten Ozonvorläufer zu verstehen.

Insgesamt zeigen die Ergebnisse dieser Studie, dass die Zuordnung von Ozonquellen mit Kennzeichnung ein nützliches Modellierungsinstrument ist, das als Grundlage für die Ozonminderungspolitik dienen kann. NO_x -Emissionen sind nachweislich ein stärkerer Treiber

für Ozon und dessen Minderungspotenzial als VOC-Emissionen. Die Bedeutung der Reduzierung der NO_x -Emissionen für die Verringerung der Ozon-Spitzenkonzentrationen wird bestätigt, während die ausgleichenden Effekte einer verringerten Ozontitration unter niedrigeren NO_x -Bedingungen ebenfalls deutlich erkennbar sind. Die erhöhte Ozonproduktivität der verbleibenden NO_x -Quellen unter niedrigeren NO_x -Bedingungen kann quantifiziert werden. Die Bedeutung des weiträumigen, grenzüberschreitenden Transports von Ozon wird ebenfalls quantifiziert. Die Ozonminderung in Deutschland sollte sich auf die Reduzierung der verbleibenden NO_x -Emissionen konzentrieren, über Landesgrenzen hinweg koordiniert werden und auch internationale Maßnahmen umfassen, um sicherzustellen, dass die NO_x -Emissionen in anderen europäischen Ländern und in der gesamten nördlichen Hemisphäre weiter sinken. Obwohl in dieser Studie nicht direkt quantifiziert, wird auch die Rolle von Methan als Ozonvorläufer stark angedeutet. Das internationale Engagement Deutschlands könnte sich auch auf die Reduzierung dieses wichtigen Ozonvorläufers konzentrieren.

6 Quellenverzeichnis

Atkinson, R.: Atmospheric chemistry of VOCs and NO_x, *Atmos. Environ.*, **34**, 2063–2101, 2000.

Butler, T., Lupascu, A., Coates, J., and Zhu, S.: TOAST 1.0: Tropospheric Ozone Attribution of Sources with Tagging for CESM 1.2.2, *Geoscientific Model Development*, **11**, 2825–2840, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-2825-2018>, 2018.

Butler, T., Lupascu, A., and Nalam, A.: Attribution of ground-level ozone to anthropogenic and natural sources of nitrogen oxides and reactive carbon in a global chemical transport model, *Atmos. Chem. Phys.*, **20**, 10707–10731, <https://doi.org/10.5194/acp-20-10707-2020>, 2020.

Clappier, A., Belis, C. A., Pernigotti, D., and Thunis, P.: Source apportionment and sensitivity analysis: two methodologies with two different purposes, *Geoscientific Model Development*, **10**, 4245–4256, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-4245-2017>, 2017.

Crutzen, P.: A discussion of the chemistry of some minor constituents in the stratosphere and troposphere, *Pure Appl. Geophys.*, **106**, 1385–1399, 1973.

Dunker, A. M., Yarwood, G., Ortman, J. P., and Wilson, G. M.: Comparison of source apportionment and source sensitivity of ozone in a three-dimensional air quality model, *Environmental Science and Technology*, **36**, 2953–2964, <https://doi.org/10.1021/es011418f>, 2002.

Grewe, V., Tsati, E., and Hoor, P.: On the attribution of contributions of atmospheric trace gases to emissions in atmospheric model applications, *Geoscientific Model Development*, **3**, 487–499, <https://doi.org/10.5194/gmd-3-487-2010>, 2010.

Grewe, V., Tsati, E., Mertens, M., Frömming, C., and Jöckel, P.: Contribution of emissions to concentrations: the TAGGING 1.0 submodel based on the Modular Earth Submodel System (MESSy 2.5.2), *Geoscientific Model Development*, **10**, 2615–2633, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-2615-2017>, 2017.

Haagen-Smit, A. J.: Chemistry and physiology of Los-Angeles smog, *Ind. Eng. Chem.*, **44**, 1342–1346, 1952.

Hendriks, C., Kuenen, J., Kranenburg, R., Schaap, M., and Bultjes, P.: Modelling the Impact of Energy Transitions on Air Quality and Source Receptor Relations, in: *Air Pollution Modeling and its Application XXIII*, edited by: Steyn, D. and Mathur, R., Springer International Publishing, Cham, 183–187, https://doi.org/10.1007/978-3-319-04379-1_30, 2014.

Hendriks, C., Kranenburg, R., Kuenen, J. J. P., Van Den Bril, B., Verguts, V., and Schaap, M.: Ammonia emission time profiles based on manure transport data improve ammonia modelling across north western Europe, *Atmospheric Environment*, **131**, 83–96, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.01.043>, 2016.

Jonson, J. E., Schulz, M., Emmons, L., Flemming, J., Henze, D., Sudo, K., Lund, M. T., Lin, M., Benedictow, A., Koffi, B., Dentener, F., Keating, T., Kivi, R., and Davila, Y.: The effects of intercontinental emission sources on European air pollution levels, *Atmospheric Chemistry and Physics*, **18**, 13655–13672, <https://doi.org/10.5194/acp-18-13655-2018>, 2018.

Kranenburg, R., Schaap, M., Huibregtse, E., Hendriks, C., and Segers, A.: Source Apportionment in the LOTOS-EUROS Air Quality Model, in: *Air Pollution Modeling and its Application XXII*, edited by: Steyn, D. G., Bultjes, P. J. H., and Timmermans, R. M. A., Springer Netherlands, Dordrecht, 387–390, https://doi.org/10.1007/978-94-007-5577-2_65, 2014.

Kwok, R. H. F., Baker, K. R., Napelenok, S. L., and Tonnesen, G. S.: Photochemical grid model implementation and application of VOC, NO_x, and O₃ source apportionment, *Geoscientific Model Development*, **8**, 99–114, <https://doi.org/10.5194/gmd-8-99-2015>, 2015.

Lupaşcu, A. and Butler, T.: Source attribution of European surface O₃ using a tagged O₃ mechanism, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 14535–14558, <https://doi.org/10.5194/acp-19-14535-2019>, 2019.

Manders, A. M. M., Builtjes, P. J. H., Curier, L., Gon, H. A. C. D. van der, Hendriks, C., Jonkers, S., Kranenburg, R., Kuenen, J. J. P., Segers, A. J., Timmermans, R. M. A., Visschedijk, A. J. H., Kruit, R. J. W., Pul, W. A. J. van, Sauter, F. J., Swaluw, E. van der, Swart, D. P. J., Douros, J., Eskes, H., Meijgaard, E. van, Ulft, B. van, Velthoven, P. van, Banzhaf, S., Mues, A. C., Stern, R., Fu, G., Lu, S., Heemink, A., Velzen, N. van, and Schaap, M.: Curriculum vitae of the LOTOS–EUROS (v2.0) chemistry transport model, *Geoscientific Model Development*, 10, 4145–4173, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-4145-2017>, 2017.

Mertens, M., Grewe, V., Rieger, V. S., and Jöckel, P.: Revisiting the contribution of land transport and shipping emissions to tropospheric ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 5567–5588, <https://doi.org/10.5194/acp-18-5567-2018>, 2018.

Mertens, M., Kerkweg, A., Grewe, V., Jöckel, P., and Sausen, R.: Attributing ozone and its precursors to land transport emissions in Europe and Germany, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 7843–7873, <https://doi.org/10.5194/acp-20-7843-2020>, 2020.

Mills, G., Pleijel, H., Malley, C. S., Sinha, B., Cooper, O. R., Schultz, M. G., Neufeld, H. S., Simpson, D., Sharps, K., Feng, Z., Gerosa, G., Harmens, H., Kobayashi, K., Saxena, P., Paoletti, E., Sinha, V., and Xu, X.: Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day tropospheric ozone distribution and trends relevant to vegetation, *Elementa: Science of the Anthropocene*, 6, 47, <https://doi.org/10.1525/elementa.302>, 2018.

Monks, P. S., Archibald, A. T., Colette, A., Cooper, O., Coyle, M., Derwent, R., Fowler, D., Granier, C., Law, K. S., Mills, G. E., Stevenson, D. S., Tarasova, O., Thouret, V., Von Schneidmesser, E., Sommariva, R., Wild, O., and Williams, M. L.: Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 8889–8973, <https://doi.org/10.5194/acp-15-8889-2015>, 2015.

Nalam, A., Lupaşcu, A., Ansari, T., and Butler, T.: Regional and sectoral contributions of NO_x and reactive carbon emission sources to global trends in tropospheric ozone during the 2000–2018 period, *Atmos. Chem. Phys.*, 25, 5287–5311, <https://doi.org/10.5194/acp-25-5287-2025>, 2025.

Pommier, M., Fagerli, H., Schulz, M., Valdebenito, A., Kranenburg, R., and Schaap, M.: Prediction of source contributions to urban background PM₁₀ concentrations in European cities: a case study for an episode in December 2016 using EMEP/MSC-W rv4.15 and LOTOS-EUROS v2.0 – Part 1: The country contributions, *Geosci. Model Dev.*, 13, 1787–1807, <https://doi.org/10.5194/gmd-13-1787-2020>, 2020.

Pültz, J., Banzhaf, S., Thürkow, M., Kranenburg, R., and Schaap, M.: Source attribution of particulate matter in Berlin, *Atmospheric Environment*, 292, 119416, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2022.119416>, 2023.

Reich, P. B. and Amundson, R. G.: Ambient Levels of Ozone Reduce Net Photosynthesis in Tree and Crop Species, *Science*, 230, 566–570, <https://doi.org/10.1126/science.230.4725.566>, 1985.

Sillman, S.: The use of NO_y, H₂O₂, and HNO₃ as indicators for ozone-NO_x-hydrocarbon sensitivity in urban locations, *J. Geophys. Res.*, 100, 14175–14188, 1995.

Thunis, P., Clappier, A., Tarrason, L., Cuvelier, C., Monteiro, A., Pisoni, E., Wesseling, J., Belis, C. A., Pirovano, G., Janssen, S., Guerreiro, C., and Peduzzi, E.: Source apportionment to support air quality planning: Strengths and weaknesses of existing approaches, *Environment International*, 130, 104825, <https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.05.019>, 2019.

Thürkow, M., Banzhaf, S., Butler, T., Pültz, J., and Schaap, M.: Source attribution of nitrogen oxides across Germany: Comparing the labelling approach and brute force technique with LOTOS-EUROS, *Atmospheric Environment*, 292, 119412, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2022.119412>, 2023.

Timmermans, R., Van Pinxteren, D., Kranenburg, R., Hendriks, C., Fomba, K. W., Herrmann, H., and Schaap, M.: Evaluation of modelled LOTOS-EUROS with observational based PM10 source attribution, *Atmospheric Environment: X*, 14, 100173, <https://doi.org/10.1016/j.aeaoa.2022.100173>, 2022.