

TEXTE

95/2024

Orientierende Erfassung von Black Carbon (BC) in Deutschland und Identifikation relevanter Quellen mit Chemie-Transport-Modellen

Endbericht

TEXTE 95/2024

Ressortforschungsplan des Bundesministerium für
Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit

Forschungskennzahl 3717 51 250 0

FB000636

Orientierende Erfassung von Black Carbon (BC) in Deutschland und Identifikation relevanter Quellen mit Chemie-Transport- Modellen

Endbericht

von

Astrid Manders, Antoon Visschedijk, Hugo Denier van der
Gon, Jeroen Kuenen, Renske Timmermans, Martijn
Schaap
TNO, Utrecht, Niederlande

Florian Pfäfflin, Christian Latt, Anna Mahlau, Florian
Tautz, Heike Wursthorn
IVU Umwelt GmbH, Freiburg

Andrea Cuesta, Thomas Müller, Dominik van Pinxteren,
Alfred Wiedensohler,
TROPOS, Leipzig

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

Impressum

Herausgeber

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

Durchführung der Studie:

The Netherlands Organisation for Applied Scientific Research (TNO))
Princetonlaan 6
3584 CB Utrecht
Niederlande

Abschlussdatum:

Oktober 2021

Redaktion:

Fachgebiet II 4.1 Grundsatzfragen der Luftreinhaltung
Stephan Nordmann

Publikationen als pdf:

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

ISSN 1862-4804

Dessau-Roßlau, Juni 2024

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

Kurzbeschreibung: Orientierende Erfassung von Black Carbon (BC) in Deutschland und Identifikation relevanter Quellen mit Chemie-Transport-Modellen

Schwarzer Kohlenstoff (Black Carbon, BC) ist eine Feinstaubkomponente, die bei Verbrennungsprozessen in die Atmosphäre freigesetzt wird und negative Auswirkungen auf die Gesundheit und das Klima hat. Aktuelle Emissions- und Konzentrationsabschätzungen sind unsicher. Das Hauptziel dieses Projekts ist die Verbesserung der Beschreibung der Emissionsquellen und der Konzentrationsverteilung für BC in Deutschland durch eine kombinierte Auswertung von Messdaten und Modellierungsergebnissen. Die Emissionen des UBA Katasters wurden hinsichtlich Emissionsfaktoren aus der Literatur und Konsistenz mit internationalen Emissionsdatenbanken evaluiert. Die wichtigsten Quellsektoren für BC sind Hausbrand, Verkehr und landwirtschaftlicher Verkehr. Für Hausbrand wurden höhere Emissionsfaktoren vorgeschlagen, während für Bremsen und Reifenabrieb niedrigere Emissionsfaktoren angemessener wären. Darüber hinaus wurden die Ansätze für die räumliche Verteilung von Hausbrand und landwirtschaftlichen Verkehr modifiziert. Die verschiedenen Herangehensweisen wurden anhand mehrerer Szenariosimulationen des Luftqualitätsmodells LOTOS-EUROS in Vergleich mit gemessenen Konzentrationszeitreihen ausgewertet. Ein Labeling-Ansatz wurde verwendet, um die Beiträge der Quellsektoren und Quellregionen zu identifizieren und Rückschlüsse auf die Emissionen zu ziehen. Diese Szenarien beinhalteten auch die Modifikation von Zeitprofilen der Emissionen, insbesondere für Verkehr (Kaltstart) und landwirtschaftliche Maschinen (Erntear- und Temperaturabhängigkeit). Die Auswertungen wurden erschwert, da Daten von verschiedenen Messgerätetypen verwendet wurden, die nicht direkt vergleichbar waren und Teile Deutschlands nicht abgedeckt wurden. Insgesamt haben die Szenariosimulationen zu einer verbesserten Erfassung der BC Konzentrationsverteilung über Deutschland mit dem Chemie-Transportmodell LOTOS-EUROS geführt.

Für Berlin wurden Kampagnenmessungen an vier Standorten durchgeführt, bei denen der BC aus Aethalometern mit parallelen Messungen von elementarem Kohlenstoff harmonisiert wurde. Dies führte zu eBC-Konzentrationen, die etwa um den Faktor 2 niedriger waren als die, die Standardkorrekturen erhalten wurden. Auch der Beitrag der Biomasseverbrennung wurde mit einem neu entwickelten Ansatz geschätzt, was zu höheren Beiträgen der Biomasseverbrennung führte, als zuvor geschätzt. Die Aethalometer-Messungen aus Berlin wurden zur Auswertung von Modellläufen verwendet, bei denen der regionale Hintergrund aus LOTOS-EUROS mit den lokalen Beiträgen von Hausbrand und Verkehr aus den mikroskaligen Modellen MISKAM/LASAT kombiniert wurde. Eine gute Übereinstimmung wurde sowohl für die Konzentrationswerte als auch für den Beitrag der Biomasseverbrennung gefunden. Der gewählte Ansatz hat somit zu einem konsistenten Bild der BC-Emissionen, beobachteten und modellierten Konzentrationen in Berlin geführt.

Abstract: Orienting assessment of Black Carbon (BC) in Germany and identification of relevant sources with chemical transport models.

Black carbon (BC) is a particulate matter species that is released to the atmosphere in combustion processes and has an adverse impact on health and climate. Current emission and concentration estimates are uncertain. In this report, the aim is to improve this situation for Germany. Officially reported emissions of UBA are reviewed regarding emission factors from literature and consistency with emission databases. The most important source sectors were residential combustion, traffic and agricultural machinery. For residential combustion, higher emission factors were suggested whereas for break and tyre wear lower emission factors would be more appropriate. In addition, the spatial distribution of residential combustion and agricultural machinery was modified. The emissions were verified with concentration simulations using the regional-scale model LOTOS-EUROS, that could be evaluated with observations. A labeling approach was used to identify the contributions of source sectors and source regions and provide feedback on the emissions in several scenario simulations. These scenarios also included modification of time profiles of the emissions, in particular for traffic (cold start) and agricultural machinery (crop-type and temperature dependent). Evaluation was complicated by the fact that measurements from different instrument types were used that were not directly comparable, and parts of Germany were not covered. Overall, the scenario simulations have led to improved representation of the BC concentration distribution over Germany using the LOTOS-EUROS chemical transport model.

For Berlin, campaign measurements at four sites were made for which BC from aethalometers were harmonized with elemental carbon measurements that were taken in parallel. From the combination of the Aethalometer and filter measurements, local conversion factors were derived to correct the mass concentrations of eBC. This resulted in eBC concentrations were about a factor two lower than those obtained using the default corrections used by the instruments. Also the biomass burning contribution was estimated with a newly developed approach, leading to higher biomass burning contributions than estimated before. The aethalometer measurements from Berlin were used to evaluate model runs for Berlin, where the LOTOS-EUROS regional background was combined with local contributions of residential combustion and traffic from the micro-scale models MISKAM/LASAT. Good correspondence was found for both concentration levels and biomass burning contribution. The approach taken has thus led to a consistent picture of BC emissions, observed and modelled concentrations in Berlin.

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|-----|
| Abbildungsverzeichnis..... | 10 |
| Tabellenverzeichnis | 15 |
| Abkürzungsverzeichnis..... | 18 |
| Zusammenfassung..... | 21 |
| Summary | 40 |
| 1 Einleitung..... | 58 |
| 1.1 Relevanz von Black Carbon | 58 |
| 1.2 Projektablauf | 59 |
| 2 Black Carbon Emissionsinventare..... | 61 |
| 3 Methoden der BC Modellierung..... | 69 |
| 3.1 BC, Partikelanzahl und Partikelgröße..... | 69 |
| 3.2 BC Modellstudien in der Literatur..... | 69 |
| 3.3 Regionale Skala | 70 |
| 3.4 Modellierung von BC auf der lokalen Skala | 77 |
| 4 Analyse und Vergleich des UBA-Emissionsinventars | 81 |
| 4.1 Vergleich der BC-Emissionen | 82 |
| 4.2 Vergleich der BC-Fractionen | 83 |
| 4.2.1 Hausbrand..... | 83 |
| 4.2.2 Straßenverkehr (SNAP 7) | 84 |
| 4.2.3 Mobile Quellen außerhalb des Straßenverkehrs (SNAP 8)..... | 86 |
| 4.3 Bewertung der PM _{2.5} -Emissionsfaktoren | 86 |
| 4.3.1 Hausbrand..... | 87 |
| 4.3.2 Mobile Quellen außerhalb des Straßenverkehrs (SNAP 8)..... | 88 |
| 4.4 Vorgeschlagene Emissionsänderung (Schritt 1)..... | 88 |
| 5 Feldmesskampagne BC Berlin | 92 |
| 5.1 Messung von eBC-Massenkonzentrationen in Berlin | 92 |
| 5.1.1 Methoden | 93 |
| 5.1.2 Ergebnisse | 95 |
| 5.2 EC und OC Messungen | 102 |
| 5.2.1 Methoden | 102 |
| 5.2.2 Ergebnisse | 102 |
| 5.2.3 Zusammenfassung | 104 |
| 5.3 Harmonisierung der äquivalenten Kohlenstoffkonzentrationen (eBC) | 105 |

| | | |
|-------|--|-----|
| 5.3.1 | Methoden | 105 |
| 5.3.2 | Ergebnisse | 105 |
| 5.4 | Ermittlung der Massen-Absorptionsquerschnitte (MAC) und harmonisierte BC-Konzentrationen | 107 |
| 5.4.1 | Methoden | 107 |
| 5.4.2 | Ergebnisse | 107 |
| 5.5 | Anteil der Biomassenverbrennung an der Lichtabsorption | 111 |
| 5.5.1 | Ergebnisse | 114 |
| 5.6 | Schlussfolgerungen | 120 |
| 6 | Regionale Modellierung | 121 |
| 6.1 | LOTOS-EUROS Modellbeschreibung | 121 |
| 6.2 | Modelleinrichtung | 121 |
| 6.3 | Emissionen | 124 |
| 6.4 | Kennzeichnung (Labeling Ansatz) | 124 |
| 6.5 | Messungen zur Evaluierung außerhalb Berlins | 127 |
| 6.5.1 | Bereits verfügbare Messungen in Deutschland | 127 |
| 6.5.2 | Messungen Europaweit | 128 |
| 7 | Ergebnisse der Modellierung: Grundlage und Effekt der Emissionsfaktoren | 130 |
| 7.1 | Modellierte BC Konzentrationen (Grundlage) | 130 |
| 7.2 | Bewertung der modellierten BC Konzentrationen mit höheren Emissionsfaktoren (Schritt 1) | 131 |
| 8 | Modellierung: Effekt von Szenarien für räumliche und zeitliche Verteilung der Emissionen | 146 |
| 8.1 | Szenario 1: Änderung der räumliche Verteilung Hausbrand und landwirtschaftlicher Verkehr | 146 |
| 8.2 | Szenario 2: + Zeitprofile Verkehr | 151 |
| 8.3 | Szenario 3: + Kalter start PKW | 153 |
| 8.4 | Szenario 4: + Zeitliche Verteilung landwirtschaftlicher Verkehr | 154 |
| 8.5 | Szenario 5: + Hausbrandemissionen wie in CAMS-RWC | 155 |
| 8.6 | Zusammenfassung der Szenarien | 160 |
| 8.7 | Gesamtanalyse der Szenarioläufe pro Messstation | 166 |
| 8.7.1 | Melpitz | 166 |
| 8.7.2 | Waldhof | 170 |
| 8.7.3 | Mainz Mombach | 173 |
| 8.7.4 | Herbstepisoden mit hohen BC Konzentrationen | 177 |
| 8.8 | Schlussfolgerungen für GRETA und Endergebnis | 179 |

| | | |
|--------|---|-----|
| 9 | Endergebnis regionale Modellierung mit optimierten Emissionen | 182 |
| 9.1 | Europaweit..... | 182 |
| 9.2 | Deutschland und Umgebung | 182 |
| 9.3 | Deutschland, Hochaufgelöst | 193 |
| 10 | Mikroskalige Detailmodellierung | 195 |
| 10.1 | Modellierungsansatz..... | 195 |
| 10.2 | Meteorologie | 199 |
| 10.3 | Emissionen | 200 |
| 10.4 | Hintergrund- und Gesamtbelastung | 200 |
| 10.5 | Ergebnisse Mikroskala | 202 |
| 10.5.1 | Flächenhafte Auswertung..... | 203 |
| 10.5.2 | Vergleich zu Messungen | 206 |
| 11 | Diskussion..... | 211 |
| 12 | Schlussfolgerung und Empfehlungen | 215 |
| 13 | Quellenverzeichnis | 219 |
| A | Anhang Übersicht Messungen | 230 |
| B | Statistische Auswertung der Läufe..... | 236 |
| B.1 | Grundlage..... | 236 |
| B.2 | Schritt 1 | 239 |
| B.3 | Szenario 1..... | 242 |
| B.4 | Szenario 2..... | 245 |
| B.5 | Szenario 3..... | 248 |
| B.6 | Szenario 4..... | 251 |
| B.7 | Szenario 5..... | 254 |
| B.8 | Endergebnis | 257 |

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|---------------|---|----|
| Abbildung 1: | Schematische Darstellung des Projektablaufes..... | 60 |
| Abbildung 2: | EC und OC Emissionen in 2005 in Europa..... | 61 |
| Abbildung 3: | Emissionsdatensätze für ausgewählte Länder BEL DEU DNK GBR NLD. Hinweis: 2011_reported 2017 und CAMS_2015 sind in der Methodik konsistent; der Unterschied ist auf jährliche Schwankungen und/oder Änderungen der technischen Anwendungen. | 63 |
| Abbildung 4: | Globale und sektorale Emissionen von PM-Substanzen (Tg) im Zeitraum 1990-2010 | 64 |
| Abbildung 5: | Ableitung von EC-Emissionen für d den Hausbrandsektor durch Anwendung eines PM-Splits auf MACC- und CAMS- Emissionsdaten, Berechnung von EC aus dem Bottom-up- Inventar von TNO-newRWC und Berichterstattung von BC an EMEP..... | 65 |
| Abbildung 6: | Zusammenfassung der PM-Emissionsfaktoren für Holzverbrennungsanlagen für Wohngebäude mit Anteilen an der emittierten Gesamtpartikelmasse (Share)..... | 67 |
| Abbildung 7: | Räumliche Verteilung von Kleinf Feuerungsanlagen in GRETA... | 68 |
| Abbildung 8: | Vergleich der UBA-BC-Emissionen (in Kilotonnen) mit den CAMS81_RWCEmissionen pro SNAP-Sektor für das Jahr 2015 | 82 |
| Abbildung 9: | Die wichtigsten Beiträge zu den SNAP 7 BC-Emissionen wie von UBA berichtet) | 85 |
| Abbildung 10: | Wichtigste Beiträge zu SNAP8 BC Emissionen im UBA Inventar | 88 |
| Abbildung 11: | Jahresemissionen 2015 von UBA und CAMS81_RWC dargestellt auf dem gleichen Gitter (0.1x0.05° lonxlat). Grundlage und Schritt 1 | 90 |
| Abbildung 12: | Relativer Anstieg der BC Emissionen in Schritt 1, Jahresgesamtwert (oben) und unter Verwendung von Emissionszeitprofile für Januar 2017 (Basisjahr Modellierung, unten). Beachten Sie den Unterschied in Skala..... | 91 |
| Abbildung 13: | Standorte der BC-Messstationen in Berlin (Quelle: Google Earth) | 94 |
| Abbildung 14: | Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Wedding Amrumer Str. | 96 |
| Abbildung 15: | Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Wochentage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Wedding-Amrumer Str..... | 96 |
| Abbildung 16: | Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Wedding Amrumer Str. | 97 |

| | | |
|---------------|--|-----|
| Abbildung 17: | Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Neukölln, Nansenstr..... | 97 |
| Abbildung 18: | Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Werktage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Neukölln, Nansenstr..... | 98 |
| Abbildung 19: | Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Neukölln, Nansenstr..... | 98 |
| Abbildung 20: | Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Friedrichshain, Frankfurter Allee | 99 |
| Abbildung 21: | Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Werktage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Friedrichshain, Frankfurter Allee | 99 |
| Abbildung 22: | Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Friedrichshain, Frankfurter Allee..... | 100 |
| Abbildung 23: | Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Buch, Wiltberger Str..... | 100 |
| Abbildung 24: | Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Werktage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Buch, Wiltberger Str..... | 101 |
| Abbildung 25: | Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Buch, Wiltberger Str. | 101 |
| Abbildung 26: | Box-Whisker Plots der Konzentrationen von EC und OC an den 4 Messstationen | 103 |
| Abbildung 27: | Konzentrations-Zeitreihen von EC und OC über den Projektzeitraum von 1 Jahr an den 4 Messstationen..... | 104 |
| Abbildung 28: | Boxplots der harmonisierten und nicht harmonisierten Absorptionskoeffizienten | 107 |
| Abbildung 29: | MAC-Werte berechnet für Wedding, Amrumer Str. | 108 |
| Abbildung 30: | MAC-Werte berechnet für Neukölln, Nansen Str..... | 109 |
| Abbildung 31: | MAC-Werte berechnet für Buch, Wiltberger Str..... | 109 |
| Abbildung 32: | MAC-Werte berechnet für Friedrichshain, Frankfurter Allee | 109 |
| Abbildung 33: | Harmonisierte und nicht harmonisierte eBC-Massenkonzentrationen..... | 110 |
| Abbildung 34: | Sensitivitätsanalyse für den BB(%) -Wert gezeigt am Beispiel von Wedding-Amrumer Str. | 115 |
| Abbildung 35: | Saisonale Variation der eBC _{bb} -Massenkonzentrationen, die auf die Verbrennung von Biomasse zurückzuführen sind | 118 |
| Abbildung 36: | Stündliche Variation der eBC _{bb} -Massekonzentrationen, die auf die Verbrennung von Biomasse zurückzuführen sind | 119 |
| Abbildung 37: | Messungen der Station Collmberg, zusammen mit Modellierter Konzentration. | 129 |
| Abbildung 38: | Jahressmittelwerte von BC Konzentration in 2017 für Grundlage | 130 |

| | |
|---------------|---|
| Abbildung 39: | Verhältnis simulierte/gemessene BC und EC Werte in 2017 Grundlage D2 (links: alle Stationen, rechts nur deutsche Hintergrundstationen mit geeigneter Datenqualität)131 |
| Abbildung 40: | Jahressmittlere BC Konzentration in 2017 für Grundlage (oben) und Schritt 1 (unten)132 |
| Abbildung 41: | Relativer Betrag der deutschen Sektoren an Jahresmittelwerte BC für 2017 mit Ausgangsemissionen (oben) und erster Optimierung (Schritt 1, unten). Ende der Skala=50% Beitrag.133 |
| Abbildung 42: | Vergleich zwischen Messungen und Modell (Schritt 1) für Melpitz für die Jahre 2015, 2016, 2017134 |
| Abbildung 43: | Tägliche gemessene und modellierte Werte mit Sektor-und Länderbeitrag, Grundlage.....135 |
| Abbildung 44: | Melpitz Monatliche mittlere gemessene und modellierte Konzentrationen mit Sektorbeiträgen für Grundlage (oben) und Schritt 1 (unten).....136 |
| Abbildung 45: | Mittlere Konzentration pro Wochentag (1 Montag, 7 Sonntag), Schritt 1137 |
| Abbildung 46: | Mainz Mombach, Monatliche mittlere gemessene und modellierte Konzentrationen mit Sektorbeiträgen für Grundlage (oben) und Schritt 1 (unten)138 |
| Abbildung 47: | Mainz Mombach Messungen und modellierte Werte Schritt 1. Zeitreihe (Tagesmittelwerte), Tagesprofil, Wochenprofil139 |
| Abbildung 48: | Waldhof, Monatliche mittlere gemessene und modellierte Konzentrationen mit Sektorbeiträgen für Schritt 0 (oben) und Schritt 1 (unten).....140 |
| Abbildung 49: | Waldhof Messungen und modellierte Werte. Zeitreihe (Tagesmittelwerte), Tagesprofil, Wochenprofil, Jahresprofil.141 |
| Abbildung 50: | Zeitreihen und Wochenprofile der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand (unten), Mainz.....143 |
| Abbildung 51: | Wochenprofile der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand, Mainz143 |
| Abbildung 52: | Zeitreihen der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand (unten), Waldhof144 |
| Abbildung 53: | Jahresprofile der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand (unten), Waldhof.....144 |
| Abbildung 54: | Originale (links) und neue (rechts) Verteilung Emissionen Hausbrand147 |
| Abbildung 55: | BC Emissionen in Berlin Hausbrand Sektor, originale Verteilung (links) und neu gewichtete Verteilung (rechts), Ekataster Berlin (Unten).....148 |
| Abbildung 56: | Ursprüngliche (links) und neue (rechts) Verteilung des landwirtschaftlichen Verkehrs149 |

| | | |
|---------------|--|-----|
| Abbildung 57: | Differenz in modellierte jahresmittlere Konzentration im Hausbrandsektor (oben) und für landwirtschaftlichen Verkehr (unten) | 150 |
| Abbildung 58: | Modellierte Jahresmittleren Beitrag der Sektor landwirtschaftlicher Verkehr. Oben Schritt 1, unten Szenario 1 | 151 |
| Abbildung 59: | Effekt der deutschland-spezifische Verkehrszeitprofile, Szenario 2 -Schritt 1 (oben) und Gesamteffekt der Zeitprofile und Cold Start Zeitprofile (Szenario 3-Schritt 1, unten) | 152 |
| Abbildung 60: | Emissionszeitprofile für landwirtschaftlicher Verkehr | 154 |
| Abbildung 61: | Jahresmittlere Differenz in modellierte BC Konzentration, Szenario 4-Szenario2 | 155 |
| Abbildung 62: | Verteilung Hausbrandemissionen mit Ursprünglich (links) und mit CAMS_RWC Parameter (rechtsoben) Unten: Ausschnitt für Berlin, CAMS_RWC Verteilung. (Siehe auch Abbildung 29.) .. | 157 |
| Abbildung 63: | Verteilung der bottom-up Emissionen für 2016 in Berlin: Ekataster 100m (links), GRETA Standard (mitte) und CAMS_RWC (rechts) | 158 |
| Abbildung 64: | Verteilung von Waldtypen in Deutschland..... | 159 |
| Abbildung 65: | Jahresmittlere Differenz in modellierte BC Konzentration, Szenario 5-Szenario1 | 160 |
| Abbildung 66: | Mittelwerte der Statistik für alle Nicht-Straßenstationen. Standardabweichung als schwarze Linien, Minimum und Maximum sind mit Kreuz gekennzeichnet. | 161 |
| Abbildung 67: | Statistische Parameter für Szenario 5, direkter Vergleich zu Messungen | 163 |
| Abbildung 68: | Mittelwert RMSE und Bias für skalierte PM2.5 und PM10 stündliche Werte | 164 |
| Abbildung 69: | Statistische Parameter für skalierte Messungen: MAAP*0.8 und AE*0.5..... | 165 |
| Abbildung 70: | Melpitz, Tagesmittelwerte für Messungen und Modell für Melpitz. Ganzes Jahr(oben), Wintermonate (Mitte) und Sommermonate (unten)..... | 167 |
| Abbildung 71: | Meplitz, Monatsmittelwerte der Sektorbeiträge für Szenarioläufe, Szenario 1 (Oben), Szenario 4 (Mitte) und Szenario 5 (Unten) | 168 |
| Abbildung 72: | Melpitz, Statistische Analyse der Szenarioläufe..... | 169 |
| Abbildung 73: | Waldhof, Tagesmittelwerte für Messungen und Modell für Melpitz. Ganzes Jahr (oben), Wintermonate (Mitte) und Sommermonate (unten)..... | 171 |
| Abbildung 74: | Waldhof, Monatsmittelwerte der Sektorbeiträge für Szenarioläufe, Szenario 1 (oben) Szenario 4 (Mitte) und Szenario 5 (Unten) | 172 |

| | |
|----------------|---|
| Abbildung 75: | Waldhof, statistische Analyse der Szenarioläufe173 |
| Abbildung 76: | Mainz Mombach, Tagesmittelwerte für Messungen und Modell für Melpitz. Ganzes Jahr (oben), Wintermonate (Mitte) und Sommermonate (unten).....175 |
| Abbildung 77: | Mainz Mombach, Monatsmittelwerte der Sektorbeiträge für Szenarioläufe in Melpitz, Szenario 1 (Oben) Szenario 4 (Mitte) und Szenario 5 (Unten).....176 |
| Abbildung 78: | Mainz Mombach, statistische Analyse der Szenarioläufe177 |
| Abbildung 79: | NOAA Hysplit 24 Stunden Backtrajectories für 27 September Melpitz, Waldhof und Mainz178 |
| Abbildung 80: | NOAA Hysplit 24 Stunden Backtrajectories für 16 Oktober, Melpitz, Waldhof und Mainz178 |
| Abbildung 81: | NOAA Hysplit 24 Stunden Backtrajectories für 8 November, Melpitz, Waldhof und Mainz, und für 4 September (nur Mainz)179 |
| Abbildung 82: | Verteilung von BC der Hausbrandsektor (1A4bi), Endergebnis181 |
| Abbildung 83: | Mittelwert BC Konzentration 2015-2019, Europaweit.....182 |
| Abbildung 84: | Mittlere BC Konzentration 2015-2019: Gesamt und Beiträge der wichtigsten Sektoren.....183 |
| Abbildung 85: | Relative Beiträge zu den BC Gesamtkonzentration, Deutschland und deutschen Sektoren184 |
| Abbildung 86: | Auswertung der Endlauf für 2017186 |
| Abbildung 87: | Auswertung der Endlauf für 2017. Mittelwerte der Statistik für alle Nicht-Straßenstationen. Standardabweichung als schwarze Linien, Minimum und Maximum sind mit Kreuz gekennzeichnet.187 |
| Abbildung 88: | Auswertung der Endlauf für 2018188 |
| Abbildung 89: | Auswertung Endlauf, Melpitz190 |
| Abbildung 90 : | Auswertung Endlauf, Waldhof191 |
| Abbildung 91: | Auswertung Endlauf, Mainz Mombach192 |
| Abbildung 92: | Mittlere BC Konzentration und deutsche Sektorbeiträge, Kampagneperiode, hochaufgelöst.194 |
| Abbildung 93: | Modell- und Untersuchungsgebiete der mikroskaligen Modellierungen197 |
| Abbildung 94: | Windrose Berlin-Tegel für den Modellierungszeitraum.....199 |
| Abbildung 95: | Modellgebiete der Mikroskala (rot), GRETA Gitter (schwarz) und LOTOS-EUROS Gitterzellen (blau, jeweils vier GRETA Gitterzellen formen eine LOTOS-EUROS Zelle).....201 |
| Abbildung 96: | Jahresmittlere Konzentration für Umgebung Berlin. Mittlere BC Konzentration, Mittlerer Beitrag Biomasseverbrennung, Konzentrationsbeitrag Biomasseverbrennung in Berlin und Konzentrationsbeitrag Verkehr in Berlin.....204 |

| | | |
|----------------|---|-----|
| Abbildung 97: | Jahresmittlere Konzentrationen in den Untersuchungsgebieten der Mikroskala. Die Legende für Buch steht auf einer anderen Skale..... | 205 |
| Abbildung 98: | Modellierte Sektorbeiträge und Messungen für die Nansenstrasse | 207 |
| Abbildung 99: | Modellierte Sektorbeiträge und Messungen für die Station Frankfurter Allee..... | 208 |
| Abbildung 100: | Anteil Biomasse an BC Konzentrationen. Modelliert (Blau) und von Messungen abgeleitet (genereller Sandradewi Ansatz (Fuchsie) und Tropos Ansatz (Grün) spezifisch für die Berliner Stationen) | 210 |

Tabellenverzeichnis

| | | |
|-------------|---|-----|
| Tabelle 1: | Regionale BC Modellstudien | 74 |
| Tabelle 2: | Lokale BC Modellstudien | 80 |
| Tabelle 3: | Vergleich der PM2.5-BC-Fraktionen für verschiedene Kleinf Feuerungsanlagen..... | 83 |
| Tabelle 4: | Vergleich der PM2.5-BC-Anteile für die wichtigsten Quellen im Straßenverkehr. GDI = Gasoline direct injection, PI = Port injection. EURO1+ bedeutet EURO1 und höher | 84 |
| Tabelle 5: | Vergleich der PM2.5 BC Emissionsanteile für unterschiedliche SNAP 8 Kategorien..... | 86 |
| Tabelle 6: | Vergleich der PM2.5 Emissionsfaktoren für unterschiedlichen Kleinf Feuerungsanlagen. | 87 |
| Tabelle 7: | Aktualisierte BC Anteile | 89 |
| Tabelle 8: | Statistische Zusammenfassung der stündlichen eBC Massenkonzentrationen..... | 95 |
| Tabelle 9: | Übersicht über EC- und OC-Konzentrationen in $\mu\text{g m}^{-3}$ an den 4 Messstationen des Projektes (Min: Minimalwert, MW: Mittelwert, Max: Maximalwert) | 102 |
| Tabelle 10: | Statistische Zusammenfassung der harmonisierten und nicht harmonisierten Absorptionskoeffizienten | 106 |
| Tabelle 11: | Statistische Zusammenfassung des Massenabsorptions-Querschnitts | 108 |
| Tabelle 12: | Statistische Zusammenfassung der harmonisierten eBC-Massenkonzentrationen..... | 110 |
| Tabelle 13: | Werte der Absorption-Ängström-Exponenten für eine Sensitivitätsstudie..... | 112 |
| Tabelle 14: | Zusammenfassung der eBC -Massenkonzentrationen, die auf die Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen zurückzuführen sind | 116 |
| Tabelle 15: | Zielregionen, Eingangsdaten und Label Definition..... | 125 |

| | | |
|-------------|--|-----|
| Tabelle 16: | Kennzeichnung der Modellläufe..... | 125 |
| Tabelle 17: | Vergleich der Emissionen für Berlin aus dem Berliner Senatsinventar, dem UBA-Inventar mit GRETA-Verteilung und dem UBA-Inventar mit CAMS81_-RWC-Verteilung. | 156 |
| Tabelle 18: | Vergleich der räumlichen Verteilparameter in CAMS81_RWC und GRETA..... | 159 |
| Tabelle 19: | Hintergrundbelastungen für die mikroskaligen Modellierungen | 202 |
| Tabelle 20: | Statistische Auswertung Berlin Endergebnis..... | 206 |
| Tabelle 21: | Messungen die nicht verwendet wurden..... | 234 |
| Tabelle 22: | Stündliche PM2.5 Grundlage..... | 236 |
| Tabelle 23: | Tägliche PM2.5 Grundlage | 236 |
| Tabelle 24: | Stündliche PM10 Grundlage..... | 237 |
| Tabelle 25: | Tägliche PM10 Grundlage..... | 237 |
| Tabelle 26: | PM10 TOT Grundlage | 238 |
| Tabelle 27: | PMOst Grundlage | 238 |
| Tabelle 28: | Stündliche PM2.5 Schritt1 | 239 |
| Tabelle 29: | Tägliche PM2.5 Schritt1..... | 239 |
| Tabelle 30: | Stündliche PM10 Schritt1 | 240 |
| Tabelle 31: | Tägliche PM10 Schritt 1 | 240 |
| Tabelle 32: | PM10 TOT Schritt 1..... | 240 |
| Tabelle 33: | PMOst Schritt 1..... | 241 |
| Tabelle 34: | Stündliche PM2.5 Szenario 1 | 242 |
| Tabelle 35: | Tägliche PM2.5 Szenario 1..... | 242 |
| Tabelle 36: | Stündliche PM10 Szenario1 | 243 |
| Tabelle 37: | Tägliche PM10 Szenario 1..... | 243 |
| Tabelle 38: | PM10 TOT Szenario 1 | 243 |
| Tabelle 39: | PMOst Szenario 1 | 244 |
| Tabelle 40: | Stündliche PM2.5 Szenario 2 | 245 |
| Tabelle 41: | Tägliche PM2.5 Szenario 2..... | 245 |
| Tabelle 42: | Stündliche PM10 Szenario 2 | 246 |
| Tabelle 43: | Tägliche PM10 Szenario 2..... | 246 |
| Tabelle 44: | PM10 TOT Szenario 2 | 246 |
| Tabelle 45: | PMOst Szenario 2 | 247 |
| Tabelle 46: | Stündliche PM2.5 Szenario 3 | 248 |
| Tabelle 47: | Tägliche PM2.5 Szenario 3..... | 248 |
| Tabelle 48: | Stündliche PM10 Szenario 3 | 249 |
| Tabelle 49: | Tägliche PM10 Szenario 3..... | 249 |
| Tabelle 50: | PM10 TOT Szenario 3 | 249 |
| Tabelle 51: | PMOst Szenario3 | 250 |
| Tabelle 52: | Stündliche PM2.5 Szenario 4 | 251 |
| Tabelle 53: | Tägliche PM2.5 Szenario 4..... | 251 |
| Tabelle 54: | Stündliche PM10 Szenario 4 | 252 |

| | | |
|-------------|-----------------------------------|-----|
| Tabelle 55: | Tägliche PM10 Szenario 4..... | 252 |
| Tabelle 56: | PM10 TOT Szenario4 | 252 |
| Tabelle 57: | PMOst Szenario 4 | 253 |
| Tabelle 58: | Stündliche PM2.5 Szenario 5..... | 254 |
| Tabelle 59: | Tägliche PM2.5 Szenario 5..... | 254 |
| Tabelle 60: | Stündliche PM10 Szenario 5 | 255 |
| Tabelle 61: | Tägliche PM10 Szenario 5..... | 255 |
| Tabelle 62: | PM10 TOT Szenario 5..... | 255 |
| Tabelle 63: | PMOst Szenario 5 | 256 |
| Tabelle 63: | Stündliche PM2.5 Endergebnis..... | 257 |
| Tabelle 64: | Tägliche PM2.5 Endergebnis | 257 |
| Tabelle 65: | Stündliche PM10 Endergebnis..... | 258 |
| Tabelle 66: | Tägliche PM10 Endergebnis | 258 |
| Tabelle 67: | PM10 TOT Endergebnis | 258 |
| Tabelle 68: | PMOst, Endergebnis | 259 |

Abkürzungsverzeichnis

| | |
|------------------------------------|--|
| α_{bb} | Absorptions-Ångström-Exponent für Biomassen-Verbrennungsprodukte |
| α_{ff} | Absorptions-Ångström-Exponent für fossile Brennstoffe |
| α_{BC} | Absorptions-Ångström-Exponent für schwarzem Kohlenstoff |
| α_{OA} | Absorptions-Ångström-Exponent für organische Aerosolpartikel |
| λ | Wellenlänge des Lichts |
| AAE | Absorptions-Ångström-Exponent (allgemein) |
| AE33 | Aethalometer AE33, Magee Scientific Co., Berkeley CA, USA |
| ATN | Absolute Lichtabschwächung |
| b_{ATN} | Licht-Abschwächungskoeffizient |
| b_{abs} | Licht-Absorptionskoeffizient |
| $b_{abs}(\lambda)$ | Gesamter Absorptionskoeffizient bei der gegebenen Wellenlänge |
| $b_{abs}(\lambda)_{bb}$ | Absorptionskoeffizient aus Biomassenverbrennung |
| $b_{abs}(\lambda)_{ff}$ | Absorptionskoeffizient aus Verbrennung fossiler Brennstoffe |
| $b_{abs}(\lambda)_{BC}$ | Absorptionskoeffizient von schwarzem Kohlenstoff |
| $b_{abs}(\lambda)_{OA}$ | Absorptionskoeffizient von organische Aerosolpartikel |
| b_{abs}^{AE33} | Absorptionskoeffizient des Aethalometers bei 660 nm |
| b_{abs}^H | Harmonisierter Absorptionskoeffizient |
| b_{abs}^{MAAP} | Absorptionskoeffizient des MAAP bei 600 nm |
| BB (%) | Anteile der Lichtabsorption verursacht durch Biomasseverbrennung |
| BC | Schwarzer Kohlenstoff (engl. Black Carbon) |
| C | Mehrfachstreuparameter |
| COSMO | Consortium for Small-scale Modeling |
| Δt | Messzeitauflösung |
| eBC | Konzentration des äquivalenten schwarzen Kohlenstoffs |
| eBC _{bb} | Konzentration des äquivalenten schwarzen Kohlenstoffs aus der Verbrennung von Biomasse |
| eBC _{ff} | Konzentration des äquivalenten schwarzen Kohlenstoffs aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe |
| eBC ^H | Konzentration des harmonisierten äquivalenten schwarzen Kohlenstoffs |
| EC | Konzentration des elementaren Kohlenstoffs |
| EC _{bb} | Konzentration des elementaren Kohlenstoffs aus der Verbrennung von Biomasse |
| ECMWF | European Centre for Medium-Range Weather Forecasts |
| E _{cold} | kalter start Emissionen |
| e _{hot} | hot emission factor pro Fahrzeugtyp und Schadstoff |
| e _{cold} /e _{ho} | cold/hot emission Quotient pro Fahrzeugtyp und Schadstoff |

| | |
|-------------------------------------|--|
| EEA | European Environment Agency |
| F_{in} | Aerosol Flussraten |
| GRETA | Gridding Emission Tool for ArcGIS |
| H | Harmonisierungsfaktor |
| IVU | IVU Umwelt GmbH, Freiburg im Breisgau |
| k | Parameter zur Kompensation des Beladungseffekts des AE33 |
| MAAP | Multi Angle Absorption Photometer, Thermo-Scientific, USA |
| MAC | Massen-Absorptionsquerschnitt |
| MAC_{AE33} | Im Aethalometer hinterlegter Massen-Absorptionsquerschnitt |
| MAC^L_{BC} | Lokaler BC-Massenabsorptions-Querschnitt |
| M_{OA} | Massenkonzentration von organischen Aerosolen |
| PM | Massenkonzentration des Feinstaub (eng., Particulate Matter) |
| PM_{2.5} | Massenkonzentration des Feinstaubs für Partikel mit aerodynamischen durchmesser kleiner 2,5 µm |
| OC | Organischer Kohlenstoff |
| S | Fläche des beladenen Spots im Aethalometer |
| SECA | Sulphur emission control area |
| t | Zeit |
| TNO | Niederländische Organisation für Angewandte Naturwissenschaftliche Forschung (Nederlandse organisatie voor Toegepast Natuurwetenschappelijk Onderzoek) |
| TROPOS | Leibniz-Institut für Troposphärenforschung, Leipzig |
| UBA | Umweltbundesamt, Dessau |

Zusammenfassung

Zielstellung

Black Carbon (BC) ist eine Feinstaubkomponente, die mit erhöhter Sterblichkeit durch Atemwegs- und Herz-Kreislauf-Erkrankungen, verminderter Lungenfunktion und chronischen Lungenerkrankungen in Verbindung gebracht wird. Darüber hinaus absorbiert BC die Sonnenstrahlung und beeinflusst so den Strahlungshaushalt der Atmosphäre und damit auch Wetter und Klima. BC entsteht bei der unvollständigen Verbrennung von fossilen und biogenen Brennstoffen und ist oft mit schädlichen Verbindungen wie polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen verbunden. Es ist überwiegend in der PM_{2,5}-Fraktion des Feinstaubs enthalten. Wichtige Quellen in Deutschland sind Hausbrand (Holzverbrennung) und Verkehr. Obwohl es keine europäischen Grenzwerte für BC gibt, wird es unter der neuen NEC-Richtlinie (2016/2284/EU) als einer der prioritär zu mindernden Luftschadstoffe in Bezug auf die Luftqualität angesehen.

Das Hauptziel dieses Projekts ist die Verbesserung der Beschreibung der Emissionsquellen und der Konzentrationsverteilung für BC in Deutschland durch eine kombinierte Auswertung von Messdaten und Modellierungsergebnissen.

Unterziele sind:

- ▶ Verbesserung der sektorspezifisch berichteten jährlichen Gesamtemissionen von BC für Deutschland
- ▶ Verbesserung der räumlichen Verteilung der Emissionen in Deutschland
- ▶ Erstellung einer flächendeckenden Karte der BC-Konzentrationen für Deutschland
- ▶ Verifizierung der neuen Emissionsverteilungen mit eigenen Messungen und mikroskaliger Modellierung

Ansatz

Der Ansatz bestand aus drei Säulen:

1. Im ersten Schritt sollte eine Überarbeitung des aktuellen deutschen Emissionsinventars zum Zweck der Verbesserung der BC Modellierung stattfinden. Nach der Identifizierung der relevantesten Sektoren wurde eine kritische Überprüfung der verwendeten Emissionsfaktoren durchgeführt, indem Schätzungen aus der Literatur verglichen und auf ihre Konsistenz mit den Ergebnissen eines wissenschaftlichen europäischen Emissionsinventars mit harmonisierten Emissionsschätzungen für Holzverbrennung geprüft wurden. Neben der Überarbeitung der jährlichen Gesamtemissionen wurde auch die räumliche Verteilung der Emissionen für die wichtigsten Quellsektoren behandelt.
2. In einer Messkampagne in Berlin sollten BC aus optischen Messungen und elementarer Kohlenstoff (EC) aus Filtermessungen zur Erstellung eines harmonisierten Datensatzes und zu den Abschätzungen der Beiträge von Biomasse und fossilen Brennstoffen erfasst werden.
3. Um die BC Emissionen für Deutschland zu optimieren, ist eine Modellierung erforderlich, die die Emissionsschätzungen mit den beobachteten Konzentrationen verknüpft. Für die regionale Skala wird das LOTOS-EUROS-Modell verwendet, das über eine Kennzeichnungs-Methode (Labeling-Ansatz) verfügt, um die Beiträge von

Quellsektoren und Regionen zu verfolgen. Die finalen Emissionen und ihre Verteilung wurden verwendet, um BC für 2015-2019 zu berechnen. Neben der deutschlandweiten Immissionsbelastung wurde eine Fallstudie für Berlin mit hoher Auflösung erstellt. Dazu wurden mit den Modellen MISKAM und LASAT die lokalen Emissionsbeiträge der Holzverbrennung in Haushalten und des Straßenverkehrs berechnet. Diese wurden zu den Hintergrundkonzentrationen aus LOTOS-EUROS addiert und die Ergebnisse mit den entsprechenden Beobachtungen aus Säule 2 verglichen.

Emissionen

Die wichtigsten zur BC Konzentration beitragenden Sektoren in Deutschland sind die Holzverbrennung in Haushalten, der Straßenverkehr und der nicht straßengebundene Verkehr. Für diese Sektoren wurden die offiziell berichteten jährlichen Gesamtwerte mit denen mehrerer weit verbreiteter europaweiter Emissionsinventare verglichen für die Jahre 2011 und 2015. Dies sind das Emissionsinventar TNO-MACC-III 2011 (Kuenen et al, 2014) und sein direkter Nachfolger CAMS 2018 mit in 2017 offiziell berichteten PM_{2.5} Emissionen der europäischen Länder von 2000 bis 2015. Dies widerspiegelt die Änderungen in der Berichterstattung der europäischen Länder in Europa zwischen 2013 und 2017 für das Jahr 2011. Weiterhin wurde mit TNO-newRWC_2011 verglichen, das für den Hausbrandsektor einer Bottom-up-Schätzung für die Holzverbrennung enthält, , die halbflüchtige Stoffe auf konsistentere Weise einschließt, weiterhin identisch ist mit CAMS 2018.

Für den Straßenverkehr waren die von Deutschland gemeldeten Emissionen im Vergleich zu CAMS 2018 erhöht. Dies könnte auf die Verwendung eines relativ hohen BC-Anteils der berichteten PM_{2.5} aus den Bereichen Bremsen und Reifenabrieb zurückgeführt werden. BC wird nicht separat aufgeführt, sondern als Anteil des PM_{2.5} angegeben. Obwohl elementarer Kohlenstoff im Abriebprodukt vorhanden ist, ist dieses Material relativ grob und daher nicht in dem optisch aktiven Teil, der als schwarzer Kohlenstoff beobachtet werden kann. Die Ergebnisse sind in Tabelle Z- 1 zusammengefasst.

Für den Hausbrandsektor waren die in Deutschland berichteten Emissionen im Vergleich zu TNO-newRWC_2011 geringer. Dies lag vor allem an der ursprünglich verwendeten niedrigen BC-Fraktion, die für PM_{2.5}-Emissionen einschließlich der mitemmittierten kondensierbaren Gase repräsentativer war als für die ursprünglich verwendeten Emissionsfaktoren, die feste PM_{2.5}-Partikel widerspiegeln. Darüber hinaus liegt der verwendete PM_{2.5}-Emissionsfaktor für die Holzverbrennung mit 77 g/GJ am unteren Ende des Bereichs der Literaturwerte für moderne Herde, und es wurde empfohlen, zumindest für den Zeitraum 2010-2016 einen Wert von 100 g/GJ zu verwenden.

Tabelle Z- 1: Vergleich zwischen originalen und angepassten BC Anteilen für die wichtigsten Sektoren

| Quellsektor | Original % BC | Neues % BC | Referenz |
|----------------------------------|---------------|------------|--|
| 1A4bi, solid biomass residential | 10 | 30 | Guidebook tables 3.40-3.42 and Klimont et al. (2017) |
| 1A3bvi tyre | 24 | 0.37 | Schauer (2006), as used in EUCAARI and CAMS |
| 1A3bvi brake | 26 | 2.3 | Schauer (2006), as used in EUCAARI and CAMS |

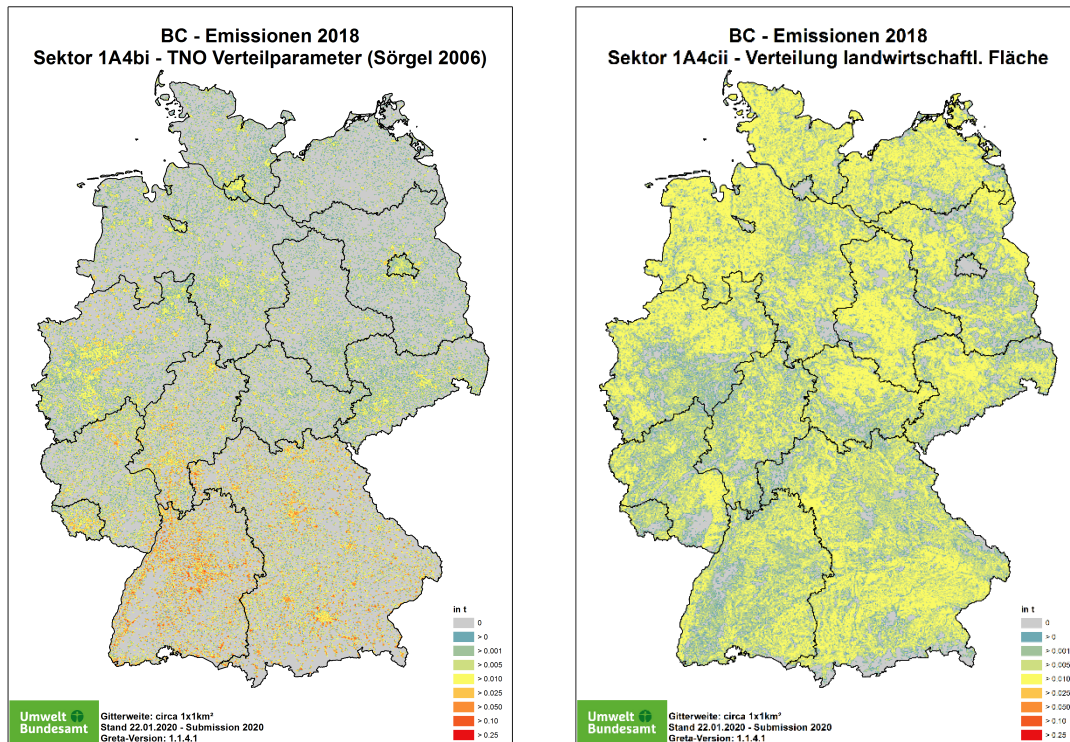
Auch die räumliche Verteilung der Emissionen im UBA-GRETA-Rastertool wurde eingehend untersucht. Für die räumliche Verteilung der Emissionen aus der Holzverbrennung mit dem GRETA-Tool werden ähnliche Verteilparameter wie für das CAMS BC Inventar verwendet. Der Unterschied besteht hinsichtlich der räumlichen Aggregation und Gewichtung. Im CAMS-Inventar fehlen detaillierte Informationen zum Scheitholzverbrauch in den Bundesländern, die allerdings für GRETA verwendet werden. Für das CAMS Inventar wird zudem davon ausgegangen, dass es in ländlichen Gebieten doppelt so wahrscheinlich ist das Holzverbrennung stattfindet wie in städtisch geprägten Gebieten. In GRETA findet eine detailliertere Differenzierung auf der Grundlage der Einwohnerzahl statt. Andererseits fasst GRETA Informationen über die Bodenbedeckung pro Gemeinde oder Landkreis zusammen, was zu einer stärkeren Zuordnung von Emissionen zu Stadtzentren führen kann. Informationen auf Kreisebene werden sowohl für die nationale Aggregation der Emissionsgewichtungen als auch für die spätere Disaggregation auf Kreisebene angewendet, während CAMS die Informationen immer auf einem 0,1x0,05° Lon-Lat-Gitter (~5x5 km²) hält. In einem detaillierten Vergleich für Berlin, für das ein Bottom-up-Emissionsinventar verfügbar war, wurden die räumliche Verteilung und die Gesamtemissionen der Stadt verglichen zu GRETA und CAMS. Es wurden große Unterschiede in der räumlichen Verteilung und den Gesamtemissionen zwischen den beiden Emissionsinventaren gefunden, was für eine Anpassung der Rasterung der GRETA Emissionen sprach. Für das finale Emissionsinventar wurde entschieden, den GRETA und den CAMS Ansatz zu kombinieren. Als erster Verteilparameter wird die Holznutzung pro Region (eine Region umfasst einige Bundesländer, Verteilung nach Mantau und Sörgel (2006)) von GRETA verwendet. Innerhalb dieser Region wurde die CAMS-Rastermethodik verwendet, um die räumliche Verteilung der Emissionen auf Gemeindeebene zu bestimmen. Innerhalb einer Gemeinde werden die Emissionen auf die Landnutzungsklassen kontinuierliche und diskontinuierliche städtische Prägung gleichgewichtet verteilt, um zu einer landesweiten Auflösung von 1x1 km² zu gelangen. Im Vergleich zur ursprünglichen Verteilung führt dieses Verfahren zu einer Verschiebung der Emissionen weg von Großstädten hin zu kleineren Dörfern.

Für den landwirtschaftlichen Verkehr basierte der ursprüngliche räumliche Verteilparameter auf der Anzahl der im landwirtschaftlichen Sektor tätigen Personen in einer Gemeinde. Dies kann ein realistischer Näherungswert für einige Emissionen sein, ist aber kein guter Näherungswert für den Einsatz von Landmaschinen, der eher mit der Anbaufläche in Verbindung gebracht werden kann. Nach einem Vergleich mit der CAMS-Rasterung wurde beschlossen, die Informationen auf Gemeindeebene zu umgehen und die nationalen Gesamtemissionen direkt nach der Landfläche in den CORINE-Landbedeckungsklassen zu rastern. Jeder Landkreis erhält einen Anteil an den Landmaschinenemissionen entsprechend dem Anteil der landwirtschaftlich genutzten Flächen, die durch die CORINE-Klassen repräsentiert werden:

1. 12 irrigated arable land
2. 13 permanently irrigated land
3. 20 complex cultivation patterns
4. 21 land principally occupied by agriculture, with significant areas of natural vegetation.

Innerhalb der Kreise werden die 1 km-Raster anhand der Polygonflächen der CORINE-Landbedeckung erstellt.

Abbildung Z- 1: Neue Verteilung der Hausbrandemissionen (links) und Landwirtschaftlicher Verkehr (rechts)



Quelle: UBA

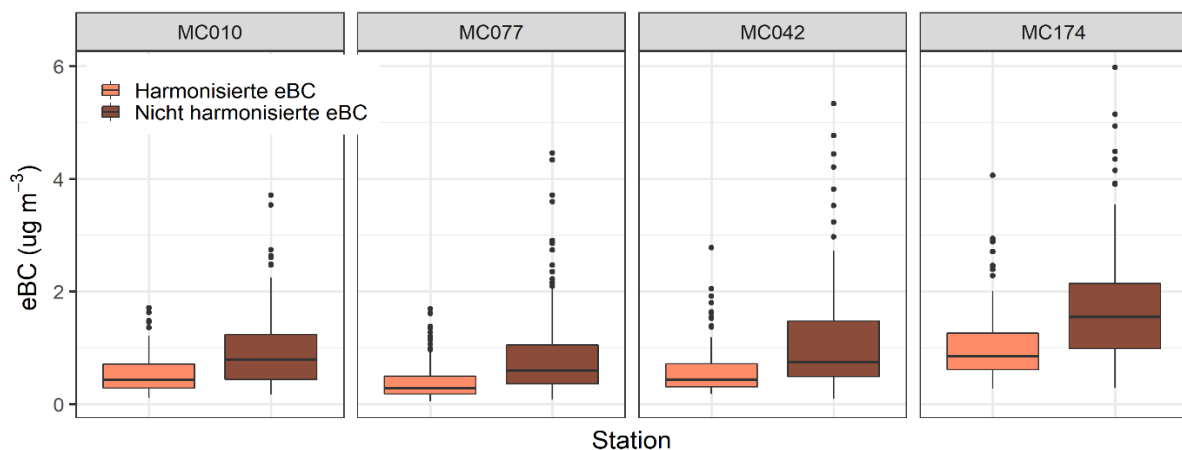
Neben einer realistischen räumlichen Verteilung ist auch die zeitliche Verteilung von zentraler Bedeutung für die Berechnung der BC Konzentration in der Atmosphäre. Für den Hausbrandsektor wurde der tatsächliche Heizbedarf auf Basis der Temperatur verwendet, um die räumlich differenzierte Tagesverteilung über das Jahr zu berechnen.

Für die zeitliche Verteilung der Verkehrsemissionen wurden Szenarien erstellt, die deutschlandspezifische Verkehrszeitprofile nach Mues et al. (2014) verwenden und Kaltstartemissionen berücksichtigen, die bei leichten Nutzfahrzeugen und Pkw in Abhängigkeit von der tatsächlichen Temperatur zu höheren Emissionen am (kalten) Morgen führen. Die Emissionen des landwirtschaftlichen Verkehrs wurden unter Verwendung einer detaillierten Karte für die Art der Nutzpflanze (z. B. Weizen, Mais, Kartoffeln) und Temperaturdaten aktualisiert, um die tatsächliche Anbausaisonen von Nutzpflanzen zu berücksichtigen. Dies führt zu einer räumlich und von Jahr zu Jahr differenzierten Tagesverteilung der Emissionen. Die Emission von Landmaschinen werden dadurch viel stärker auf das Frühjahr (Vorbereitung des Bodens, Düngerausbringung, Aussaat) und den Sommer (Ernte) konzentriert als beim Standardansatz.

Messkampagne

In Berlin wurde BC an vier Standorten des BLUME Messnetz der Berliner Senatsverwaltung gemessen. Es gab eine Hintergrundstation (Stadtstrand Buch, MC077), zwei städtische Stationen (Neukölln, Nansenstrasse, MC042, Wedding, Amrumer Strasse, MC010) und eine stark verkehrsbelastete Station (Friedrichshain, Frankfurter Allee, MC174). Es gibt mehrere Methoden zur Messung der Massenkonzentration von BC. Thermo-optische Methoden, die auf Filter angewendet werden, können zur Ableitung von elementarem Kohlenstoff (EC) verwendet werden. Optische Methoden, die die Änderung der Lichtschwächung messen, werden verwendet, um äquivalenten schwarzen Kohlenstoff (eBC) zu schätzen. In Berlin wurden im Zeitraum September 2018-September 2019 vier Aethalometer betrieben. Diese Geräte verwenden ein filterbasiertes optisches Verfahren und ermöglichen stündliche Messungen von Black Carbon in mehreren Lichtwellenlängen, was die Abschätzung der Beiträge aus der Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen zur gesamten eBC-Masse erlaubt. Die Verwendung optischer Methoden erfordert mehrere Korrekturfaktoren, welche zu einer höheren Unsicherheit der abgeleiteten eBC-Massekonzentrationen beitragen. Sowohl thermo-optische als auch optische Methoden können kombiniert werden, um die Unsicherheit in den abgeleiteten eBC zu reduzieren. Zusätzlich zu den Aethalometern wurden in Berlin am gleichen Standort Filtermessungen zur Messung der EC Konzentrationen nach dem EUSAAR2-Protokoll eingesetzt. Aus der Kombination der Aethalometer- und Filtermessungen wurden lokale Umrechnungsfaktoren (MAC-Werte) abgeleitet, um die Massenkonzentrationen von eBC zu korrigieren. Dies führte zu eBC-Konzentrationen, die etwa um den Faktor 2 niedriger waren als die, die mit den von den Instrumenten verwendeten Standardkorrekturen erhalten wurden, siehe Abbildung Z- 2. Für Stationen die stärker von Verkehrsemissionen beeinflusst werden, ist der MAC-Wert tendenziell niedriger als für Stationen, die stärker von der Biomassenverbrennung beeinflusst werden

Abbildung Z- 2: Harmonisierte und nicht-harmonisierte eBC für die vier Stationen der Messkampagne in Berlin



Quelle: TROPOS

Tabelle Z- 2: Zusammenfassung der eBC Massenkonzentrationen, die auf die Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen zurückzuführen sind

| Massenkonzentration | Mittelwert in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Minimum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Maximum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Standard- Abweichung in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Medianwert in $\mu\text{g m}^{-3}$ |
|--|---------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|--|---------------------------------------|
| Wedding Amrumer Str. (MC010) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,22 | 0,00 | 2,53 | 0,27 | 0,12 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,13 | 0,00 | 1,50 | 0,16 | 0,73 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,30 | 0,00 | 3,21 | 0,25 | 0,24 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,38 | 0,01 | 3,57 | 0,33 | 0,30 |
| Neukölln, Nansen Str. (MC042) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,28 | 0,00 | 3,74 | 0,36 | 0,14 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,16 | 0,00 | 2,14 | 0,20 | 0,08 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,30 | 0,00 | 4,45 | 0,29 | 0,22 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,41 | 0,01 | 5,12 | 0,41 | 0,29 |
| Friedrichshain, Frankfurter Allee (MC174) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,32 | 0,00 | 2,89 | 0,34 | 0,19 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,20 | 0,01 | 1,80 | 0,21 | 0,13 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,66 | 0,02 | 10,30 | 0,51 | 0,54 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,78 | 0,02 | 6,54 | 0,59 | 0,64 |
| Buch, Wiltberger Str. (MC077) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,25 | 0,00 | 6,19 | 0,38 | 0,10 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,12 | 0,00 | 2,99 | 0,18 | 0,05 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,19 | 0,00 | 8,22 | 0,20 | 0,13 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,31 | 0,00 | 4,42 | 0,33 | 0,20 |

Aus der Analyse der stündlichen, wöchentlichen und monatlichen Trends wurde der Einfluss der Verkehrsemissionen deutlich. Im Allgemeinen wurden höhere Konzentrationen während der Hauptverkehrszeiten an Wochentagen beobachtet, mit einer sichtbaren Abnahme an Sonntagen. An der Station Buch zeigte der Trend einen leichten Anstieg der eBC-Masse an Samstagabenden, was möglicherweise mit Emissionen aus der Biomasseverbrennung zusammenhängt. Im Herbst

und Winter wurde ein Anstieg der eBC-Massekonzentrationen gemessen, der auf die Biomasseverbrennung zurückgeführt werden kann.

Darüber hinaus kann der Beitrag der Biomasseverbrennung aus der Kombination von Lichtschwächungsmessungen bei verschiedenen Wellenlängen abgeleitet werden (Sandradewi 2008). Dies geschieht mit einigen Annahmen und Standardwerten im Aethalometermodell, das jedoch nicht unbedingt für alle Messorte und Jahreszeiten geeignet ist. Daher wurde in diesem Projekt ein alternativer und eigener Ansatz zur Abschätzung des Beitrags von Biomasse und fossilen Brennstoffen zum eBC aus den Messungen abgeleitet. Dies führte zu deutlich höheren Biomassebeiträgen als mit dem Ansatz von Sandradewi (2008).

Die harmonisierten Messungen und die Ergebnisse des Standard-Aethalometermodells (Sandradewi, 2008) und des eigenen Ansatzes sind in Tabelle Z- 2 zusammengefasst. Die Konzentrationen von EC sind an MC077 am Stadtrand am niedrigsten, an MC010 und MC042 im städtischen Hintergrund etwas höher und an der Verkehrsstation MC174 am höchsten. Die Station MC174 wies die höchsten Konzentrationen von eBC_{ff} aller Messstationen auf. Die niedrigsten eBC_{bb} Konzentrationen wurden an MC010, einem städtischen Wohngebiet, ermittelt.

Modellierung

Das regional skalierte Chemie-Transportmodell LOTOS-EUROS wurde verwendet, um die BC-Konzentrationen auf nationaler Ebene zu simulieren und zu bewerten. Aus praktischen Gründen wurden Szenariosimulationen für ein einzelnes Jahr mit einer größeren Auflösung als die finale Simulation durchgeführt.

Die Szenariosimulationen wurden mit der Standardeinstellung von LOTOS-EUROS unter Verwendung von 5 dynamischen vertikalen Schichten durchgeführt. Das horizontale Modellgebiet hatte eine Auflösung von 0,1x0,05 Grad lon x lat (~5 km) und umfasste die Niederlande, Belgien und einen Teil Frankreichs im Westen, sowie einen großen Teil Polens, der Tschechischen Republik und Österreichs im Osten. Ein Teil Dänemarks wurde im Norden und ein Teil der Schweiz im Süden abgedeckt. Dieses Gebiet war in ein größeres europäisches Gebiet eingebettet. Das Modell wurde von der ECMWF-Meteorologie angetrieben. Die Simulationen mit LOTOS-EUROS wurden mit Labeln für die Quellsektoren Hausbrand, Verkehr, Nicht-Straßenverkehr, Waldbrand und Sonstiges sowie für die Quellgebiete Berlin, Brandenburg und Rest von Deutschland durchgeführt. Auch die Nachbarländer hatten Label, um das Quellgebiet zu verfolgen und nationale von internationalen Emissionen zu trennen. Für Europa wurde das TNO_CAMS-RWC-Inventar mit harmonisierten PM2.5-Emissionen und konsistenten BC-Fraktionen verwendet, für Deutschland wurden die GRETA-Emissionen und deren Szenarien verwendet. Die Simulationen wurden mit Messungen des UBA, mehrerer Bundesländer und der Berliner Kampagne ausgewertet. Auch Daten aus den Niederlanden und Belgien wurden verwendet. Das Jahr 2017 war das Basisjahr für die Szenariosimulationen, da für dieses Jahr die Datenverfügbarkeit am besten war.

Die Simulationen umfassten die folgenden Fälle:

- Ausgangslage: TNO_CAMS_RWC Emissions für Europa, GRETA für Deutschland, einschließlich Heizgradtag-Ansatz für die Verbrennung in Wohngebäuden
- Erste Aktualisierung: wie oben, aber mit aktualisierten Emissionsfaktoren für Verkehr und Hausbrandsektor

- Szenario 1: wie erste Aktualisierung, jedoch mit räumlicher Verteilung der Emissionen von Landmaschinen entsprechend der zugehörigen Landbedeckung und Umverteilung der Hausbrandsektor mit unterschiedlicher Gewichtung der Bebauungsklassen innerhalb eines Landkreises
- Szenario 2: wie Szenario 1, jedoch mit deutschlandspezifischem Zeitprofil für den Verkehr
- Szenario 3: wie Szenario 2, jedoch mit Zeitprofilen für Kaltstart-Verkehrsemissionen
- Szenario 4: wie Szenario 3, jedoch mit Zeitprofilen für den Einsatz von Landmaschinen in Abhängigkeit von Temperatursummen und Nutzpflanzenart
- Szenario 5: wie Szenario 4, jedoch mit räumlicher Verteilung der Hausbrandsektor aus TNO_CAMS_RWC für Deutschland
- Finale Simulation: wie Szenario 4, aber mit räumlicher Verteilung des Hausbrandsektors basierend auf einer Mischung aus GRETA-Ansatz und TNO_CAMS_RWC-Ansatz

Für die finalen Emissionen wurden die Simulationen mit der gleichen Auflösung durchgeführt, aber mit mehr meteorologischen Ebenen in der Vertikalen, was zu einer detaillierteren Darstellung der vertikalen Durchmischung führt. Die Bewertung dieses Laufs kann daher nicht mehr direkt mit den Szenario-Läufen verglichen werden, aber dieser Lauf entspricht der bestmöglichen Modellierung der BC-Konzentrationen. Die Jahre 2015-2019 wurden simuliert, um den Effekt der meteorologischen Variabilität (z. B. kalte Winter) zu berücksichtigen. Für den Messzeitraum September 2018-September 2019 wurde eine Simulation mit einer höheren Auflösung ($\sim 2 \times 2 \text{ km}^2$) als für die anderen Läufe durchgeführt, und die Meteorologie von COSMO-D2 verwendet, die eine ähnliche Auflösung hat. Diese Simulation gibt nicht nur ein sehr detailliertes Bild von den Konzentrationen und den mit BC verbundenen mit starken Gradienten, sondern liefert auch Hintergrundbedingungen für eine Bewertung von vier Teilregionen in Berlin mit einer Messkampagne und lokalen Beiträgen, wie sie in mikroskaligen Simulationen mit MISKAM/LASAT berechnet wurden.

Die Modellevaluation erwies sich als anspruchsvoll, da in den verschiedenen Bundesländern unterschiedliche Messgeräte und Protokolle verwendet wurden. Für die täglichen Messungen von elementarem Kohlenstoff mit Hilfe von Filtern wurden sowohl das thermo-optische EUSAAR2 als auch das thermographische VDI-Protokoll verwendet. Die Messungen mit VDI-Protokoll wurden nicht verwendet, da sie zu sehr vom neuen Standard EUSAAR2 abweichen und hauptsächlich für die Vergangenheit zur Verfügung standen. Optische Messungen haben zwar den Vorteil, dass eine stündliche Auflösung erreicht wird, jedoch ortsspezifische Umrechnungsfaktoren zur Ableitung des eBC benötigt werden. Diese Abhängigkeit ist auch für den Instrumententyp unterschiedlich. Der Datensatz bestand sowohl aus MAAP- als auch aus Aethalometer-abgeleiteten Konzentrationen, wobei einige Proben PM_{2.5} und einige Proben PM₁₀ enthielten. Wir haben angenommen, dass für diese optischen Messungen die Probenahme von PM_{2.5} oder PM₁₀ gleichwertig ist, da BC hauptsächlich in PM_{2.5} enthalten ist und nur im PM_{2.5}-Bereich optisch aktiv ist.

Auswertung

Die Auswertung der LOTOS-EUROS-Modellsimulationen erfolgte durch statistische Analysen (Mittelwert, Bias, RMSE, Korrelation) an allen deutschen Hintergrundmessstellen. Zusätzlich wurden Monatsmittel und Mittelwerte über Stunde des Tages und Wochentag berechnet. Zusammen mit dem Labeling-Ansatz ist es so möglich, den Beitrag der verschiedenen

Quellsektoren und Regionen zu bewerten und mögliche Verbesserungsrichtungen für die Emissionsverteilung zu identifizieren. Als Beispiel werden die Daten für die Station Melpitz gezeigt, eine ländliche Station in einem relativ flachen Gebiet im östlichen Teil Deutschlands (Abbildung Z- 3). Die Simulation der Ausgangslage (obere Grafik) zeigt deutlich eine Unterschätzung der Konzentrationen durch das Modell, insbesondere für die Wintermonate. Der Jahresgang selbst wurde gut nachgebildet. Die erste Aktualisierung (mittlere Grafik) erhöhte den Beitrag des Hausbrandsektors, welcher seinen Haupteinfluss in den Wintermonaten hat. Bei der letzten Simulation (untere Grafik) haben die Änderungen in der Emissionsverteilung in Kombination mit der besseren Darstellung der vertikalen Durchmischung im Modell zu einer Überschätzung für die Monate Januar und Februar geführt, aber zu einer sehr guten Darstellung für den Rest des Jahres. Die Überschätzung für Januar und Februar könnte auf einige wenige Ereignisse zurückzuführen sein, die mit einer zu geringen Durchmischung im Modell zusammenhängen.

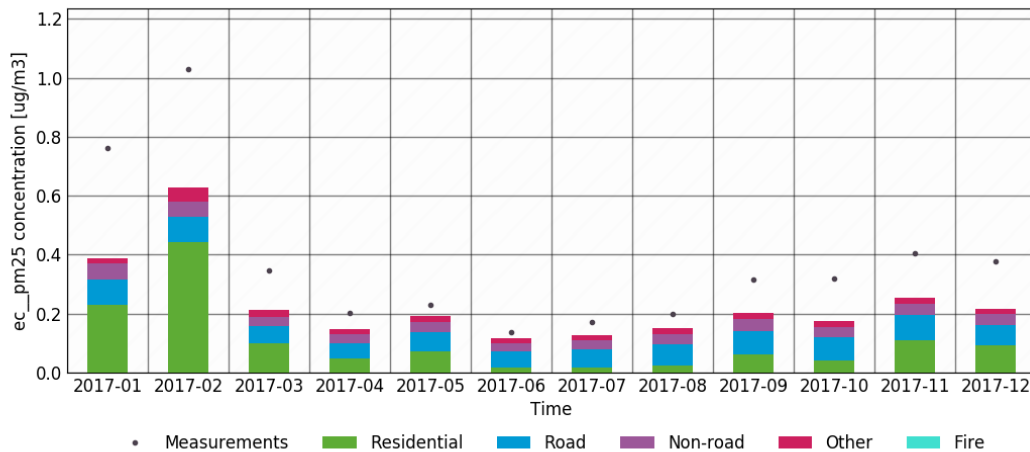
Bei der Auswertung wurden große regionale Unterschiede in der Modellleistung festgestellt, die teilweise auf Unsicherheiten in den Messungen zurückgeführt werden konnten. Für Aethalometer-Messungen zeigten die Berliner Messungen, dass die Verwendung von Standard-Umrechnungsfaktoren zu einer Überschätzung der tatsächlichen eBC führen kann, eine solche Überschätzung ist auch für MAAP zu finden, wenn auch in geringerem Ausmaß. Wir haben in einer Sensitivitätsstudie die beobachteten MAAP- und Aethalometer-Konzentrationen mit einem Faktor 0,8 für MAAP und 0,5 für Aethalometer herunterskaliert, um dies zu kompensieren. Durch die Skalierung wurde die Übereinstimmung zwischen modellierten und beobachteten Konzentrationen deutlich verbessert, und die mit dem Messnetz verbundenen Unterschiede (Bias und RMSE) waren stark gesenkt. Da jedoch keine genauen Harmonisierungsfaktoren pro Standort vorlagen, wurde die Modellabweichung auf Basis der berichteten Werte berechnet, um keine zusätzlichen Unsicherheiten in die Analyse einzuführen.

Um alle Szenarien über alle Stationen zusammenzufassen, wurde für Bias, RMSE, und Korrelation einen Durchschnitt für die Hintergrundstationen berechnet (Abbildung Z- 4). Die Abbildung zeigt die durchschnittliche Statistik als Balken, mit Standardabweichung in vertikalen Linien. Die minimalen und maximalen Werte sind durch Kreuze gekennzeichnet. Die größte Leistungssteigerung des Modells wurde durch das erste Emissions-Update mit angepassten Emissionsfaktoren erzielt. Diese Fehler verringerten sich und die Korrelation erhöhte sich, wobei insbesondere die niedrigste Korrelation und die höchsten Fehler reduziert wurden. Auch die Modellabweichungen wurden bei den nachfolgenden Szenarien reduziert. Es war eine schwierige Aufgabe zu entscheiden, wann ein Szenario eine Gesamtverbesserung darstellte, da es regionale Unterschiede, überhaupt nicht abgedeckte Regionen und kompensierende Faktoren gab. Durch sorgfältige Betrachtung der Quellbeiträge und der modellierten und beobachteten Variabilität über das Jahr, den Wochentag und die Stunde des Tages wurde der endgültige Emissionssatz erstellt. Die Änderungen in Bezug auf Ort und Zeitpunkt der Emissionen von landwirtschaftlichem Verkehr haben zu einer Verbesserung für die Stationen im Osten Deutschlands geführt, was sich insbesondere an einer verbesserten Simulation der Konzentrationen im Sommer zeigte. Dies führte jedoch für den Westen Deutschlands zu einer Verringerung der Konzentrationen und damit zu einer Erhöhung der Abweichung im Winter. Dies wird teilweise durch den Anstieg der Fahrzeugemissionen kompensiert, wenn der Kaltstart in den Emissionszeitprofile berücksichtigt wird. Die neue Verteilung der Hausbrandemissionen schneidet für Berlin und den Osten Deutschlands deutlich besser ab. Sie hat für Stationen im Westen Deutschlands aber relativ geringe Auswirkungen. Aufgrund ungeeigneter Messungen im Süden Deutschlands, wurden die Vergleiche für diese Regionen nicht durchgeführt.

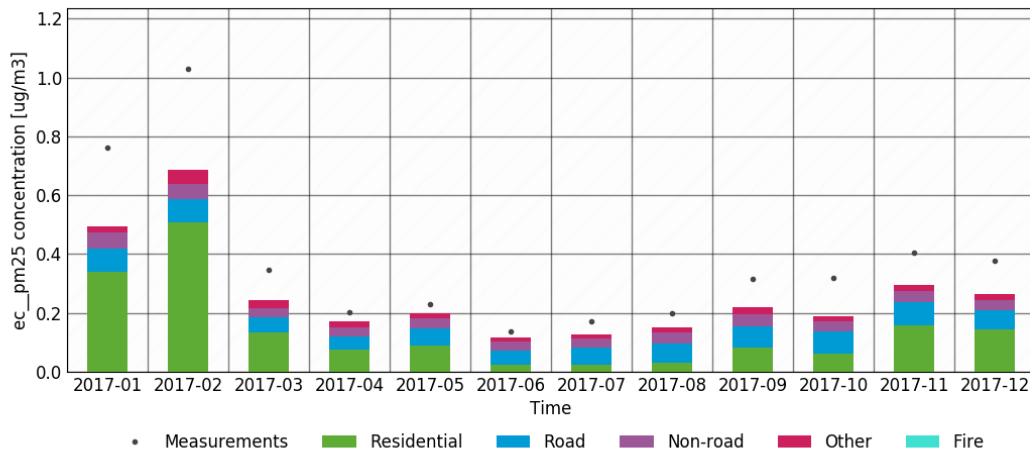
Im Herbst wurden einige regional-skalige Episoden nicht erfasst. Die Analyse der Rückwärts-Trajektorien wies auf Luftmassen aus Tschechien hin, wo die Verbrennung landwirtschaftlicher Abfälle eine Quelle für BC sein könnte.

Abbildung Z- 3:Evaluierung der Ausgangssimulation, erster Aktualisierung und Endergebnis für die ländliche Station Melpitz

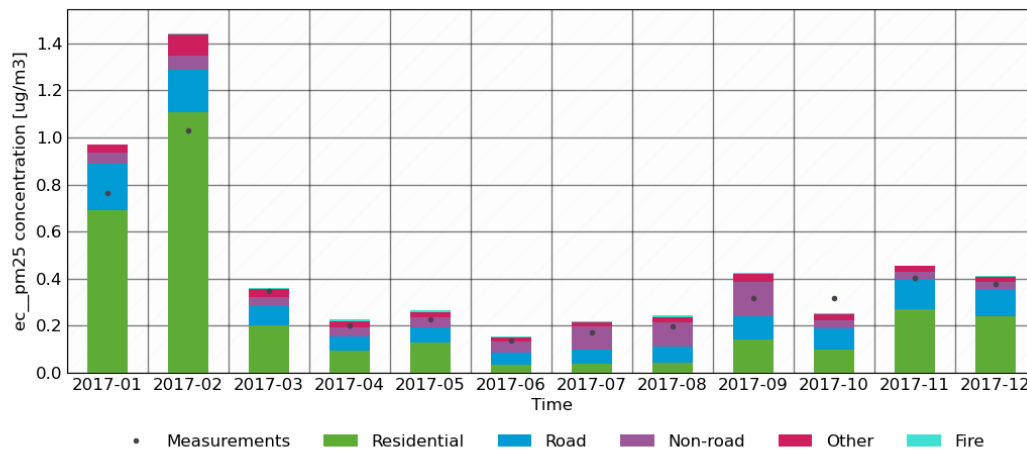
Melpitz; run: UBA-BC-base_0; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



Melpitz; run: UBA-BC-adj; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



Melpitz; run: UBA-BC-End; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



Quelle: TNO

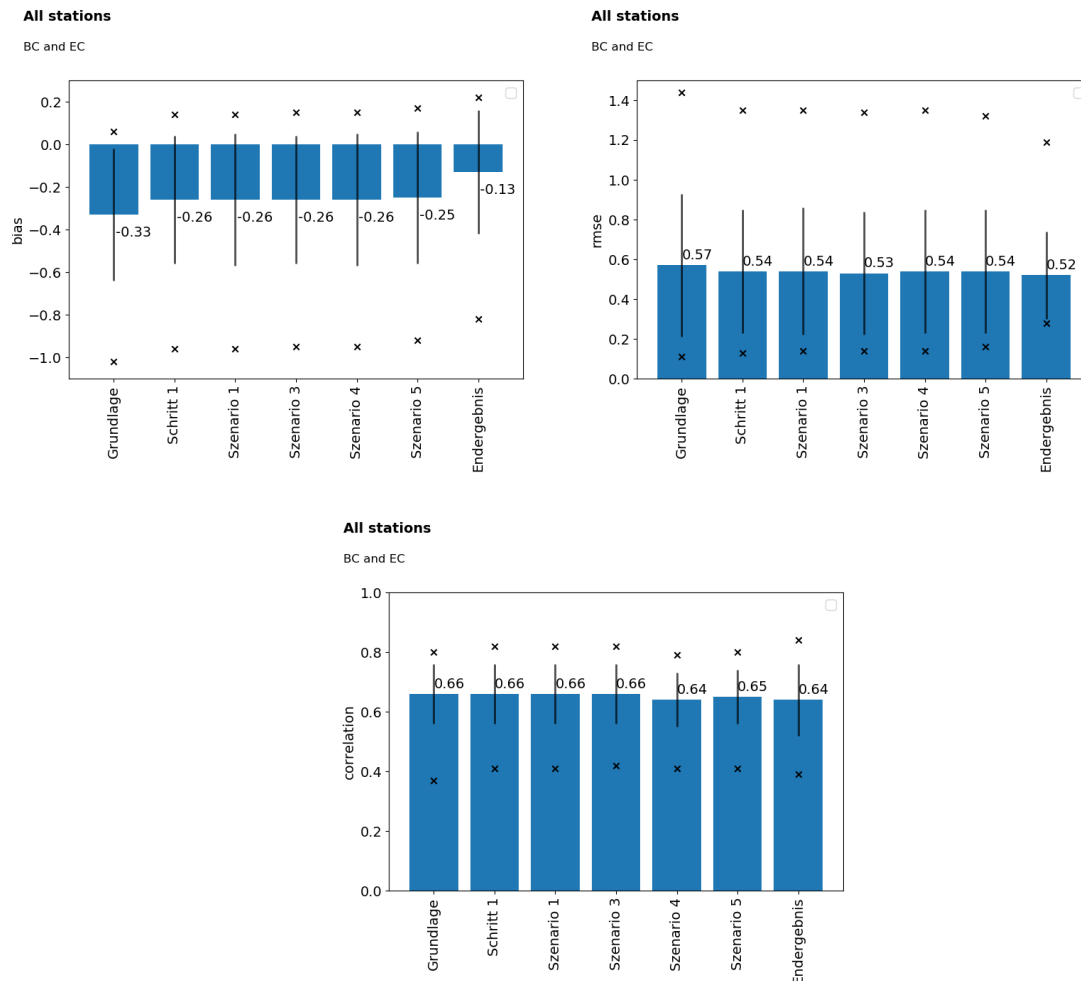
Hochaufgelöste und langjährige mittlere BC-Konzentrationen über Deutschland

Für Deutschland wurden Karten der modellierten Konzentrationen erstellt, die die mittleren Konzentrationen über den Zeitraum der Messkampagne in einer Auflösung von $2 \times 2 \text{ km}^2$ und 2015-2019 in einer Auflösung von $5 \times 5 \text{ km}^2$ zeigen. Die hochauflösende Simulation (Abbildung Z- 5) zeigt die höchste räumliche Detaillierung. Das Langzeitmittel (Abbildung 84) in Kapitel 8) wird berechnet, um den Effekt der interjährlichen Variabilität zu berücksichtigen. Die mittleren Konzentrationen liegen im Bereich von $0,2\text{--}1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ mit Maximalwerten im Rhein-Main-Gebiet und südlichen Großstädten.

Die wichtigsten Quellbeiträge für die BC-Konzentrationen sind der Straßenverkehr und Hausbrand wobei der Beitrag durch den Hausbrand in Süddeutschland absolut und relativ gesehen eine größere Bedeutung hat. Beide Sektoren können lokal mehr als $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an BC-Konzentrationen verursachen. Landmaschinen tragen mit $0,05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nur unwesentlich zur BC Konzentration bei. Der nicht straßengebundene Verkehr trägt insgesamt bis zu $0,15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und die Schifffahrt im Rhein-Ruhr-Gebiet bis zu $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei. Es soll beachtet werden, dass die Verteilung der Schifffahrtemissionen in diesem Bericht nicht gezielt betrachtet wurden.

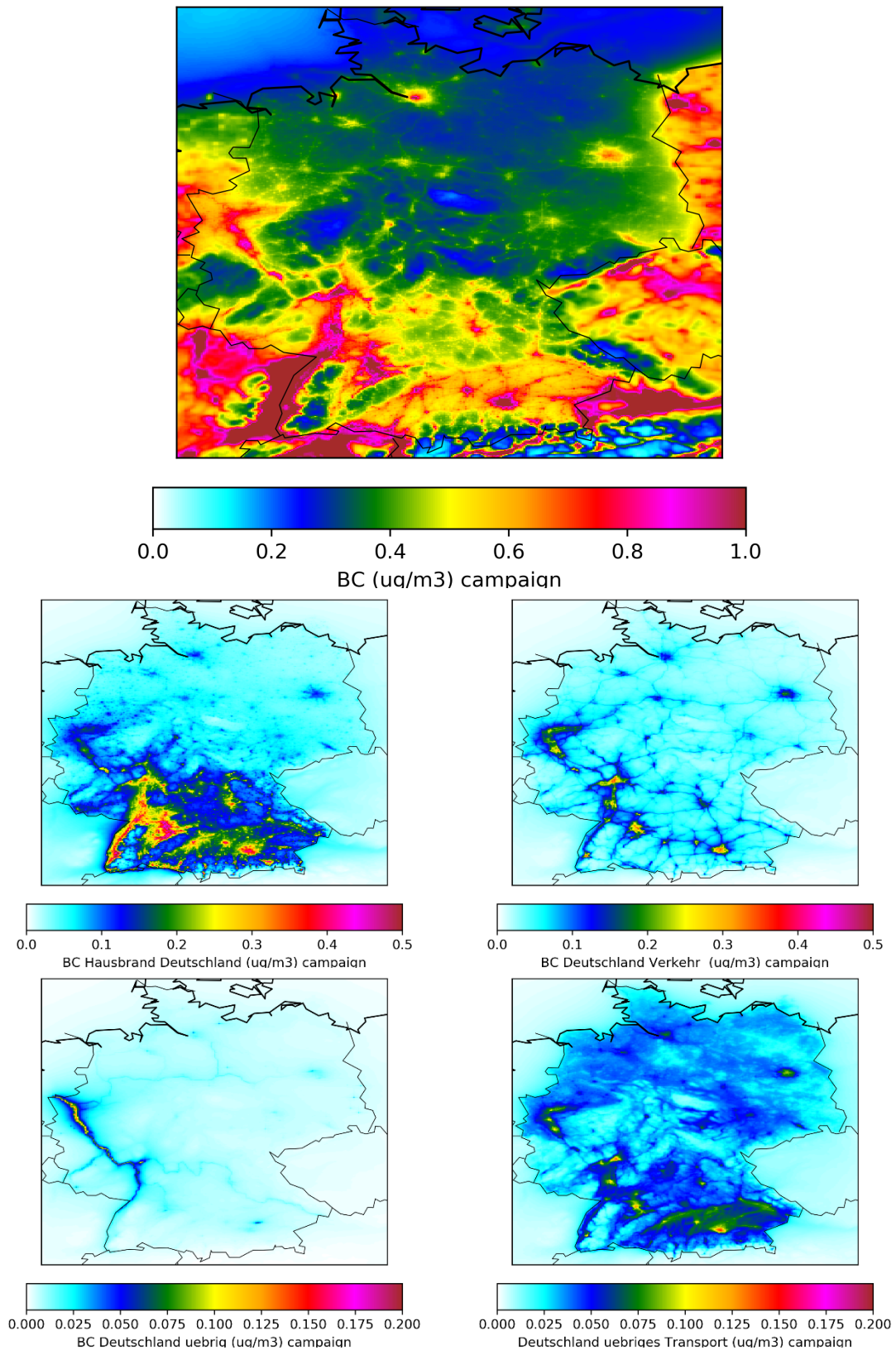
Die modellierten Jahresmittelkonzentrationen sind niedriger als in den Nachbarländern. Eine detaillierte Bewertung der Modellqualität für die Nachbarländer wurde allerdings nicht vorgenommen.

Abbildung Z- 4: Gemeinsame Analyse aller deutschen Hintergrund-BC-Messstationen für die verschiedenen Simulationen. Die Mittelwerte von Bias, RMSE und Korrelation (R2) sind als Balken dargestellt, die schwarze Linie gibt die +/- eine Standardabweichung an und die Kreuze kennzeichnen den höchsten und niedrigsten Wert



Quelle: TNO

Abbildung Z- 5: Hochaufgelöste Karte der mittleren BC Konzentration und deutsche Sektorbeiträge über die Periode der Messkampagne, September 2018-September 2019



Quelle: TNO

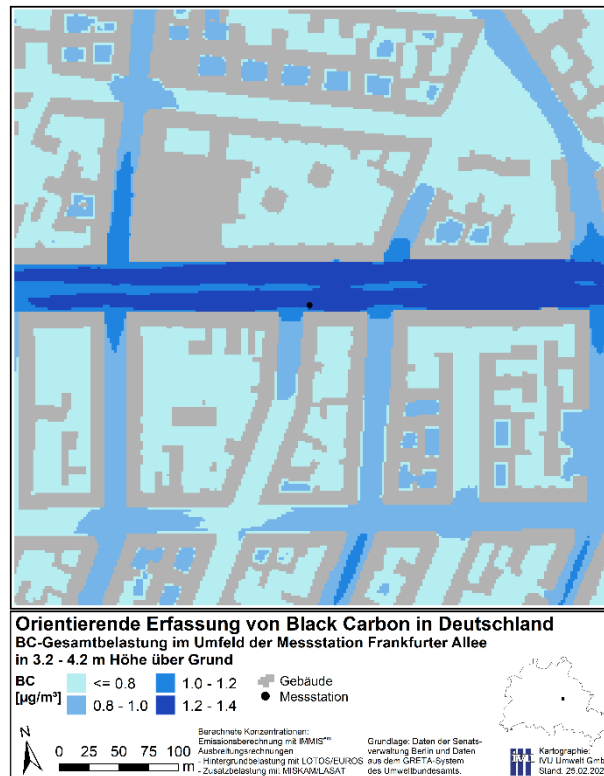
Fallstudie Berlin

Für die Stadt Berlin wurden mikroskalige Modellierungen mit dem Lagrangeschen Modell LASAT mit Strömungsfeldern aus dem CFD-Modell MISKAM mit einer Auflösung von 2m für quadratische Gebiete von etwa 1x1 km² um die Messstationen durchgeführt. Die Meteorologie wurde von der DWD-Station Berlin-Tegel bezogen. Für die mikroskalige Modellierung werden Emissionen in einer höheren Auflösung benötigt, als sie von GRETA zur Verfügung stehen. Daher wurden die Emissionen aus dem Emissionsinventar des Senats von Berlin für die Verbrennung in Wohngebäuden übernommen. Zur weiteren Herunterskalierung dieser gerasterten Emissionen (100x100 m) wurden die Volumenanteile der Gebäude im Rechengebiet verwendet. Für den Verkehr wurde auf die Datenbank des UVM-Verkehrsmanagementsystems des Senats von Berlin zugegriffen und für die Straßen in den Modellgebieten wurden räumlich aufgelöste stündliche Verkehrsemissionszeitprofile berechnet. Die Modellergebnisse wurden mit der LOTOS-EUROS-Simulation auf einem 2x2 km²-Gitter kombiniert, wobei der Labeling-Ansatz verwendet wurde, um die lokalen Emissionen in den vom lokalen Modell abgedeckten Gebieten zu kennzeichnen, um Doppelzählungen zu vermeiden. Der Detaillierungsgrad ist in Abbildung Z- 6 dargestellt. Im Jahresmittel variierten die lokalen Beiträge von 0,07 µg/m³ (Modellgebiet Buch) bis 0,7 µg/m³ (Frankfurter Allee). Zur Veranschaulichung sind die Zeitreihen für die Frankfurter Allee, die Station mit den höchsten Konzentrationen mit starken lokalen Beiträgen aus dem Verkehr, dargestellt (Abbildung Z- 7). Das kombinierte Modell folgt eng den Beobachtungen mit einigen Überschätzungen von zufälligen Spitzenwerten.

In Abbildung Z- 7 ist auch der Anteil der Biomasseverbrennung dargestellt, wie er mit dem kombinierten Modell berechnet wurde und wie er aus den Messungen sowohl mit dem Ansatz von Sandradewi (2008) als auch mit dem in diesem Projekt beschriebenen neu entwickelten Ansatz ("TROPOS") abgeleitet wurde. Der modellierte Beitrag der Biomasseverbrennung stimmt gut mit den aus Messungen in diesem Projekt auf Grundlage des TROPOS Ansatzes abgeleiteten Beiträgen der Biomasseverbrennung überein. Weniger gut ist die Übereinstimmung mit den Beiträgen, die sich aus dem weit verbreiteten Ansatz von Sandradewi (2008) ergeben mit Ausnahme des Sommers.

Für die urbane Hintergrundstation Nansenstraße wird der Beitrag des Hausbrandes überschätzt allerdings bei guten Korrelationen. Für die Stationen in Buch und der Amrumer Straße war die Modellqualität gut und auch die modellierten Biomasse-Verbrennungsanteile stimmten gut mit denen überein, die aus den Beobachtungen abgeleitet wurden.

Abbildung Z- 6: Modellierte jahresmittlere BC Konzentration in der Umgebung der Frankfurter Allee, für die Berliner Messkampagne. Modellwerte sind Hintergrundwerte aus LOTOS-EUROS und Zusatzbelastung aus MISKAM/LASAT



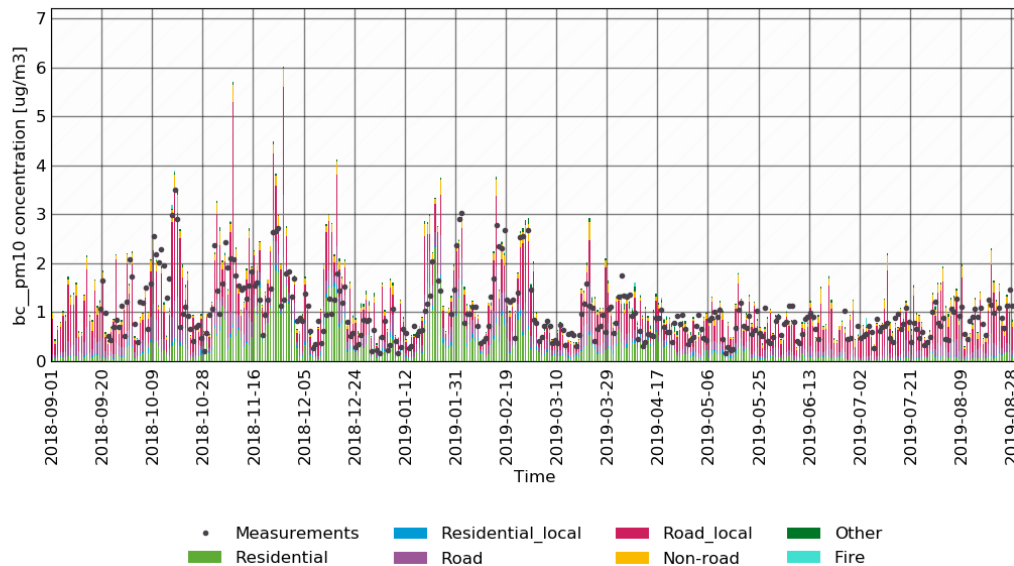
Quelle: IVU

Tabelle Z- 3: Evaluierung der modellierten Konzentrationen von MISKAM/LASAT mit Hintergrundkonzentrationen von LOTOS-EUROS für die Berliner Messkampagne.

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | RMSE | R ² |
|-------------------|----------|----------|------|------|----------------|
| Amrumer Straße | 0.52 | 0.80 | 0.28 | 0.52 | 0.60 |
| Nansenstraße | 0.59 | 0.89 | 0.30 | 0.56 | 0.57 |
| Buch | 0.44 | 0.54 | 0.10 | 0.39 | 0.70 |
| Frankfurter Allee | 0.98 | 1.30 | 0.32 | 0.68 | 0.51 |

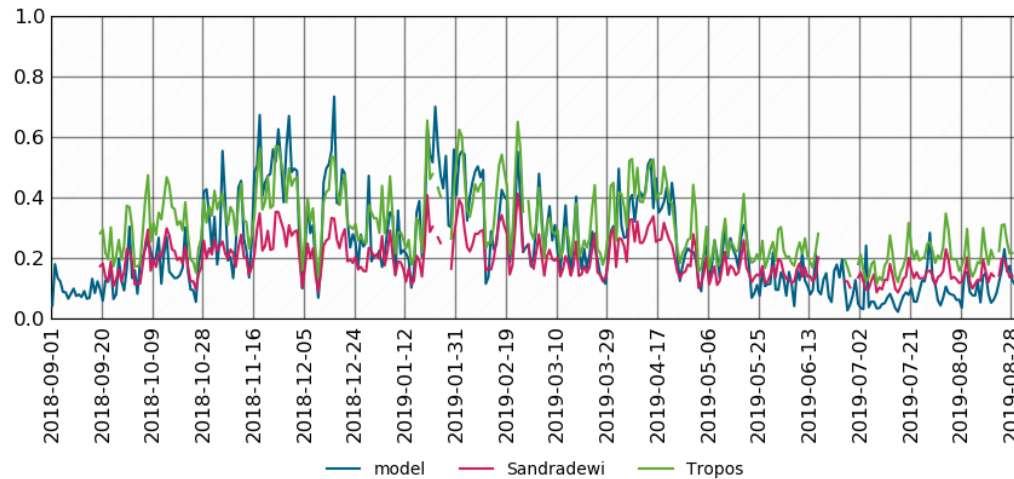
Abbildung Z- 7: Modellierte Quellbeiträge von den LOTOS-EUROS—LASAT Simulationen in Vergleich zu Messungen für die verkehrsnahen Station Frankfurter Allee, Tagesmittelwerte. Lokale Beiträge stammen aus der mikroskaligen MISKAM/LASAT Rechnung. In der unteren Abbildung sind die abgeleiteten Beiträge der Biomasseverbrennung gezeigt für Modell (Hintergrund+ Zusatzbelastung) und Messkampagne (Sandradewi und neue 'TROPOS' Methode)

MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]



BBfraction MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]

Daily values



Quelle: TNO

Schlussfolgerungen und Empfehlungen

Die Überprüfung der Emissionsfaktoren hat zu der Empfehlung geführt, die Emissionsfaktoren für Kleinf Feuerungsanlagen (Hausbrand, NFR Sektor 1A4bi) von 77 auf 100 g/GJ und den BC-Anteil der in diesem Sektor berichteten PM_{2,5}-Emissionen von 10 % auf 30 % zu erhöhen. Für Brems- und Reifenabrieb (NFR Sektor 1A3bvi) wurde eine Reduzierung des BC-Emissionsanteils von 26% auf 2,3% für Bremsen und von 24% BC auf 0,37% für Reifen vorgeschlagen. Außerdem wurden die zeitliche und räumliche Verteilung der BC Emissionen überarbeitet. Die Überarbeitung betrifft insbesondere die räumliche Verteilung des landwirtschaftlichen Verkehrs (NFR Sektor 1A4cii) und des Hausbrandes sowie die Zeitprofile für den Verkehr (Sektor 1A3b) und den Landwirtschaftlichen Verkehr. Aus den Untersuchungen ergeben sich folgende Empfehlungen für die räumliche Verteilung der BC Emissionen aus:

1. Landwirtschaftlicher Verkehr (NFR Sektor 1A4cii)

Verteilung über Kreise nach Gewichtung der Landfläche der CLC Klasse

12 irrigated arable land

13 permanently irrigated land

20 complex cultivation patterns

21 land principally occupied by agriculture, with significant areas of natural vegetation.

Verteilung innerhalb der Kreise findet auf Basis der Polygonflächen der jeweiligen CLC Landbedeckung statt.

2. Hausbrand (NFR Sektor 1A4bi)

Verteilung nach Region nach Mantau und Sörgel (2006). Innerhalb der Regionen Zuteilung auf Waldfläche (CLC) und Bevölkerungsdichte (CAMS Ansatz). Gesamtemissionen pro Gemeinde werden gleichgewichtet verteilt über Klassen CLC111 (continuous urban fabric) und CLC112 (discontinuous urban fabric) anhand Polygonflächen der CLC Landbedeckung.

Für die zeitliche Verteilung haben die Untersuchungen im Projekt zu folgenden Empfehlungen geführt:

1. Verkehr (NFR Sektor 1A3b)

Anwendung von deutschlandspezifischen Zeitprofilen (Mues et al 2014) für 1A3bi-iii, 1A3bvi

Anwendung von Zeitprofilen die Kaltstart berücksichtigen für Personenwagen und leichte Nutzfahrzeuge. (1A3bi and 1A3bii)

2. Landwirtschaftlicher Verkehr (NFR Sektor 1A4cii)

Verwendung einer detaillierten Karte für die Art der Nutzpflanze (z. B. Weizen, Mais, Kartoffeln) und Temperaturdaten, um Zeitprofile zu erstellen, die die tatsächliche Anbausaisonen von Nutzpflanzen berücksichtigen.

Die vorgeschlagenen Änderungen der Emissionsfaktoren für die Verbrennung in Wohngebäuden und in geringerem Maße die Reduzierung von BC aus Bremsen- und Reifenabrieb haben zu einer deutlich besseren Übereinstimmung zwischen modellierten und beobachteten BC-Konzentrationen für Deutschland geführt. Auch die vorgeschlagenen Änderungen in der räumlichen Verteilung der Emissionen bei der Verbrennung in Wohnhäusern und bei landwirtschaftlichem Verkehr haben zu Konzentrationen geführt, die besser mit den Messungen übereinstimmen.

Bei dem Hausbrandsektor wird vermutet, dass ein Teil der Emissionen auf die Freizeitnutzung von Holzöfen zurückzuführen ist, was sich in den Zeitprofilen nicht widerspiegelt. In den Niederlanden werden Fragebögen verwendet, um die Menge des für die häusliche Verbrennung verwendeten Holzes zu ermitteln. Diese Methode könnte als Ergänzung zu den derzeit in Deutschland verwendeten Methoden eingesetzt werden und zum Wissen über regionale Unterschiede in der häuslichen Verbrennungspraxis beitragen. Einige wenige Episoden konnten durch das Modell nicht erfasst werden, sie stehen möglicherweise im Zusammenhang mit der Verbrennung von landwirtschaftlichen Abfällen in der Tschechischen Republik.

Der Labeling-Ansatz von LOTOS-EUROS war ein hilfreicher Ansatz im Prozess der Identifizierung von Quellbeiträgen in allen Szenariosimulationen und lieferte Hinweise zu Emissionsquellen. Mit dem endgültigen Emissionsdatensatz zeigen die Karten der langjährigen mittleren Konzentrationen für BC in Deutschland maximale Konzentrationen von etwa $1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an Nicht-Verkehrsstandorten. Die Auswertung der modellierten Konzentrationen mit Messungen war jedoch schwierig und wies aufgrund der Unsicherheiten in den BC-Werten, die aus den optischen Messungen von MAAP und Aethalometer abgeleitet wurden, Einschränkungen auf. Dies weist auf die Bedeutung der Ableitung von spezifischen Umrechnungsfaktoren pro Standort hin, wie dies in der aktuellen Studie für Berlin durchgeführt wurde. Darüber hinaus wurden Teile Deutschlands überhaupt nicht durch Beobachtungen abgedeckt. Dies bedeutet, dass unsere Emissions- und Konzentrationsdarstellung nicht über große Teile des Landes validiert werden konnte, was eine Einschränkung der aktuellen Studie darstellt. Dies betrifft insbesondere die Bundesländer Bayern und Baden-Württemberg im Süden und Niedersachsen, Schleswig-Holstein und Mecklenburg-Vorpommern im Norden.

Es wird daher empfohlen, die Messungen von BC auf andere Orte auszuweiten, insbesondere im Süden Deutschlands, wo die Hintergrund-BC-Konzentrationen am höchsten sein dürften. Die aktuellen Ergebnisse haben auch gezeigt, wie wichtig es ist, die optischen BC-Messungen mit EUSAAR2-Referenz-EC-Messungen zu kalibrieren. Wenn es nicht möglich ist, Langzeitmessstationen mit MAAP- oder Aethalometer-Instrumenten zu installieren, wäre zumindest eine Kampagne ähnlich zu der in Berlin für eine der Großstädte und deren Umgebung im Süden Deutschlands (z.B. Stuttgart oder München) von großer Bedeutung.

Die Berliner Fallstudie hat gezeigt, dass mit dem verwendeten Ansatz, regional-skalige Hintergrundkonzentrationen aus LOTOS-EUROS mit mikroskaligen Berechnungen aus MISKAM/LASAT zu kombinieren, die beobachtete zeitliche Variabilität in der BC Konzentration mit dem Modellsystem gut in Bezug auf absolute Werte, Variabilität und Quellbeiträge reproduziert werden konnte. Es zeigte sich aber auch, wie wichtig die Verwendung lokaler Faktoren für die Ableitung von eBC-Konzentrationen aus optischen Aethalometer-Messungen ist. Das Gleiche gilt für die Verwendung des standardisierten Ansatzes von Sandradewi (2008) zur Ableitung des Biomasse-Verbrennungsanteils. Ein maßgeschneiderter Ansatz für die Messungen der Berliner Kampagne führte zu höheren Biomasse-Verbrennungsanteilen, die aus den Messungen abgeleitet wurden. Mit diesen höheren Biomasse-Verbrennungsanteilen stimmten die modellierten Werte viel besser mit den Messungen überein.

Mit den Ergebnissen dieses Projektes wurde eine höhere Konsistenz zwischen modellierter BC Konzentrationen und Beobachtungen erreicht für die geänderte BC Emissionen, inhärente Unsicherheiten in den Messungen und den Emissionen wurden somit verringert. Dies führt zu der Schlussfolgerung, dass der hier verwendete Drei-Säulen-Ansatz mit enger Zusammenarbeit zwischen den Experten für Emissionen, Messungen und Modellierung nicht nur zielführend, sondern unerlässlich ist, um die bestmögliche Beschreibung der Emissionsquellen und der Konzentrationsverteilung für BC/EC in Deutschland abzuleiten.

Summary

Rationale

Black carbon (BC) is a particulate matter component associated with increased mortality from respiratory and cardiovascular disease, decreased lung function, and chronic lung disease. In addition, BC absorbs solar radiation and thus affects the radiation budget of the atmosphere and, in turn, weather and climate. BC is formed during incomplete combustion of fossil and biogenic fuels and is often associated with harmful compounds such as polycyclic aromatic hydrocarbons. It is predominantly present in the PM_{2.5} fraction of particulate matter. Important sources in Germany are domestic heating (wood burning) and traffic. Although there are no European limit values for BC, it is considered one of the priority air pollutants to be reduced in terms of air quality under the new NEC Directive (2016/2284/EU).

The main objective of this project is **to improve the description of emission sources and concentration distribution for BC in Germany** by a combined evaluation of measured data and modeling results.

Subgoals are

1. Improvement of sector specific annual total reported BC emissions for Germany
2. Improvement of spatial distribution of emissions in Germany
3. Creation of an area-wide map of BC concentrations for Germany
4. Verification of the new emission distributions with dedicated measurements and micro-scale modelling

Approach

The approach consisted of three pillars:

1. Revision of the current German emission inventory with the aim to improve modelling of BC. After identification of the most relevant sectors, a critical review of the used emission factors was carried out by comparing literature estimates and by checking for consistency with findings in a scientific European emission inventory with harmonized wood burning emission estimates. Next to the revision of the reported annual total emissions, also the spatial distribution of emissions for the most important source sectors was addressed.
2. In a dedicated measurement campaign in Berlin, BC measurements from optical measurements are combined with filter measurements of elemental carbon (EC) to create a harmonized dataset. In addition estimations of biomass and fossil fuel contributions were derived.
3. To optimize the emission inventory for Germany, modelling of atmospheric concentrations is required to link emission estimates to observed concentrations. For the regional scale, the LOTOS-EUROS model is used, which has a tagging method to trace contributions from source sectors and regions. The final emission set was used to calculate black carbon concentrations for 2015-2019. Next to the Germany-wide assessment, a case study for Berlin was set up at high resolution. To this end, the models MISKAM and LASAT were used to calculate local residential wood combustion and road transport emission contributions. These were added to background concentrations from LOTOS-EUROS and the results were compared with the dedicated observations from pillar 2

Emissions

The most important sectors contributing to BC in Germany are residential combustion, road traffic and non-road traffic. For these sectors, the officially reported annual totals were compared to those of several widely used Europe-wide emission inventories for the years 2011 and 2015. These are emission inventory TNO-MACC-III 2011 (Kuenen et al., 2014), its successor CAMS2018 with the officially reported PM_{2.5} emissions of the European countries from 2000-2015. This reflects the differences in reporting of the European countries between 2013 and 2017 for the year 2011. Furthermore, we compared to TNO-newRWC_2011 that includes a bottom-up estimate for residential wood combustion including semivolatile material in a more consistent way, but otherwise identical is to CAMS 2018. Findings are summarized in Table Z- 1.

For road transport, the German reported emissions were relatively high in comparison to CAMS 2018. This could be traced down to the use of a relatively high BC fraction of the reported PM_{2.5} from the brake and tyre wear sectors. BC is not reported separately but is counted as a fraction of PM_{2.5}. Although there is elemental carbon present in the wear product, this material is relatively coarse and therefore not in the optically active part that can be observed as black carbon.

For residential combustion, the German reported emissions were relatively small in comparison to TNO-newRWC_2011. This was mainly a result of the originally used small BC fraction, which was more representative for PM_{2.5} emissions including the co-emitted condensable gases than for the originally used emission factors reflecting solid PM_{2.5} particles. In addition, the used PM_{2.5} emission factor for residential wood combustion of 77 g/GJ is at the low end of the range of literature values for modern stoves, and it was recommended to use to 100 g/GJ for at least the period 2010-2016.

Table Z- 1: Comparison between the original and updated BC fractions for the most important sectors

| Source sector | Original % BC | New % BC | Reference |
|----------------------------------|---------------|----------|--|
| 1A4bj, solid biomass residential | 10 | 30 | Guidebook tables 3.40-3.42 and Klimont et al. (2017) |
| 1A3bvi tyre | 24 | 0.37 | Schauer (2006), as used in EUCAARI and CAMS |
| 1A3bvi brake | 26 | 2.3 | Schauer (2006), as used in EUCAARI and CAMS |

Also the spatial distribution of emissions in the UBA GRETA gridding tool was investigated in detail. For wood combustion, the spatial distribution of the GRETA tool and the CAMS_inventory use similar proxies, but with different spatial aggregation and weighing. The CAMS inventory lacks detailed information about differences in wood use for Federal states that are included in GRETA. For the CAMS inventory it is assumed that in rural areas it is twice as likely that people use a wood stove than in an urban area whereas GRETA includes a more detailed differentiation

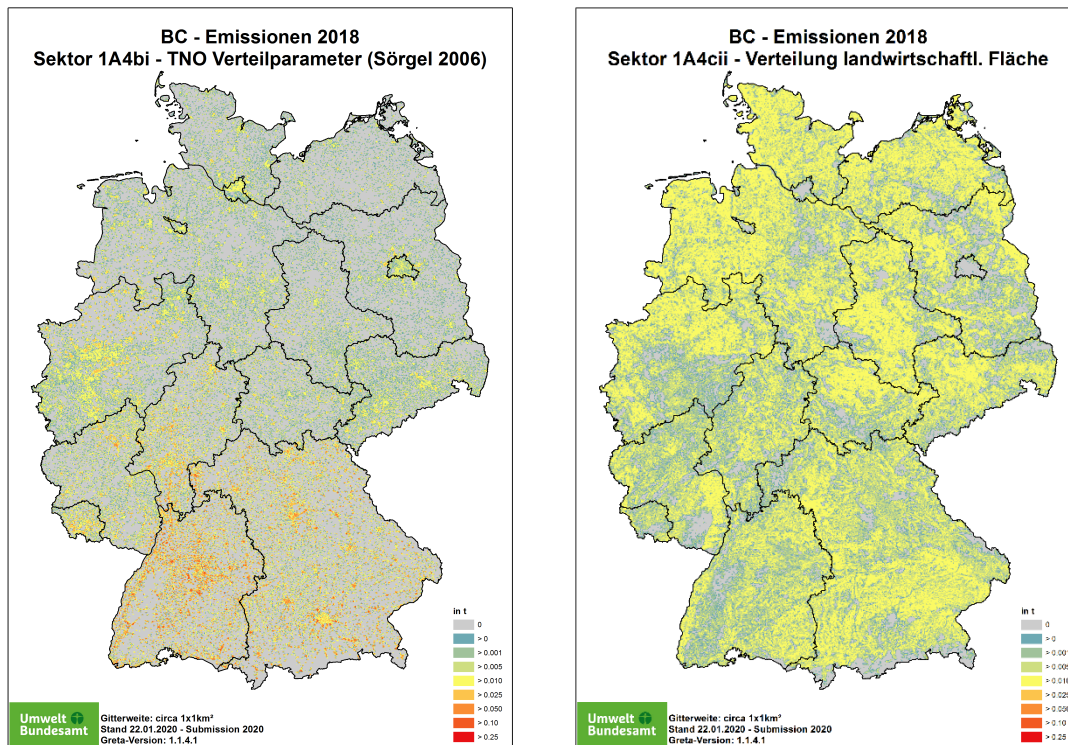
based on number of inhabitants. On the other hand, GRETA sums up information about land cover per municipality or county, which can lead to enhanced attribution of emissions to city centres, and also does the national aggregation and disaggregation on county level, whereas CAMS always keeps the information on a $0.1 \times 0.05^\circ$ lon-lat grid ($\sim 5 \times 5 \text{ km}^2$). In a detailed comparison for Berlin, for which a bottom-up emission inventory was available, the spatial distribution and the total emissions of the city were compared. Large differences in spatial distribution and total emissions between the two set were found, which supported an adaptation of the gridding of the emissions. For the final emission inventory, it was decided to use the wood use per region (a region includes up to a few Federal states, distribution according to Mantau and Sorgel (2006)) as the first step. Within this region the CAMS gridding methodology was used to determine the spatial distribution of the emissions at municipality level. Within a municipality, the emissions are distributed over the land use classes continuous and discontinuous urban fabric, with equal weight, to arrive at a nation-wide resolution of $1 \times 1 \text{ km}^2$. This procedure results in a shift of emissions away from large urban areas to smaller villages with respect to the original distribution.

For agricultural machinery, the original spatial distribution proxy was based on the number of people working in the agricultural sector in a municipality/county. This can be a realistic proxy for some emissions but is not a good proxy for the use of agricultural machinery, that would be more related to cropland area. After comparison with the CAMS gridding it was decided to bypass the municipality-level information and directly grid the national total emissions according to the land surface in the Corine land cover classes. Every county gets a share of the agricultural machinery emissions depending on the share of agriculture-related surfaces, which are represented by the CORINE classes

1. 12 irrigated arable land
2. 13 permanently irrigated land
3. 20 complex cultivation patterns
4. 21 land principally occupied by agriculture, with significant areas of natural vegetation.

Within the counties, the 1 km grids are produced using the polygon areas of the Corine land cover.

Figure Z- 1: New gridding of Residential combustion (left) and agricultural machinery (right)



Source: UBA

Besides a realistic spatial distribution, also the temporal distribution is of key importance when calculating black carbon concentrations in the atmosphere. For residential combustion, the actual heating demand based on temperature was used to calculate the spatially differentiated day-to-day distribution over the year.

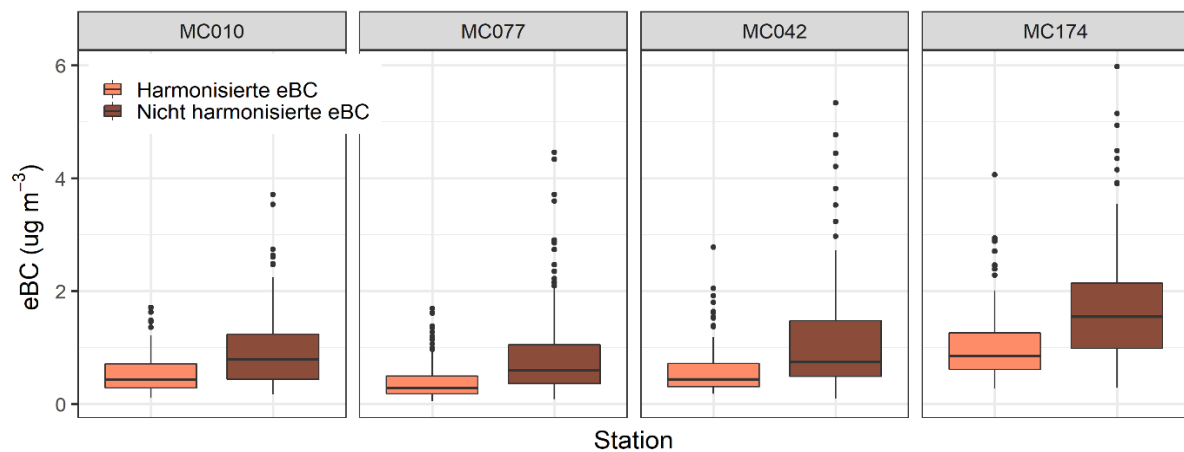
Scenarios for the temporal distribution of traffic emissions were made, using Germany-specific traffic time profiles based on Mues et al (2014), and accounting for cold-start emissions that give higher emissions for light duty vehicles and passenger cars in the (cold) morning, depending on actual temperature. The emissions of agricultural machinery were updated to include actual growing seasons of crops, using a detailed map for crop type (e.g. wheat, maize, potatoes) and temperature data, resulting in a day-to-day distribution specific to each year. This concentrates the emission of agricultural machinery much more towards spring (preparation of land, manure spreading, sowing) and summer (harvesting) than the default approach.

Campaign measurements

In Berlin, BC was measured at four locations of the BLUME network of the Senate of Berlin. These are a background station (outskirts, Buch, MC077), two urban stations (Neukölln, Nansenstrasse, MC042, Wedding, Amrumer Strasse, MC010) and a traffic station (Friedrichshain, Frankfurter Allee, MC174). Several methods are available to measure black carbon mass concentrations. Thermo-optical methods applied to filters can be used to derive elemental carbon (EC). Optical methods measuring the change in the light attenuation, are used to estimate equivalent black carbon (eBC). In Berlin, four aethalometers were operated in the period September 2018-September 2019. These instruments employ a filter-based optical method and allow hourly measurements of black carbon in multiple light wavelengths, which is advantageously used to

estimate the contributions from biomass burning and fossil fuel combustion to the total eBC mass. The use of optical methods requires multiple correction factors, which contribute to a higher uncertainty of the derived eBC mass concentrations. Both, thermo-optical and optical methods can be combined to reduce the uncertainty in the derived eBC. In addition to the aethalometers, co-located filter measurements were used in Berlin to measure EC concentrations following the EUSAAR protocol. From the combination of the Aethalometer and filter measurements, local conversion factors were derived to correct the mass concentrations of eBC. This resulted in eBC concentrations were about a factor two lower than those obtained using the default corrections used by the instruments, see Figure Z- 2. For the stations with stronger contribution of traffic emissions, the MAC values tended to be lower than for the stations that are more influenced by biomass burning.

Figure Z- 2: Harmonized eBC and non-harmonized eBC for the four stations of the Berlin measurement campaign.



Source: TROPOS

From the analysis of hourly, weekly, and monthly trends, the influence of traffic emissions became clear. In general, higher concentrations were observed during peak traffic hours on weekdays, with a visible reduction on Sundays. At the Buch station, the trend showed a slight increase in eBC mass on Saturday evenings, which may be associated with emissions from biomass combustion. An increase in eBC mass concentrations was measured in autumn and winter, which can be attributed to biomass burning.

In addition, the biomass burning contribution can be derived from combining light attenuation measurements at different wave lengths (Sandradewi 2008). This is done with some assumptions and default values in the aethalometer model, which, however, is not necessarily appropriate for all measurement locations and seasons. Therefore, an alternative and dedicated approach to estimate the contribution of biomass and fossil fuel eBC was derived from the measurements in this project. This has led to much higher biomass contributions than with the Sandradewi (2008) approach.

The harmonized measurements and the results of the standard aethalometer model (Sandradewi, 2008) and our own approach are summarized in Table Z- 2. The concentrations of EC are lowest at MC077 on the urban fringe, slightly higher at MC010 and MC042 in the urban background, and significantly highest at traffic station MC174. Station MC174 had the highest concentrations of eBC_{ff} among all the monitoring stations. The lowest eBC_{bb} concentrations were found for MC010, an urban residential area.

Table Z- 2: Summary of eBC Mass concentrations related to contribution of Biomass combustion and contribution of fossil fuel combustion

| Mass concentration | Mean values in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Minimum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Maximum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Standard-deviation in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Median value in $\mu\text{g m}^{-3}$ |
|--|-------------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|--|--------------------------------------|
| Wedding Amrumer Str. (MC010) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,22 | 0,00 | 2,53 | 0,27 | 0,12 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,13 | 0,00 | 1,50 | 0,16 | 0,73 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,30 | 0,00 | 3,21 | 0,25 | 0,24 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,38 | 0,01 | 3,57 | 0,33 | 0,30 |
| Neukölln, Nansen Str. (MC042) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,28 | 0,00 | 3,74 | 0,36 | 0,14 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,16 | 0,00 | 2,14 | 0,20 | 0,08 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,30 | 0,00 | 4,45 | 0,29 | 0,22 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,41 | 0,01 | 5,12 | 0,41 | 0,29 |
| Friedrichshain, Frankfurter Allee (MC174) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,32 | 0,00 | 2,89 | 0,34 | 0,19 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,20 | 0,01 | 1,80 | 0,21 | 0,13 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,66 | 0,02 | 10,30 | 0,51 | 0,54 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,78 | 0,02 | 6,54 | 0,59 | 0,64 |
| Buch, Wiltberger Str. (MC077) | | | | | |
| <i>eBC_{bb}</i> (TROPOS) | 0,25 | 0,00 | 6,19 | 0,38 | 0,10 |
| <i>eBC_{bb}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,12 | 0,00 | 2,99 | 0,18 | 0,05 |
| <i>eBC_{ff}</i> (TROPOS) | 0,19 | 0,00 | 8,22 | 0,20 | 0,13 |
| <i>eBC_{ff}</i> (Sandradewi, 2008) | 0,31 | 0,00 | 4,42 | 0,33 | 0,20 |

Modeling

The regional-scale chemistry transport model LOTOS-EUROS was used to simulate and assess BC concentrations at a national scale. For practical reasons, scenario simulations were performed for a single year at coarser resolution than the final assessment simulation.

The scenario simulations were performed using LOTOS-EUROS' default setting using 5 dynamical vertical layers. The horizontal domain had a resolution of 0.1x0.05 degrees lonxlat

(~5 km) encompassing the Netherlands, Belgium, part of France in the West, and a large share of Poland, the Czech Republic and Austria in the East. Part of Denmark was covered in the North and part of Switzerland in the south. This domain was nested in a larger European domain. The model was driven by ECMWF meteorology. LOTOS-EUROS was run with labels of the source sectors residential combustion, traffic, non-road traffic, wildfire and other, and source areas Berlin, Brandenburg, and rest of Germany. Also the neighboring countries had labels to trace the source area and separate national from international emissions. For Europe, the TNO_CAMS-RWC inventory was used with harmonized PM_{2.5} emissions and consistent BC fractions, for Germany the GRETA emissions and their scenarios were used. Simulations were evaluated against measurements from UBA, several federal states and the Berlin campaign. Also data from The Netherlands and Belgium were used. The year 2017 was the base year for scenario runs, since for this year the data availability was best.

Simulations covered the following cases:

- ▶ Base case: TNO_CAMS_RWC emissions for Europe, GRETA for Germany, including heating degree day approach for residential combustion
- ▶ First update: as above but with updated emission factors for traffic and residential combustion
- ▶ Scenario 1: as first update but with spatial distribution of agricultural machinery emissions according to land cover associated and redistribution of residential combustion with different weight on built-up classes within a county
- ▶ Scenario 2: as scenario 1 but with time profile for traffic specific to Germany
- ▶ Scenario 3: as scenario 2 but including time profiles for cold start traffic emissions
- ▶ Scenario 4: as scenario 3 but with time profiles for use of agricultural machinery depending on temperature sums and crop type
- ▶ Scenario 5: as scenario 4 but with spatial distribution of residential combustion taken from TNO_CAMS_RWC for Germany
- ▶ Final simulation: as Scenario 4 but with spatial distribution of residential combustion based on mixture of GRETA approach and TNO_CAMS_RWC approach

For the final emission set, simulations were done on the same resolution but using more meteorological levels in the vertical, which leads to a more detailed representation of vertical mixing. The evaluation of this simulation can therefore not be compared directly to the scenario simulation, but this simulation represents the best possible modelling of the BC concentrations. The years 2015-2019 were simulated to allow for the effect of meteorological variability (e.g. cold winters). For the measurement period September 2018-September 2019 a simulation was made on a resolution that was a factor 3 higher than the other runs and is about 2 km and used the meteorology from COSMO-D2 which has a similar resolution. This simulation does not only give a very detailed picture of the concentrations, with the strong gradients associated to black carbon, but also provides background conditions for an assessment of four subregions in Berlin with a measurement campaign and local contributions as calculated in micro-scale simulations with MISKAM/LASAT.

Model evaluation was found to be challenging, as the different federal states used different measuring equipment and protocols. For daily measurements of elemental carbon on filters, both thermo-optical EUSAAR2 and thermographic VDI protocol were used. It was decided not to include the measurements with VDI protocol as they deviated too much from the new standard EUSAAR2 and were mainly available for the past. Optical measurements, which have the advantage that hourly resolutions can be reached, have the drawback that location-specific conversion factors are needed to derive eBC. This dependency is different for the type of instrument as well. The data set consisted of both MAAP and Aethalometer derived concentrations, with some sampling PM_{2.5} and some sampling PM₁₀. We have assumed that for these optical measurements sampling of PM_{2.5} or PM₁₀ is equivalent, as black carbon is contained mainly in PM_{2.5} and only optically active in the PM_{2.5} range.

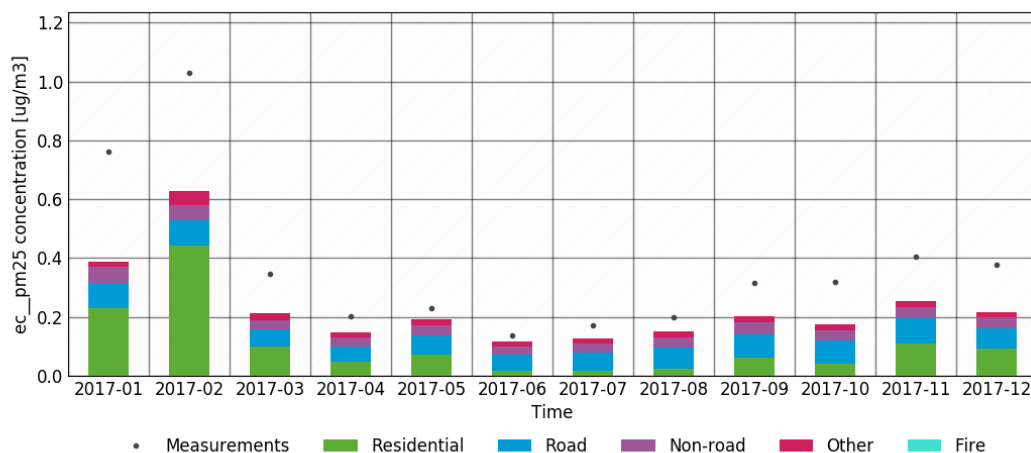
Evaluation

Evaluation of the LOTOS-EUROS model simulations was done by statistical analysis (mean, bias, RMSE, correlation) on all German background measurement locations. In addition, monthly means, and averages over hour of the day and day of the week were calculated. Together with the labeling, this enables the evaluation of the contribution of the different source sectors and regions and to identify possible directions of improvements for the emission distribution. As an example, the data are shown for the station Melpitz, a rural station in a relatively flat area in the middle-east part of Germany (Figure Z- 3). The base case simulation (upper graph) clearly shows an underestimation of the concentrations by the model, in particular for the winter months. The annual cycle itself was reproduced well. The first update (middle graph) increased the contribution of residential combustion, which has its main influence in the winter months. For the final simulation (bottom graph), the changes in emission distribution in combination with the better representation of vertical mixing in the model have resulted in an overestimation for January and February months but a very good representation for the rest of the year. The overestimation for January and February could be attributed to a few events related to too little mixing in the model.

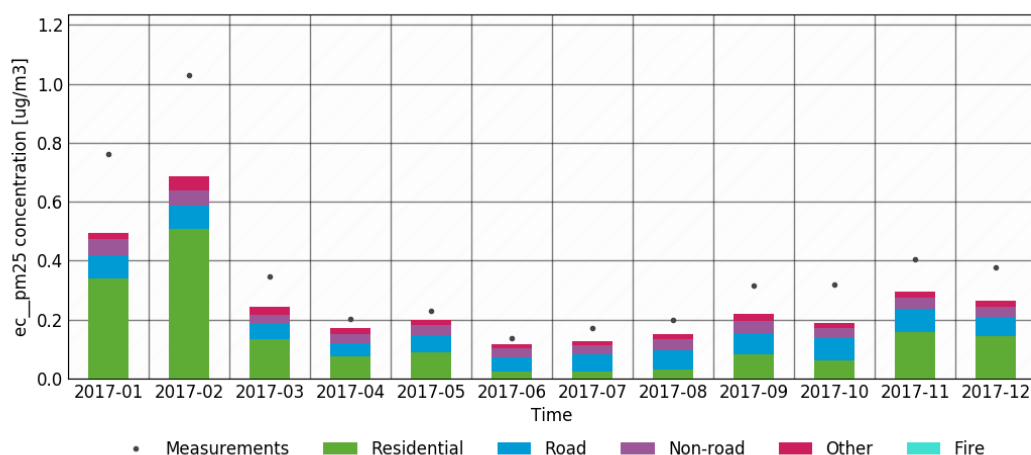
In the evaluation, large regional differences in model performance were found, which could be partly attributed to uncertainties in the measurements. For Aethalometer measurements, the Berlin measurements showed that the use of standard conversion factors can result in an overestimation of actual eBC, such overestimation can also be found for MAAP albeit to a lesser extent. In a sensitivity experiment, we have scaled down observed MAAP and Aethalometer concentrations with a factor 0.8 for MAAP and 0.5 for Aethalometer to compensate for this. When doing so, the correspondence between modelled and observed concentrations was much improved and the patches in performance related to the measurement network had vanished. However, since we do not have the exact downscaling factors per location, we should not introduce new uncertainty by taking values that work out to be best, but evaluate against the reported values.

Figure Z- 3: Evaluation of simulations for base case, first update and final simulation for the rural station Melpitz

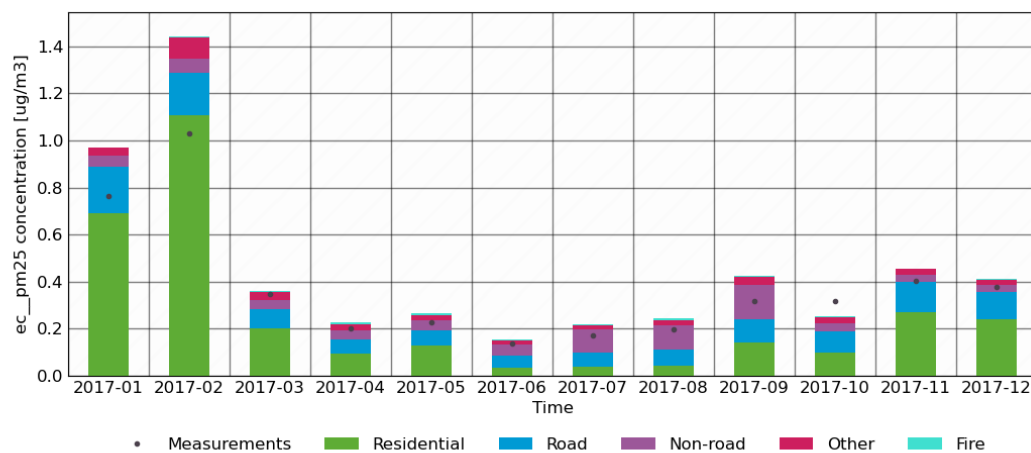
Melpitz; run: UBA-BC-base_0; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



Melpitz; run: UBA-BC-adj; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



Melpitz; run: UBA-BC-End; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



Source: TNO

To summarize all scenarios over all stations, we have calculated bias, RMSE and correlation averaged over the background stations. (Figure Z- 4). The figure shows the average statistic as bar, with standard deviation in vertical lines and the values for the stations with minimum and maximum value of the statistic in crosses. The largest improvement in model performance was from baseline to first emission update with adapted emission factors. Bias decreased and correlation increased and in particular the lowest correlation and highest biases were reduced. Also bias was reduced for the subsequent scenarios. It was a difficult task to decide when a scenario was an overall improvement as there were regional differences, regions not covered at all and compensating differences. By carefully looking at source contributions and modelled and observed variability over the year, day of the week and hour of the day, the final emission set was constructed. The changes in location and timing of agricultural emissions have led to an improvement for the stations in the east of Germany where summer concentrations are presented better, but have resulted in a reduction in concentrations going along with an increase in bias in particular in the west of Germany in winter. This is partly compensated by the increase in vehicle emissions when the cold start is included in the timing. The new distribution of residential wood combustion clearly gives a better performance for Berlin and the east of Germany, and has relatively little impact in the west. Since no suitable measurements were available in the south of Germany, no model evaluation could take place for this part of the country.

In fall, some regional-scale episodes were not captured. Back-trajectory analysis pointed at air masses from the Czech Republic, where agricultural waste burning could be a source of BC.

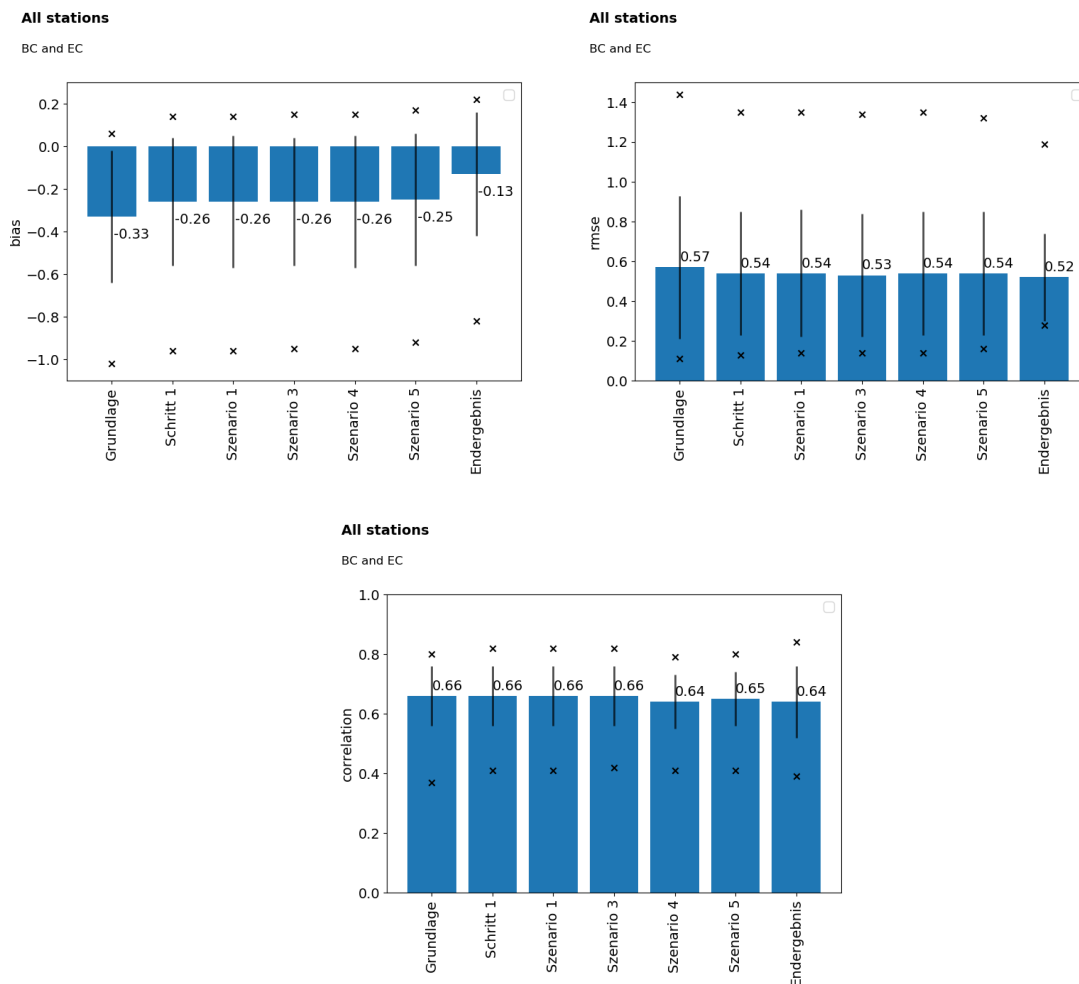
High-resolution and long-term average BC concentrations over Germany

For Germany, maps were made of modelled concentrations, that show the average concentrations over the measurement campaign period on a 2x2km² resolution and 2015-2019 on a resolution of 5x5 km². The high-resolution simulation (Figure Z- 5) shows the highest spatial detail. The long-time average (Abbildung 84 in Chapter 8) is calculated to take the effect of interannual variability into account. Mean concentrations are in the range 0.2-1.5 µg/m³ with maximum values in the Rhine-Main area and southern major cities.

The main source contributions for BC concentrations are road transport and domestic heating, with domestic heating being more important in absolute and relative terms in southern Germany. Both sectors can locally determine more than 0.5 µg/m³ of BC concentrations. Agricultural machinery contributes much less (0.05 µg/m³), non-road traffic as total contributes up to 0.15 µg/m³. Shipping can contribute up to 0.1 µg/m³ in the Rhine-Ruhr area but it should be noticed that shipping emissions were not targeted in this report.

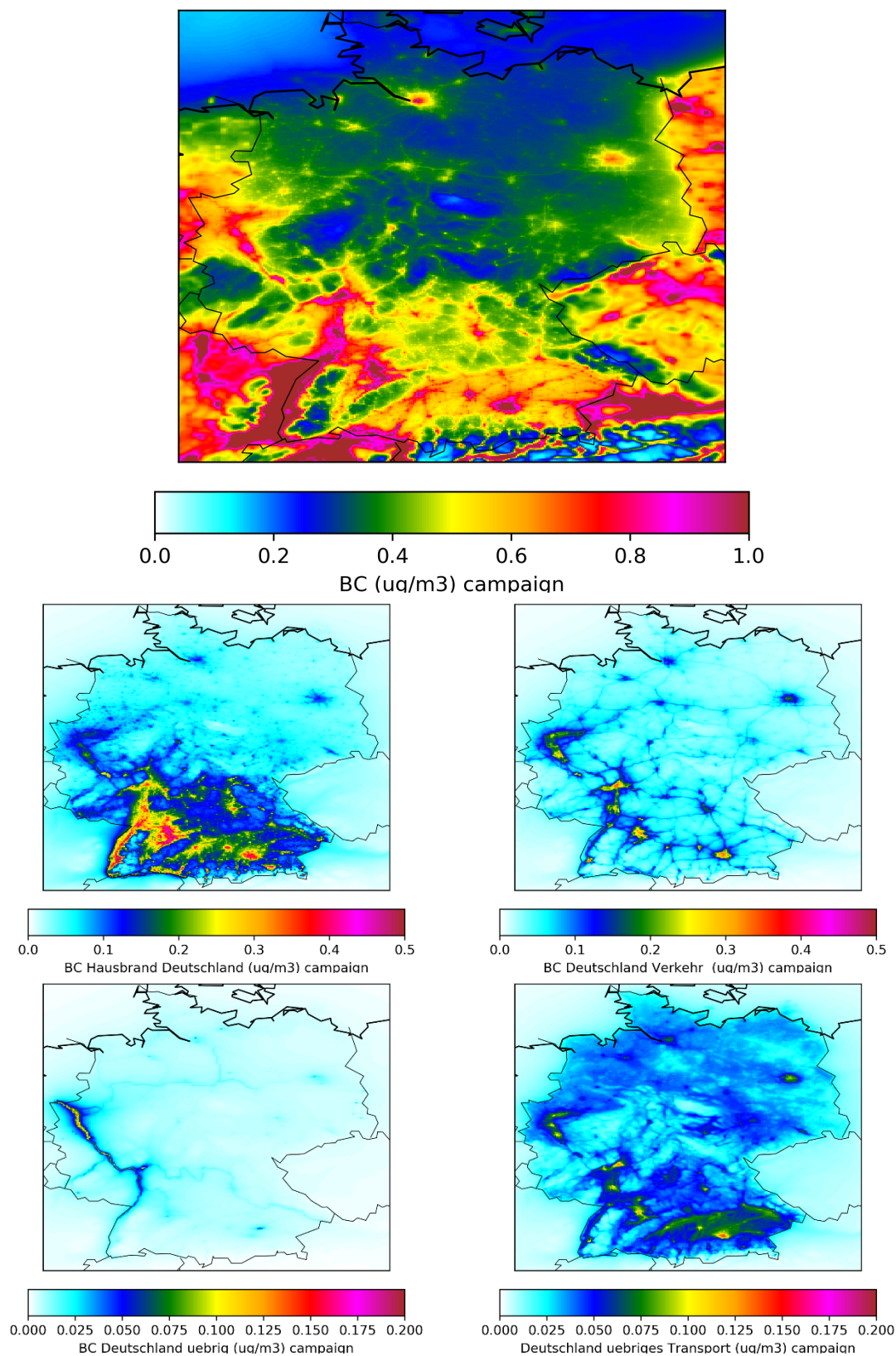
The modelled annual average concentrations are lower than in the neighboring countries. However, a detailed model evaluation for the neighboring countries was not made .

Figure Z- 4: Joint analysis of all German background BC measurement stations for the different simulations. Mean values of bias, RMSE and correlation (R2) are indicated as bars, the black line indicates the +/- one standard deviation and the crosses indicate the highest and lowest value.



Source: TNO

Figure Z- 5: High-resolution map of mean BC concentrations and German sectoral contributions, campaign period September 2018-September 2019



Source: TNO

Berlin case study

For the city of Berlin micro-scale modelling with the Lagrangian model LASAT with flow fields from the CFD-model MISKAM on a 2m resolution was performed for square domains of about of 1x1 km² surrounding the measurement stations. Meteorology was obtained from the DWD station Berlin-Tegel. The microscale modelling needs emissions on a higher resolution than available from GRETA. Therefore, emissions from the emission inventory of the Senate of Berlin were taken for residential combustion. To further downscale these gridded emissions (100x100 m²) the shares of the volumes of the buildings in the calculation area were used. For traffic, the database of the UVM Traffic management system of the Senate of Berlin was accessed, and for the roads in the model domains spatially resolved hourly traffic emission time profiles were calculated. The model results were combined with the LOTOS-EUROS simulation on a 2x2 km² grid, where the labeling approach was used to label the local emissions in the areas covered by the local scale model to avoid double counting. The level of detail is illustrated in Figure Z- 6. On annual mean basis, the local contributions varied from 0.07 µg/m³ (Buch model area) to 0.7 µg/m³ (Frankfurter Allee). As an illustration, the time series are shown for Frankfurter Allee, the station with the highest concentrations with strong local contributions from traffic (Figure Z- 7). The combined model closely follows the observations with some overestimations of incidental peaks.

In Figure Z- 7 also the biomass burning fraction is shown, as calculated from the combined model, and as derived from the measurements with both the Sandradewi (2008) approach and the newly developed approach described in this project ("TROPOS"). The modelled biomass burning contribution is well in line with the biomass burning contributions derived from measurements in this project based on the TROPOS approach. They are less well in line with the biomass burning contributions resulting from the widely used Sandradewi (2008) approach, except for summer. For the urban background station Nansenstraße, the contribution of residential combustion is overestimated, but correlations are good. For the stations Buch and Amrumer Straße the model performance was good and also modelled biomass burning fractions corresponded well with those derived from the observations.

Figure Z- 6: Modelled annual mean concentration in surroundings of Frankfurter Allee, combination of LASAT and LOTOS-EUROS for Berlin Campaign



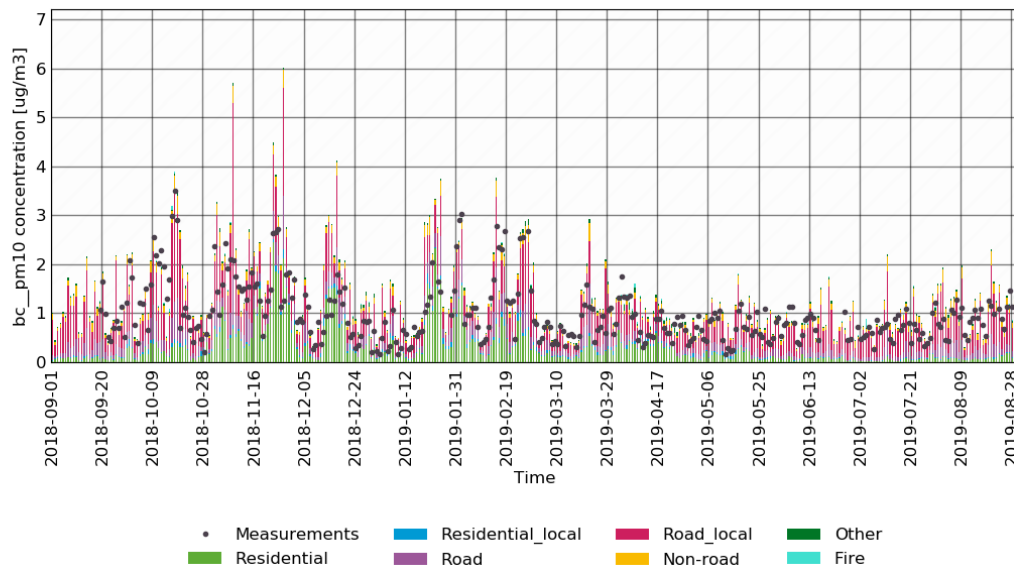
Source: IVU

Table Z- 3: Evaluation of modelled concentrations of the LASAT with background concentrations of LOTOS-EUROS for the measurement campaign in Berlin

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | RMSE | R ² |
|-------------------|----------|----------|------|------|----------------|
| Amrumer Straße | 0.52 | 0.80 | 0.28 | 0.52 | 0.60 |
| Nansenstraße | 0.59 | 0.89 | 0.30 | 0.56 | 0.57 |
| Buch | 0.44 | 0.54 | 0.10 | 0.39 | 0.70 |
| Frankfurter Allee | 0.98 | 1.30 | 0.32 | 0.68 | 0.51 |

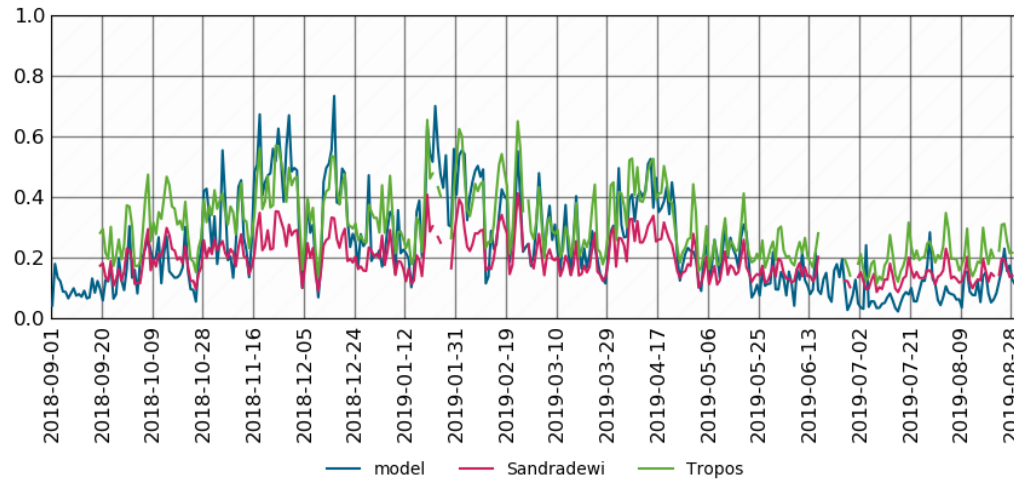
Figure Z- 7: Modelled source contribution of the combined LOTOS-EUROS -- LASAT simulations in comparison to observations for the traffic station Frankfurter Allee, daily mean values. Local contributions stem from the microscale simulation with MISKAM/LASAT. In the bottom the estimated biomass burning contributions from the combined model and the measurement campaign are shown (Sandradewi and new 'TROPOS' approach)

MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]



BBfraction MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]

Daily values



Source: TNO

Final conclusions and recommendations

The review of the emission factors has resulted in the recommendation to increase emissions factors for residential combustion (NFR sector 1A4bi) from 77 to 100 g/GJ and to increase the BC fraction of the reported PM_{2.5} emissions for this sector from 10% to 30%. For break and tyre wear (NFR sector 1A3bvi) a reduction of the BC emission fraction was suggested (from 26% to 2.3% for break wear and from 24% to 0.37% for tyre wear). In addition the proxies for distribution in time and space of BC emissions were revised, resulting in a new spatial distribution of emissions for agricultural machinery (NFR sector 1a4cii) and residential combustion as well as new time profiles for traffic (NFR sector 1A3b) and agricultural machinery.

The project resulted in the following recommendations for the spatial distribution of BC emissions:

1 agricultural transport (NFR sector 1A4cii)

Distribution across counties by CLC class land area weighting

12 irrigated arable land

13 permanently irrigated land

20 complex cultivation patterns

21 land principally occupied by agriculture, with significant areas of natural vegetation.

Within municipalities distribution based on polygon areas of CLC land cover.

2. Residential combustion (NFR sector 1A4biNFR)

Distribution by region according to Mantau and Sörgel (2006). Within regions allocation to forest area (CLC) and population density (CAMS approach). Total emissions per municipality are distributed equally across classes CLC111 (continuous urban fabric) and CLC112 (discontinuous urban fabric) based on polygon areas of CLC land cover.

The proposed alterations in emission factors for residential combustion and to a lesser extent the reduction of BC from brake and tyre wear have resulted in a much better agreement between modelled and observed BC concentrations for Germany. Also the proposed changes in spatial distribution of emissions in residential combustion and agricultural machinery have led to more concentrations that better correspond to the measurements.

For residential combustion, part of the emissions could be due to recreational use of wood stoves, which is not reflected in the time profiles. In the Netherlands, questionnaires are used to investigate the amount of wood used for domestic combustion. This method could be used as a supplement to the methods currently in use in Germany and contribute to knowledge about regional differences in residential burning practices. A few episodes could not be captured by the model, they are potentially related to agricultural waste burning events in the Czech Republic.

The labeling approach of LOTOS-EUROS was a useful approach in the process of identifying source contributions throughout all scenario simulations and provide feedback on emission sources. With the final emission set, the long-term average concentration maps for BC in Germany show maximum concentrations of about 1.5 µg/m³ at non-traffic locations. Evaluation of the modelled concentrations with observations was however difficult and had limitations due to uncertainties in BC values derived from MAAP and Aethalometer optical measurements. This points at the importance of deriving observation-site specific conversion factors per location like

was done in the current study for Berlin. In addition, parts of Germany were not covered at all by observations. This means that our emission and concentration representation is not validated over large parts of the country, which is a limitation of the current study. This holds in particular for the federal states Bayern and Baden-Württemberg in the south and for Niedersachsen, Schleswig-Holsten and Mecklenburg-Vorpommern in the north.

It is therefore recommended to extend the measurements of BC to other locations, especially in the south of Germany where background BC concentrations are expected to be the highest. The current results have also shown the importance of calibrating optical BC measurements with EUSAAR2 reference EC measurements. If it is not feasible to install long-term measurement stations with MAAP or Aethalometer instruments, at least a campaign similar to that for Berlin for one of the major cities and their environment (e.g. Stuttgart, Munich) would be highly relevant.

The Berlin case study has shown that with the approach used to combine regional-scale background concentrations from LOTOS-EUROS with microscale calculations from MISCAM/LASAT, the observed temporal variability in BC concentration could be well reproduced in terms of absolute levels, variability and source contributions. In addition, the case study has shown the importance of using local factors to derive eBC concentrations from Aethalometer optical measurements. The same holds for using the standardized Sandradewi (2008) approach to derive biomass burning fraction. A tailored approach for the Berlin campaign measurements led to higher biomass burning contributions derived from the observations. With these higher biomass burning contributions, the modelled values were much better in line with the observations.

In the final results of this project, good consistency was reached between modelled concentrations using revised BC emissions and observations. Inherent uncertainties in emissions and measurements were thus reduced. , This leads to the conclusion that the three-pillar approach that was used here, with close collaboration between the experts on emissions, observations and modelling is not only fruitful but essential in order to derive the best possible description of emission sources and concentration distribution for BC in Germany,

1 Einleitung

Black Carbon (BC, oder Schwarzer Kohlenstoff) ist eine Feinstaubkomponente, die mit erhöhter Sterblichkeit durch Atemwegs- und Herz-Kreislauf-Erkrankungen, verminderter Lungenfunktion und chronischen Lungenerkrankungen in Verbindung gebracht wird. Darüber hinaus absorbiert BC Sonnenstrahlung und beeinflusst damit den Strahlungshaushalt der Atmosphäre und damit Wetter und Klima. BC entsteht bei der unvollständigen Verbrennung von fossilen und biogenen Brennstoffen und ist oft mit schädlichen Verbindungen wie polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen verbunden. Es ist überwiegend in der PM_{2,5}-Fraktion des Feinstaubs enthalten. Wichtige Quellen in Deutschland sind Hausbrand (Holzverbrennung) und Verkehr. Obwohl es keine europäischen Grenzwerte für BC gibt, wird es unter der neuen NEC-Richtlinie (2016/2284/EU) als einer der prioritären zu behandelnden Luftschadstoffe angesehen und es wird angeregt, über BC-Emissionen zu berichten.

Das Hauptziel dieses Projekts ist es, **die Beschreibung der Emissionsquellen und der Konzentrationsverteilung für BC/EC in Deutschland durch eine kombinierte Auswertung von Messdaten und Modellierungsergebnissen zu verbessern.**

Zwischenziele um dies zu erreichen sind

1. Verbesserung der von Deutschland berichteten sektorspezifischen Jahresgesamtemissionen zum Zweck der Modellierung von BC/EC auf Basis aktueller wissenschaftlicher Erkenntnisse
2. Verbesserung der räumlichen Verteilung der Emissionen
3. Erstellung einer flächendeckenden Karte der Immissionsbelastung von BC
4. Untermauerung der optimierten Emissionsverteilung für Hausbrand und Verkehr durch einen Vergleich von eigenen Messungen mit mikroskaligen Modellrechnungen.

1.1 Relevanz von Black Carbon

Es ist wichtig zu erkennen, dass es für Black Carbon keine strenge Definition gibt. Wir beginnen diese Einführung mit einer Beschreibung von Black Carbon aus Bond et al. (2013). "Schwarzer Kohlenstoff ist eine bestimmte Art von kohlenstoffhaltigem Material, das sich hauptsächlich in Flammen bildet, direkt in die Atmosphäre emittiert wird und eine einzigartige Kombination von physikalischen Eigenschaften aufweist. Er absorbiert stark sichtbares Licht, ist feuerfest, mit einer Verdampfungstemperatur nahe 4000K, existiert als Aggregat kleiner Kugeln und ist unlöslich in Wasser und üblichen organischen Lösungsmitteln. Die wichtigsten Emissionsquellen sind Dieselmotoren, die Industrie, feste Brennstoffe in Haushalten (z.B. Kohle, Biomasse) und offene Verbrennung".

Die Relevanz für die Atmosphäre liegt in der Gesundheits- und Klimawirkung von BC. Es hat sich gezeigt, dass elementarer Kohlenstoff (eng verwandt mit BC, siehe weiter unten in dieser Übersicht) ein besserer Prädiktor für gesundheitliche Auswirkungen ist als undifferenziertes PM_{2,5} für kurzfristige Effektstudien (WHO et al., 2012). Darüber hinaus wirkt Black Carbon als Treibhaus-Aerosol und reduziert die Albedo von Schnee. Der gesamte globale Beitrag von schwarzem Kohlenstoff zum Strahlungsantrieb wurde auf $+1,1 \text{ W m}^{-2}$ geschätzt (Bond et al., 2013). Damit ist BC nach CO₂ die wichtigste Erwärmungskomponente. Um die Ergebnisse in die richtige Perspektive zu stellen: Der gesamte globale Effekt aller Aerosolarten auf den atmosphärischen Antrieb, ohne EC auf Schnee, wird als kühlender Effekt geschätzt ($-0,9 \text{ W m}^{-2}$)

(Boucher et al., 2013; Myhre et al., 2013). Aus diesem Grund ist es, obwohl der Beitrag einer bestimmten Art quantifiziert werden kann, wichtig, die Auswirkungen einer bestimmten Quelle in Bezug auf alle ihre emittierten Arten abzuschätzen.

Die negativen Auswirkungen von schwarzem Kohlenstoff auf die Gesundheit und die globale Erwärmung haben ihn zu einer der Zielarten für die Climate and Clean Air Coalition (CCAC) gemacht. Black Carbon ist Teil der neuen NEC-Richtlinie (2016/2284/EU) geworden: Länder sollen BC-Emissionen, wenn möglich, melden und in ihre informativen Inventarberichte aufnehmen. Sie sollten Maßnahmen, die BC-Emissionen reduzieren, in ihren Plänen zur Reduzierung von PM-Emissionen Priorität einräumen. Für eine ausführliche Diskussion aller Aspekte des globalen Black Carbon Budgets verweisen wir auf Bond et al. (2013). Ein Dokument mit Empfehlungen für politische Entscheidungsträger ist (IASS, 2017), die Hauptaussagen sind:

1. Emissionen der Transportsektor (Diesel) und Hausbrand sollten gezielt reduziert werden.
2. Es sollten nationale BC Emissionsinventare unter Verwendung einer einheitlichen Methodik erstellt werden.

Bei der Erstellung von politischen Entscheidungen sollten Luftqualität und Klimawandel im Zusammenhang betrachtet werden, um zu einer optimalen Koordination von Maßnahmen zu kommen.

Um zu einer flächenhaften Beschreibung der BC Konzentration zu kommen, eignen sich Modelle, die basierend auf Emissionsinventaren die Ausbreitung dieses Schadstoffes berechnen können. Die modellierten Konzentrationen sollten mit Messungen validiert werden. Kenntnisse der Emissionen, Modellierung und Messungen sollten integriert verwendet werden, um zu einer optimalen Beschreibung der Rußkonzentrationen zu kommen. Verschiedene Techniken zur Quellenzuordnung können helfen, beobachtete Konzentrationen mit den beitragenden Quellen zu verknüpfen. Es ist zu beachten, dass schwarzer Kohlenstoff und elementarer Kohlenstoff zwar eng miteinander verwandt, aber streng genommen nicht austauschbar sind, so dass Modellierungsstudien und Messungen von BC nicht immer direkt vergleichbar sind. Verschiedene Messverfahren liefern unterschiedliche Ergebnisse. Optische Absorptionsmethoden zielen auf die Schwärze des Materials ab und liefern Black-Carbon-Konzentrationen, während thermooptische Methoden zwischen elementarem Kohlenstoff und organischem Kohlenstoff unterscheiden. Bei der Betrachtung von Beobachtungen, Emissionen und Konzentrationen ist es daher immer notwendig, zwischen EC und BC zu unterscheiden (siehe Petzold et al 2013, Bond et al 2013). Dies spielt auch in der vorliegenden Studie eine wichtige Rolle, die später in diesem Bericht an den relevanten Stellen erläutert wird.

1.2 Projektablauf

Im ersten Schritt wird eine Literaturrecherche durchgeführt. In Abschnitt 2 und 3 wird der Sachstand für Emissionen und Modellierung beschrieben. Zunächst folgt die Bewertung der deutschen Emissionen von BC wie vom Umweltbundesamt für die Berichterstattung im Rahmen der Genfer Luftreinhaltekonvention erstellt werden. Die Bewertung wird auf Basis einer Literaturrecherche und Konsultation von Emissionsexperten vorgenommen und in Abschnitt 4 vorgestellt. Auf der Grundlage der Auswertung wird eine erste Aktualisierung der Emissionen für BC vorgeschlagen.

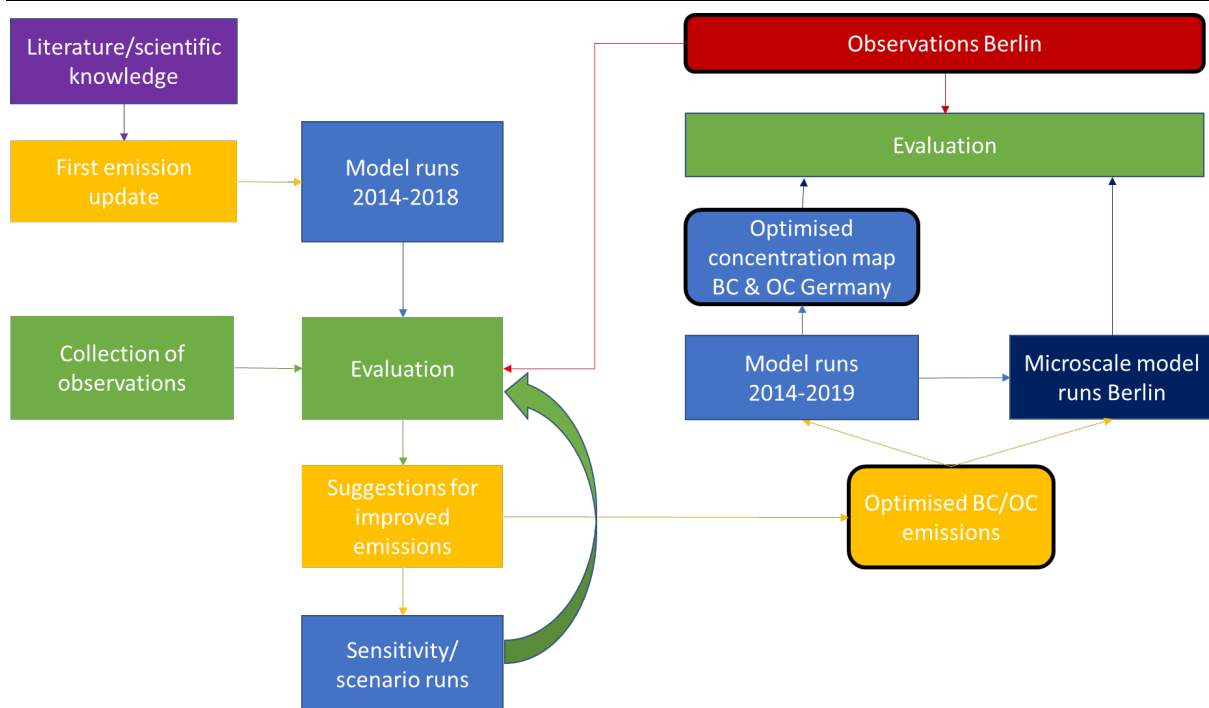
Parallel dazu wird eine Messkampagne in Berlin durchgeführt (September 2018-September 2019). Es werden vier Aethalometer an urbanen Hintergrundstationen und an einer verkehrsbelasteten Station aus dem BLUME (Senat Berlin, 2020) Messnetz installiert. Zusätzlich

werden an den gleichen Stationen EC/OC Filtermessungen genommen, um die optischen Messungen von BC zu kalibrieren. Die Messungen werden verwendet um die lokale BC Belastung zu untersuchen und um die Modellläufe der Studie (Hintergrund + Mikroskala) zu validieren. Es werden nicht nur BC Werte verglichen, sondern auch der Beitrag von BC aus Biomasseverbrennung (Hausbrand als wichtigste Quelle) separat von Verbrennung von fossilen Brennstoffen (Verkehr als wichtigste Quelle) betrachtet.

Das regionale Eulermodell LOTOS-EUROS wird eingesetzt, um Konzentrationen von BC mit einer Auflösung von $\sim 5 \times 5 \text{ km}^2$ zu simulieren. Dabei wird BC als inerter Stoff ohne chemische Umwandlungen oder Interaktion mit sonstigen Stoffen ausser Deposition durch Wolken und Regen betrachtet. In einem ersten Schritt werden Simulationen unter Verwendung der UBA-Basisemissionen und der ersten Aktualisierung der Emissionen durchgeführt. Das Modell wird mit Quellenzuordnung betrieben, um eine detaillierte Bewertung und erste Szenariotests zu ermöglichen (Abschnitt 7.2). Daten zur Evaluierung stammen aus den verschiedenen Messnetzen der Bundesländer und UBA.

Die Ergebnisse dieser regionalen Modellläufe werden in Abschnitt 7 vorgestellt. Die Auswertung der Modellläufe und erste Szenariotests sollen zu Vorschlägen für weitere Verbesserung der Emissionen führen. Diese Emissionsszenarien werden in Modellläufen für 2017 angewendet und evaluiert. Aufgrund dieser Evaluierung wird eine finale Emissionsdarstellung in Raum und Zeit abgeleitet. Mit diesen Emissionen wird die bestmögliche Darstellung der langjährigen Immissionsbelastung in Deutschland als flächendeckende Karte simuliert, sowie eine hochaufgelöste ($2 \times 2 \text{ km}^2$) Simulation für Deutschland über das Jahr der Messkampagne erstellt. Diese hochaufgelöste Simulation wird mit mikroskaligen Rechnungen mit dem Lagrang'schen Modell LASAT kombiniert, um in vier Gebieten in Berlin im direkten Umfeld der Messstationen die BC Belastung zu simulieren. Es bietet sich dadurch auch die Möglichkeit, eine Validierung des kombinierten Modells für Hintergrundbelastung aus LOTOS-EUROS und quellennahe Zusatzbelastung aus LASAT durchzuführen.

Abbildung 1: Schematische Darstellung des Projektablaufes



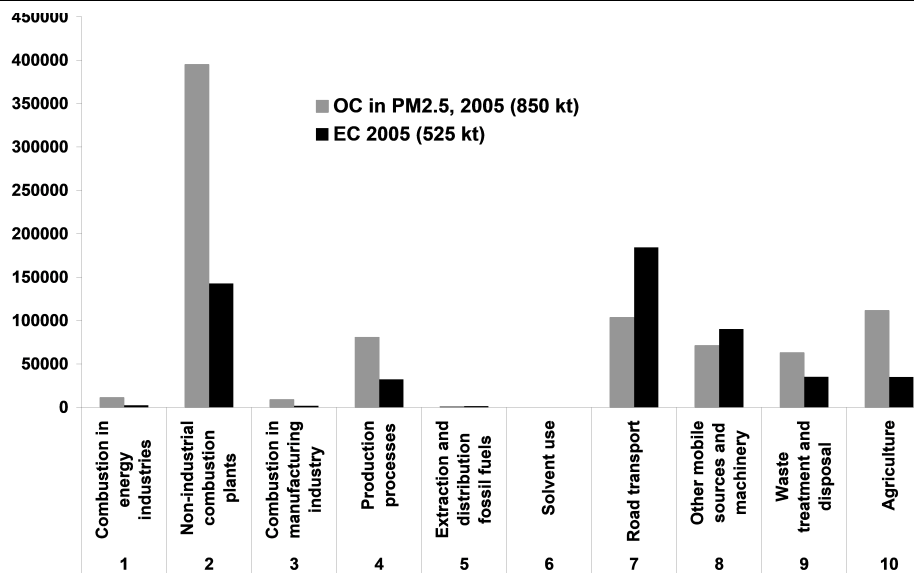
Quelle: TNO

2 Black Carbon Emissionsinventare

Es gibt zwei grundlegende Verfahren für die Erstellung von Kohlenstoff-Emissionsinventaren. In "Bottom-up"-Inventaren werden Emissionsfaktoren einzelner Komponenten mit Aktivitätsdaten basierend auf Messungen verknüpft. In "Top-down"-Inventaren werden die offiziell gemeldeten PM-Emissionen auf die verschiedenen PM-Komponenten verteilt, basierend auf der Aufteilung zwischen BC, organischem Material (OM) und anderen Primärpartikeln. Anhand von Anteilen in dieser Verteilung wird die volle molekulare Masse (organischer Kohlenstoff mit verknüpften Sauerstoff- und Wasserstoffmolekülen) berücksichtigt, und nicht reiner organischer Kohlenstoff (organic carbon, OC) wie bei der thermischen Messmethode. Es gibt keinen konstanten Faktor zwischen OM und OC, da das Verhältnis von der Quelle und der Oxidation in der Atmosphäre abhängig ist. Aufgrund der methodischen Unterschiede zwischen den beiden Ansätzen sind die kohlenstoffbezogenen Bottom-up- und Top-down-Inventare im Allgemeinen nicht konsistent.

Es hat eine Reihe von Bemühungen gegeben, Emissionsinventare für EC und OC zu entwickeln. Bond et al. (2004) beispielsweise lieferten globale BC- und OC-Emissionsschätzungen für das Jahr 1996, die später auf das Jahr 2000 aktualisiert wurden (Bond et al., 2013). Eine der ersten europaweiten Bestandsaufnahmen von EC und OC wurde von Visschedijk et al. (2009) veröffentlicht. Abbildung 2 zeigt die Emissionen von EC und OC (ausgedrückt als volle Molekülmasse, d.h. als organisches Material) im Jahr 2005, aufgeschlüsselt nach Hauptquellen. Abbildung 2 zeigt, dass für EC Hausbrand und der Straßenverkehr die Hauptquellen sind. Für organischen Kohlenstoff spielen die Emissionen aus Kleinfeuerungsanlagen die entscheidende Rolle, da das OC-EC-Verhältnis im Straßenverkehr viel kleiner ist

Abbildung 2: EC und OC Emissionen in 2005 in Europa



Quelle: Visschedijk et al., 2009

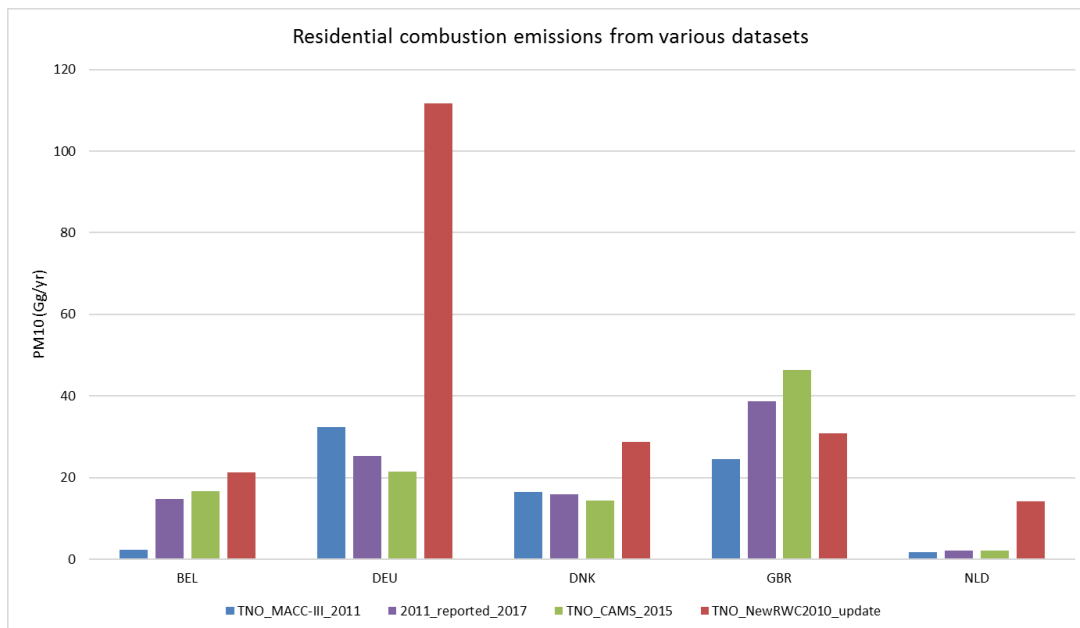
Kondensierbare Gase

In der Studie von Visschedijk et al. (2009) wurden EC- und OC-Anteile aus PM aus einer Vielzahl von Literaturquellen zusammengestellt und auf das konsistente "bottom-up" PM-Emissionsinventar des GAINS-Modells (Amann, 2009) angewendet. Die Verwendung des erweiterten GAINS-Inventars im Rahmen des FP6-Projekts EUCAARI der Europäischen Union zeigte erhebliche Mängel in der EC/OC-Massenbilanz in stark holzbefeuerten Regionen. Es wurde vermutet, dass dies durch halbflüchtige organische Aerosole verursacht wird, die sich aufgrund der Verdünnung und Abkühlung des Rauchgases oder der Abgase fast augenblicklich bilden. Für die offizielle Emissionsberichterstattung entscheidet jedes europäische Land selbst, ob es diese halbflüchtigen Bestandteile (kondensierbare Stoffe) in die Emissionen miteinschießt, oder nicht. Denier van der Gon et al. (2015) betrachteten die Holzverbrennung genauer und erstellten ein Bottom-up EC / OC-Inventar für Kleinf Feuerungsanlagen einschließlich der kondensierbaren Stoffe, das dann mit Ergebnissen aus Luftqualitätsmodellierung und Messungen für EC (Genberg et al., 2013) und OC (Denier van der Gon et al., 2015) verglichen wurde.

veranschaulicht die großen Unterschiede bei den PM₁₀-Emissionen aus Hausbrand zwischen den verschiedenen Inventaren. Die folgenden Inventare werden berücksichtigt.

1. TNO-MACC-III 2011: Dies ist die Standard-TNO-MACC-Datei, die in den vergangenen Jahren in vielen regionalen Modellierungsstudien verwendet wurde; die nationalen Daten wurden 2013 (Jahr der Berichterstattung) heruntergeladen. Eine allgemeine Beschreibung des Ansatzes wird in Kuenen et al., (2014) gegeben.
2. CAMS_2015_reported 2017 Das CAMS Inventar aus 2018 ist der Nachfolger von TNO-MACC; enthält aktuelle offizielle Emissionsdaten der Länder für 2000-2015 wie berichtet im Jahr 2017.
3. CAMS_2011_reported_2017: Diese Datei stammt aus dem CAMS inventar aus 2018 ist konsistent mit #2 und enthält die neuesten offiziell berichteten Daten für 2011. Sie kann zum Vergleich mit TNO-MACC-III verwendet werden - dies spiegelt die Änderungen der Emissionsberichterstattung zwischen 2013 und heute wider.
4. TNO-newRWC_2011: Diese Datei stimmt mit CAMS_2011_reported_2017 überein, aber SNAP2 (Holzverbrennung in Wohngebäuden) wurde durch die von TNO bottom-up geschätzte SNAP2 Emission nach dem in Denier Van Der Gon et al. (2015) veröffentlichten Ansatz ersetzt.

Abbildung 3: Emissionsdatensätze für ausgewählte Länder BEL DEU DNK GBR NLD. Hinweis: CAMS_2011_reported_2017 und CAMS_2015_reported 2017 sind in der Methodik konsistent; der Unterschied ist auf jährliche Schwankungen und/oder Änderungen der technischen Anwendungen zurückzuführen.



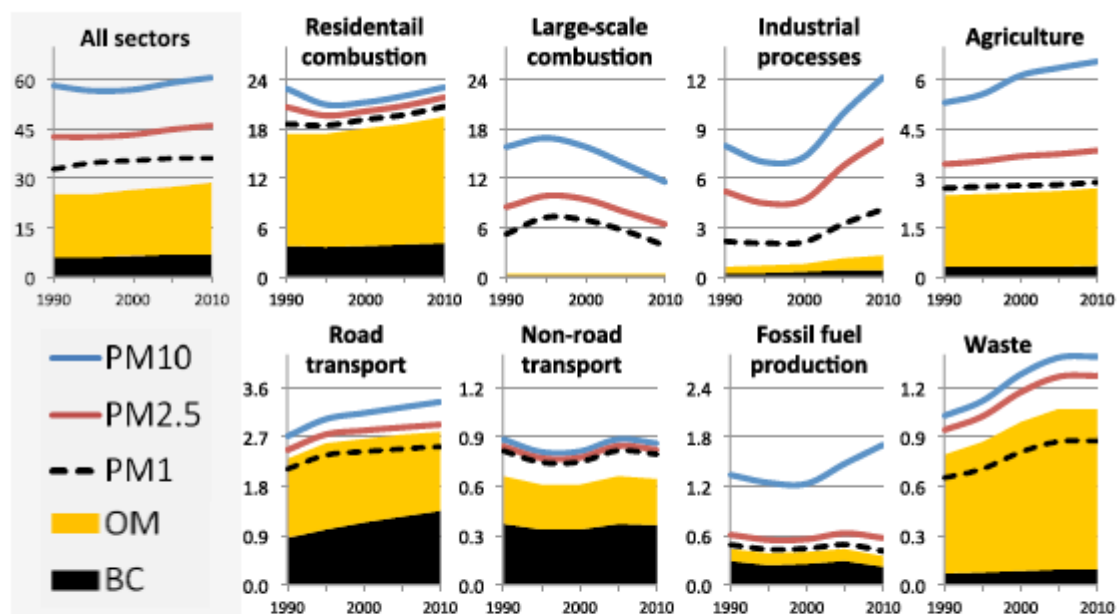
Quelle: TNO.

Der Hauptunterschied wird durch die Einbeziehung oder den Ausschluss von kondensierbarem PM als Teil der Primäremissionen verursacht. Zum Beispiel werden für Belgien und Deutschland große Unterschiede gefunden durch einen inkonsistenten Ansatz. Bis vor kurzem bezog Belgien kondensierbares PM nicht in seine Emissionsberichterstattung ein, was die relativ niedrigen Emissionen im TNO-MACC-2011-Inventar erklärt. Später passte Belgien jedoch seine Methodik an und bezog kondensierbares PM mit ein, wie der Anstieg der 2011 gemeldeten Emissionen im Jahr 2017 zeigt (lila). Das Inventar einschließlich kondensierbarer Stoffe (roter Balken) ist immer noch etwas höher als das auf Basis der offiziellen Berichterstattung. Dies kann verschiedene Gründe haben, wie z. B. ein anderes Jahr, bessere Aktivitätsdaten und Informationen über Gerätetypen in den Länderdaten. Es könnte aber auch auf eine Untererfassung der belgischen Region, wie z. B. Brüssel, zurückzuführen sein, da Belgien ein Sonderfall mit drei verschiedenen offiziell gemeldeten Inventaren ist, die von einer speziellen Agentur (IRCEL) zu einem einzigen zusammengeführt werden. Für Deutschland ist die Situation anders. Die im Jahr 2017 berichteten Emissionen für 2011 (lila Balken) sind niedriger als die im Jahr 2013 berichteten (blauer Balken). Offenbar wurden die Daten für die Aktivität oder den Emissionsfaktor nach unten korrigiert. Die neuen Daten für 2011 (violetter Balken) und 2015 (grüner Balken) stimmen miteinander überein (wie für alle Länder in Abbildung 3), sind aber unterschiedliche Jahre, die sich in ihren Wintertemperaturen unterscheiden können. Der auffällige Unterschied in Abbildung 3 für Deutschland ist die Diskrepanz zwischen dem TNO_newRWC (roter Balken) und den anderen drei Emissionsschätzungen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass kondensierbares PM im offiziellen deutschen Inventar nicht berücksichtigt wird. Technisch gesehen ist dies weder richtig noch falsch, weil es eine Entscheidung ist, die bei der Inventarisierung getroffen wurde. In der Studie von Denier Van Der Gon et al. (2015) wurde ermittelt, dass die Einbeziehung von kondensierbarem PM die PM10-Emissionen in Deutschland um mehr als den Faktor 4 erhöhen würden.

PM split

Für Top-down-Emissionsinventare müssen die gesamten PM-Emissionen auf die verschiedenen Komponenten verteilt werden. Der EC/OC-Anteil kann sich für verschiedene Quellsektoren erheblich unterscheiden, wie in Abbildung 4 aus Klimont et al. (2017) zu sehen ist. Verkehrsemissionen haben beispielsweise im globalen Durchschnitt einen viel höheren EC-Anteil als z. B. Emissionen aus der Landwirtschaft und aus Abfällen, obwohl zu beachten ist, dass diese EC/OC-Anteile für Verkehrsemissionen je nach Fahrzeug- und Brennstoff-typ variieren und daher für verschiedene Länder unterschiedlich sein werden.

Abbildung 4: Globale und sektorale Emissionen von PM-Substanzen (Tg) im Zeitraum 1990-2010

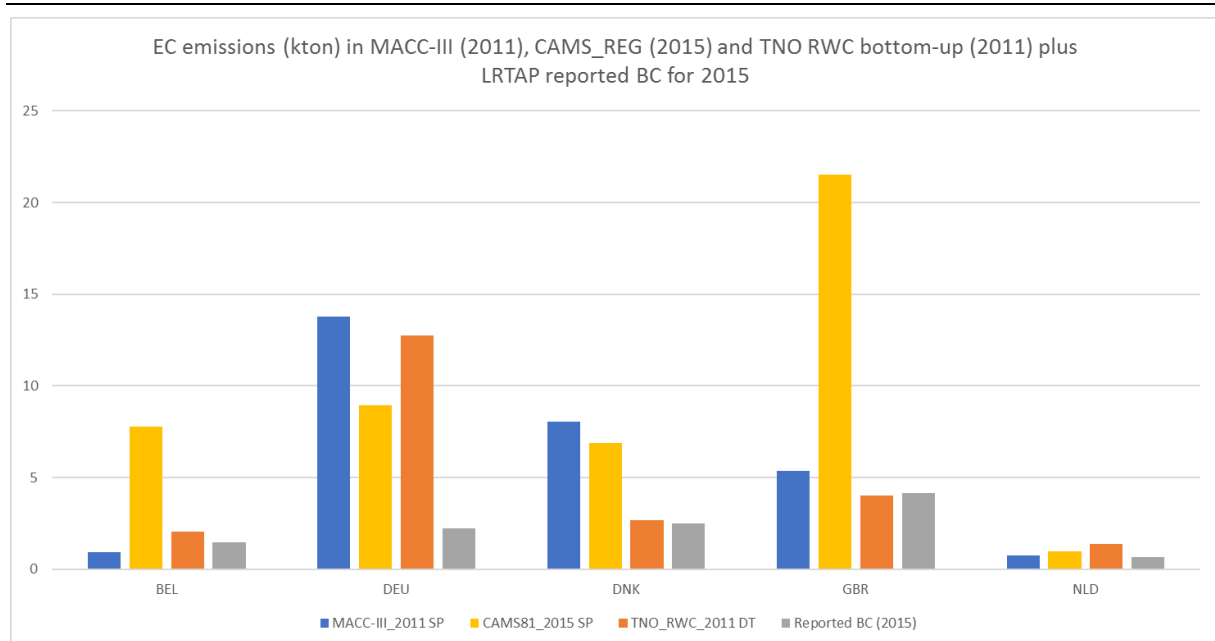


Quelle: Klimont et al., 2017

TNO hat eine sogenannte PM-Splittabelle entwickelt, die Informationen über Quellsektoren und Brennstofftypen nach Land verwendet, um die EC-, OC-, SO_4 -, Alkali-(Na)- und andere mineralische Fraktionen von PM zu schätzen. Dieser PM-Split kann auf die von den Ländern gemeldeten PM-Daten angewendet werden. Zum Beispiel wird ein Land, das mehr Dieselfahrzeuge hat, ein SNAP7-Profil (Straßenverkehr) mit relativ hohem EC-Anteil haben, verglichen mit einem Land mit mehr Benzinfahrzeugen. Bei Hausbrand ist jedoch nicht bekannt, inwieweit die Länder kondensierbare PM einschließen. Das heißt - wir können es vielleicht aus Vergleichen, wie in Abbildung 3 erahnen, aber dies hat keine solide Grundlage. Daher wird in den MACC- und CAMS-Emissionsinventaren für alle Länder der gleiche EC/OC-Split für PM aus der Holzverbrennung verwendet, unabhängig davon, ob ein Land kondensierbare Emissionsfaktoren anwendet oder nicht. Da der kondensierbare Anteil vollständig aus OC besteht, können die Ergebnisse bei Anwendung eines festen Holz-PM-Splits sehr unsicher sein. Ein Vergleich der abgeleiteten EC-Emissionen für 3 Datensätze ist in Abbildung 5 dargestellt. Beachten Sie, dass zum Vergleich auch die an EMEP berichteten BC-Emissionsdaten, wie sie auf der CEIP-Website verfügbar sind, dargestellt sind (graue Balken). Auch hier ist es illustrativ, die

Ergebnisse für Belgien und Deutschland zu vergleichen, um die Auswirkungen zu verdeutlichen. Wie zu sehen ist, stimmt der berichtete BC für einige Länder gut mit dem geschätzten BC überein, wenn der Split des TNO-Bottom-up-RWC-Inventars verwendet wird (z.B. orange und graue Balken für Belgien (BEL), Dänemark (DNK), Großbritannien (GBR)). Wenn der PM-Split auf eine berichtete Emission angewendet wird, die nur aus (größtenteils) festem PM besteht (z. B. die TNO-MACC 2011-Daten für Belgien, GBR, NLD), liegt der geschätzte BC/EC nahe an dem berichteten BC. Der Grund für die niedrigen berichteten BC-Werte von Deutschland im Vergleich zur Anwendung des PM-Splits auf das MACC- oder CAMS-Inventar war nicht bekannt. Die Anwendung des PM-Splits auf ein Land, das Emissionen einschließlich kondensierbarer Stoffe meldet, führt zu einer erheblichen Überschätzung der EC/BC-Emission (siehe die gelben Balken in Abbildung 5 für z.B. Belgien und Großbritannien). Es ist daher entscheidend zu wissen, ob kondensierbare Stoffe enthalten sind oder nicht, um realistischen Splits für die Zuordnung der PM-Emissionen zu EC und OC anwenden zu können.

Abbildung 5: Ableitung von EC-Emissionen für den Hausbrandsektor durch Anwendung eines PM-Splits auf MACC- und CAMS-Emissionsdaten, Berechnung von EC aus dem Bottom-up-Inventar von TNO-newRWC und Berichterstattung von BC an EMEP (direkt heruntergeladen von CEIP webdab)



Quelle: TNO

Emissionsfaktoren

Bei der Erstellung von Bottom-up-Inventaren benötigt man Informationen über die Standorte und Intensitäten von Aktivitäten (z. B. Verbrennung von Pelletöfen) und deren jeweilige Emissionsfaktoren. Die Emissionsfaktoren sind stark von der Quelle abhängig und stehen idealerweise für sehr detaillierte Quellenkategorien zur Verfügung. So reicht es z.B. nicht aus, einen Faktor für den Straßenverkehr zu haben, sondern Faktoren differenziert nach Fahrzeugtyp (Pkw, Lkw, ...) und Brennstoffart (Benzinversus Diesel) berücksichtigt werden.

Auch für die Beheizung von Wohngebäuden gibt es viele verschiedene Arten von Öfen und Brennstofftypen, die alle ihre eigenen Emissionsfaktoren haben.

Die Emissionsfaktoren können sich aufgrund von Änderungen der Brennstofftypen oder von Maßnahmen zur Emissionsreduzierung (z. B. Filter in Autos) ändern. Klimont et al. (2017) zeigen beispielsweise, dass sich innerhalb eines 20-jährigen Untersuchungszeitraums (1990-2010) die Emissionsfaktoren für verschiedene Quellen erheblich verändert haben. In Europa sind die Emissionsfaktoren für die Holzverbrennung in Wohngebäuden gesunken, und zwar um 40 % für PM und 20 % für BC, was auf die Zunahme effizienter Pelletöfen und -kessel zurückzuführen ist. Die BC-Emissionsfaktoren für Dieselfahrzeuge im Straßenverkehr sind sowohl für Lastkraftwagen als auch für leichte Fahrzeuge um 60 % oder mehr gesunken.

Speziell für die Holzverbrennung als Hauptquelle der primären Partikelemissionen in Europa wurden in den letzten Jahren zahlreiche Messstudien durchgeführt, um die Variation der PM-Emissionsfaktoren für verschiedene Holzarten und Verbrennungseigenschaften zu verstehen und zu quantifizieren (z. B. Amato et al., (2016)) . Die Unsicherheit in den Emissionsfaktoren ist groß, wie in Abbildung 6 zu sehen ist. Dies ist eine Tabelle aus Klimont et al. (2017), die die verschiedenen Emissionsfaktoren aus mehreren Studien für Holzöfen für Wohngebäude zusammenfasst. Die Reduzierung der Emissionen für Pelletöfen im Vergleich zu anderen Systemen ist offensichtlich, aber auch die Bandbreite der Emissionsfaktorschätzungen innerhalb eines Kaminofentyps ist deutlich. Auch der Anteil zwischen BC und OC variiert stark zwischen verschiedenen Studien. Um die Ursachen für diese Unterschiede zu verstehen, sind Informationen über die zur Ermittlung der Werte verwendeten Methoden erforderlich.

Abbildung 6: Zusammenfassung der PM-Emissionsfaktoren für Holzverbrennungsanlagen für Wohngebäude mit Anteilen an der emittierten Gesamtpartikelmasse (Share)

| Emission factors (mg/MJ) | | | Shares (%) | | Reference |
|--|-----------------------|---|------------|-------|---|
| PM | BC | OC | BC | OC | |
| traditional | | | | | |
| 673-1373 | 24-72 | 263-623 | 2-7 | 39-53 | (Alves et al., 2011) |
| 300-1400 | - | - | 2-9 | 35-50 | (Gonçalves et al., 2011) incl. cold start |
| 90-900 | - | - | 2-9 | 35-48 | (Gonçalves et al., 2011) incl. hot start |
| 750-1060 | - | - | - | - | (Jordan and Seen, 2005), full airflow |
| 1560-1700 | - | - | - | - | (Jordan and Seen, 2005), half airflow |
| 1870-3000 | - | - | - | - | (Jordan and Seen, 2005), closed airflow |
| 128-400 | 20 | 157 | 8 | 64 | (McDonald et al., 2000) |
| - | 39-43 | 70-390 | 5-14 | 47-67 | Studies in Kupiainen& Klimont (2007) |
| 150 ^a - 930 (2400) ^b | 32 ^a - 100 | 60 ^a - 435 (1200) ^b | 4-22 | 41-50 | GAINS; the PM value represents PM2.5 |
| improved | | | | | |
| 22-180 | - | - | - | - | (Boman et al., 2008) |
| 86-105 | 9-11 | 52-58 | - | - | (Fine et al., 2004) |
| 130 | 88 | 39 | 68 | 30 | (Gaegauf et al., 2005) |
| 60-160 | - | - | 11-37 | 20-43 | (Gonçalves et al., 2010) |
| 75-97 | 15-28 | 17-35 | 24-32 | 27-39 | (Schmidl et al., 2011) |
| 38-350 | - | - | - | - | (Pettersson et al., 2011) |
| - | 56-79 | 11-16 | - | - | Studies in Kupiainen& Klimont (2007) |
| 55 ^a - 372 | 30 ^a - 95 | 11 ^a -133 | 25-55 | 19-35 | GAINS; the PM value represents PM2.5 |
| new | | | | | |
| 67-122 | 13-15 | 43-67 | - | - | (Fine et al., 2004), catalytic |
| 72-89 | 21-33 | 16-32 | 30-37 | 22-36 | (Schmidl et al., 2011) |
| 30 ^a - 186 | 9 ^a - 30 | 8 ^a - 67 | 18-30 | 28-35 | GAINS; the PM value represents PM2.5 |
| pellet | | | | | |
| 10-66 | - | - | - | - | (Boman et al., 2008) |
| 15-47 | - | - | - | - | (Boman et al., 2011) |
| 17 | 0.7 | - | 4 | - | (Frey et al., 2014) |
| 20 | 0.1 | 0.9 | 0.5 | 5 | (Lamberg et al., 2011b) |
| 3-29 | 0-14 | 0.1-3 | 0-51 | 2-11 | (Lamberg et al., 2011a) |
| - | - | - | 14 | 11 | (Schmidl et al., 2011) |
| 47-129 | 0.5-1.3 | 0.3-5.2 | 1-2 | 1-9 | (Sippula et al., 2007) |
| 10 ^a - 47 | 1.3 ^a - 4 | 2 ^a - 7 | 10-17 | 12-17 | GAINS; the PM value represents PM2.5 |

^a The lowest values represent Swiss data

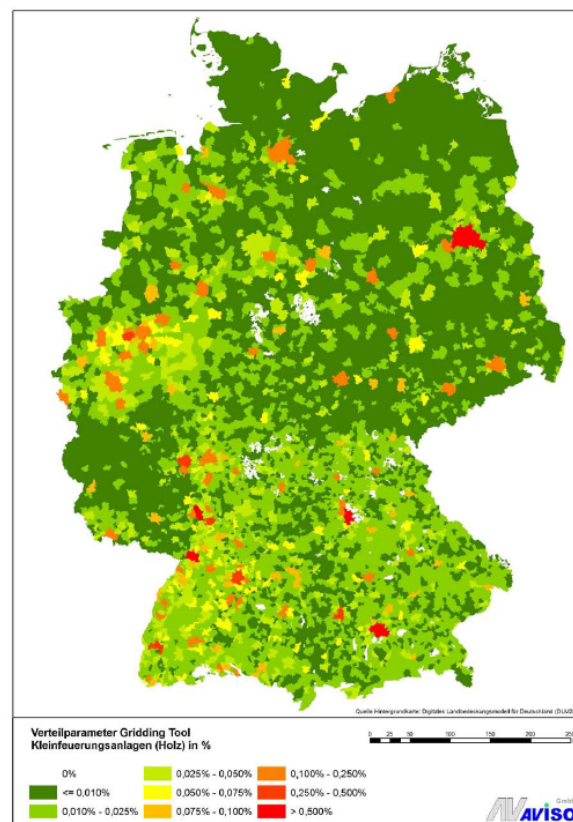
^b Norwegian wood stove

Quelle: Klimont et al (2017)

Räumliche Verteilung

Nicht nur die Gesamtmasse der emittierten PM und die zugehörigen EC/OC-Fractionen, sondern auch die räumliche Verteilung der Emissionen ist wesentlich für die Bestimmung der Schadstoffbelastung. Räumlich aufgelöste PM_{2,5}- und PM₁₀-Emissionsdaten wurden von Deutschland im Rahmen der neuen NEC-Richtlinie an die EU gemeldet; sie umfassen sechs verschiedene Jahre (1990 bis 2015 in 5-Jahres-Intervallen), wobei nur die Emissionen von 2015 verpflichtend waren. Die verwendete Methode ist im aussagekräftigen Inventarbericht Deutschlands (UBA, 2018) nachvollziehbar beschrieben. Es wurde ein Softwaretool (GRETA) entwickelt, das es dem Umweltbundesamt ermöglicht, räumlich aufgelöste Emissionsdaten zu generieren, die als Input für die Ausbreitungsmodelle von Luftschadstoffen dienen können (siehe Abbildung 7). Damit können Rasterkarten gemäß den Anforderungen der Genfer Luftreinhaltekonvention und der neuen NEC-Richtlinie ausgewiesen werden. In den GAINS und den MACC/CAMS Inventaren, werden die Emissionen auf regelmäßigen Gitter anhand von Proxies, wie der Bevölkerungsdichte und den Standorten von Punktquellen (e.g. Kuenen et al., 2014), verteilt.

Abbildung 7: Räumliche Verteilung von Kleinfeuerungsanlagen in GRETA



Quelle: UBA, 2016

3 Methoden der BC Modellierung

3.1 BC, Partikelanzahl und Partikelgröße

Ein chemisches Transportmodell, das die Meteorologie berücksichtigt, stellt die Verbindung zwischen Emissionen und Konzentration her. BC wird in den meisten Luftqualitätsmodellen als passiver Tracer betrachtet. Unter den meisten Umständen ist dies gerechtfertigt, wenn die PM-Größenverteilung realistisch gewählt wird. Insbesondere BC aus dem Straßenverkehr wird als ultrafeine Partikel (kleiner als 100 nm) freigesetzt. Die Anzahl und Größe der Partikel kann sich in unmittelbarer Nähe der Quelle durch Koagulation und Kondensation von Gasen schnell ändern (Ketzel und Berkowicz, 2004), aber die BC-Masse ändert sich nicht. Es gibt mehrere Studien, die sich mit der Beschreibung der Partikelanzahl und -größe im Zusammenhang mit Ruß beschäftigen (siehe z. B. Karl et al., (2016) für eine Analyse des städtischen Straßenverkehrs mit Messungen und einem Modell, das Aerosolprozesse berücksichtigt). Allerdings ist die Unsicherheit über die Depositionsrate für die kleinsten Partikel groß, und wenn statt der Partikelgrößenverteilung und -anzahl die Masse relevant ist, dann ist der traditionelle Ansatz mit nur einigen Partikelgrößenklassen ausreichend. Die meisten mikroskaligen Modelle für ultrafeine Partikel berücksichtigen diese Änderungen nicht explizit (Keuken et al., 2015b; Kukkonen et al., 2016). Eine zusätzliche Schwierigkeit bei der Verwendung eines detaillierten sektionalen Ansatz ist, dass Partikelanzahl und -masse in den Emissionsinventaren nicht gleichzeitig beschrieben werden, da die Messmethoden unterschiedlich sind.

Zunächst werden die relevanten Prozesse und ihrer Unsicherheiten weiter erklärt anhand von Literaturrecherche zu regionalen und lokalen Modellierungsstudien für BC.

3.2 BC Modellstudien in der Literatur

Der Schwerpunkt der durchgeführten Literaturrecherche liegt auf BC-Modellierungsstudien auf regionaler und lokaler Skala. Es wird eine Übersicht über Modellstudien zusammengestellt und die Bewertung und Schlussfolgerungen bezüglich BC zusammengefasst. Darüber hinaus werden neben der besprochenen Literatur die verschiedenen für BC relevanten Prozesse und deren Unsicherheiten diskutiert. Es werden Übersichtstabellen mit Region, Modell, Auflösung, Eingangsdaten (Emissionen, Meteorologie) und Autor angegeben. Dabei wurden nicht nur wissenschaftliche Veröffentlichungen, sondern auch Projektberichte berücksichtigt.

Die systematische Literaturrecherche zur Modellierung von BC wurde in drei Phasen durchgeführt:

- Phase 1: Suche in Literaturdatenbanken,
- Phase 2: Suche auf den Internetseiten der Bundesbehörden, der Umweltämter der Bundesländer und der 10 größten Städte in Deutschland zur Modellierung auf der lokalen Skala
- Phase 3: Internetbasierte Suche.

In Phase 1 wurden folgende Datenbanken berücksichtigt: TNO-Literaturdatenbank, IVU-Literaturdatenbank, UBA Umweltforschungsdatenbank (UFORDAT)¹ und die Datenbank der Dokumentationsstelle Luftverschmutzung und Gesundheit (LUDOK)²

In Phase 2 wurde auf den Internetseiten des UBA, der Bundesanstalt für Straßenwesen (BASt), der Umweltämter der Bundesländer (inklusive Berlin, Hamburg, Bremen) und die zehn sonstigen größten deutschen Städte nach Modellierungen auf lokaler Ebene gesucht.

Schließlich wurde in Phase 3 eine internetbasierte Suche durchgeführt.

3.3 Regionale Skala

Es gibt mehrere regionale Modellierungsstudien von BC über Europa, in denen Chemie-Transport-Modelle verwendet werden, um Emissionen von BC auf atmosphärische Konzentrationen und Deposition zu übertragen. BC wird oft als Teil von PM_{2,5} und PM₁₀ modelliert und aufgrund fehlender Messungen nicht separat ausgewertet. Andererseits wird BC oder EC oft als passiver Tracer betrachtet, was es zu einer relativ einfach zu modellierenden Komponente macht, im Gegensatz zu OC, für das die Sekundärbildung eine wichtige Rolle spielt. Dieser Prozess der sekundären Bildung von OC wird in Modellen immer noch schlecht dargestellt. Eine Übersicht über die Studien ist in Tabelle 3 dargestellt und wird im Folgenden diskutiert. Für massenbasierte Immissionsrechnungen im Bereich der Luftqualität ist der Ansatz als passiver Tracer durchaus gerechtfertigt und entspricht auch der Information, die die Emissionsinventare bieten. Das steht im Gegensatz zu BC als Stoff in Klimamodelle, bei denen Prozesse des Partikelwachstums durch z.B. Kondensation von Gasen und Koagulation wichtig sind, weil diese Größenverteilung die Strahlungsbilanz und das Entstehen von Wolken beeinflusst (z.B. Aan de Brugh et al, 2012, Kokkola et al, 2018).

Frühe Beispiele für Modellstudien sind Schaap et al. (2004) unter Verwendung von LOTOS, sowie Simpson et al. (2007) und Tsyro et al. (2007) unter Verwendung des EMEP-Modells. Eine neuere Studie war die EURODELTA III Studie, in der sieben regionale Luftqualitätsmodelle Simulationen von PM₁₀ über Europa durchführten, mit einem Vergleich aller Stoffen mit vier 1-monatigen EMEP-Intensivkampagnen in mehreren Jahreszeiten in den Jahren 2006-2009. Die Ergebnisse sind in Bessagnet et al. (2016) zusammengefasst. Die Studie ergab, dass EC in PM_{2,5} von den Modellen generell unterschätzt, aber für EC in PM₁₀ überschätzt wurde. Es ist anzumerken, dass der Satz von Stationen für PM₁₀ anders war als für PM_{2,5}, mit nur wenigen Stationen, die Proben von beiden Größenklassen nahmen. An der Station Campisabalos (Spanien) beträgt der EC-Anteil in der Grobfraktion 12 %, während die Modelle einen Wert im Bereich von 0 - 4,6 % vorhersagen. An der deutschen Station Melpitz befinden sich nach den Beobachtungen 14 % des EC in der Grobfraktion (zwischen 2,5 und 10 µm), während die Modelle Werte zwischen 0 und 23 % darstellen. Dies kann auf Unterschiede in den Depositionsraten zurückzuführen sein, könnte aber auch ein Ergebnis von Unsicherheiten in der Emissionsverteilung über feines und grobes EC sein. Dieser Punkt wird in der Studie von Chen et al. (2016) veranschaulicht: Sie verwendeten (hochauflösende) WRF-Simulationen über Deutschland mit den EC-Emissionen von EUCAARI und zeigten, dass die Modellergebnisse im Vergleich zu den Messungen verbessert wurden, wenn ein Teil des gesamten emittierten EC von der Grobfraktion in die PM_{2,5}-Fraktion verschoben wurde. In einer ähnlichen Studie mit WRF und EUCAARI EC-Emissionen für Deutschland fanden Nordmann et al. (2014), dass EC-

¹ <https://www.umweltbundesamt.de/themen/nachhaltigkeit-strategien-internationales/information-als-instrument/umweltforschungsdatenbank-ufordat>

² <https://www.swisstph.ch/de/projects/ludok/>

Emissionen über bestimmten Gebieten und bei bestimmten Windrichtungen unterschätzt wurden, was auf zu niedrige EC-Emissionen (Faktor 2-5) im Emissionsinventar, insbesondere im südlichen und östlichen Teil Deutschlands, hindeutet. Das Besondere an dieser Studie ist der Vergleich nicht nur mit Bodenmessungen, sondern auch mit AOD-Messungen und die Verknüpfung mit der Simulation des Strahlungsantriebs von Black Carbon über Deutschland.

Mues et al. (2012) untersuchten die Temperaturabhängigkeit von modellierten und beobachteten EC-Konzentrationen (abgeleitet aus Rußbeobachtungen, eng. Black Smoke) an einer einzelnen Station) in zwei Modellen (LOTOS-EUROS und RCG). Es wurde festgestellt, dass die EC-Werte mit abnehmender Temperatur für kältere Tage (Maximaltemperatur < 10 °C) zunahmen und in geringerem Maße mit steigender Temperatur für Tage mit Maximaltemperatur über 20 °C zunahmen. Der Wintereffekt wurde von den Modellen teilweise dargestellt, wobei er etwas unterschätzt wurde. Der Anstieg für warme Tage wurde nicht modelliert. Die Diskrepanzen zwischen beobachtetem und modelliertem EC hängen mit Unsicherheiten bei den Emissionen in Bezug auf den Zeitpunkt und die absoluten Mengen zusammen, aber auch mit Schwierigkeiten bei der korrekten Darstellung von Verdünnung und Transport unter kalten und stagnierenden Bedingungen. Diese Bedingungen fallen oft mit Perioden mit höheren Emissionen von z.B. Heizungen zusammen. Im Sommer kann das Grillen lokal eine Quelle sein, die in den Modellen nicht berücksichtigt wird und als Jahresbeitrag zu Emissionsinventar vernachlässigbar sind (e.g. Visschedijk et al, 2020).

In Prank et al. (2016) wird die Leistung von vier regionalen Chemie-Transport-Modellen für PM₁₀ und seine Komponenten verglichen. Insbesondere für kohlenstoffhaltiges Aerosol wurden große Biases gefunden: die Modelle unterschätzten den EC in PM_{2.5} um ~20-60% und OC um 40-80%. Für EMEP und LOTOS-EUROS reduziert der Waldbrandbeitrag die Modellabweichung für die kohlenstoffhaltigen Arten, während gleichzeitig die Korrelation mit den Messungen von EC und OC in PM_{2.5} verringert wird. Die Autoren empfehlen eine bessere Berücksichtigung von Emissionen aus Waldbränden und eine explizite Berücksichtigung des Aerosolwassergehalts im Modell-Messungs-Vergleich. Die Verwendung der TNO MACC II-Emissionen führte zu einer plausibel modellierten Verteilung über die feine und grobe EC-Fraktion. EMEP veröffentlicht auch Statusberichte (EMEP, 2016), in denen das Modell gegen Messungen validiert wird. Für 2014 waren nur 3 Standorte mit guter Datenabdeckung verfügbar, und EC in PM₂₅ wurde um 41 % und OC um 52 % unterschätzt, obwohl die Korrelationen recht gut waren (0,64 für EC und 0,9 für OC).

Die meisten regionalen Modelle verwenden einen Bulk-Ansatz mit BC oder EC in einer begrenzten Anzahl von Größenklassen. Globale Modelle verfolgen oft einen anderen Ansatz, insbesondere wenn sie darauf abzielen, die Klimaauswirkungen von PM zu untersuchen, einschließlich des Wachstums von Partikeln in Richtung der Größe von Wolkenkondensationskernen (200-500 nm) durch Kondensation von Gasen und Koagulation von Partikeln. Die Validierung solcher Modelle basiert oft teilweise auf optischen Beobachtungen (Aerosol optische Dichte der atmosphärischen Säule) und nicht auf Oberflächenkonzentrationen, da Aerosolkonzentrationen oberhalb des Expositionsniveaus global verfügbar und relevant sind. Langmann et al. (2008) führten regionale Simulationen über Europa für Januar 2003 und Juni 2003 unter Einbeziehung einer solchen Aerosoldynamik durch und fanden größere Unterschätzungen für Januar als für Juni für BC und große Unterschätzungen in OC für beide Jahreszeiten. Sie wiesen auf die potenzielle Bedeutung der Holzverbrennung in städtischen Gebieten und von Waldbränden sowie auf eine Verbesserung der zeitlichen Abstimmung der Emissionen hin. Reddington et al. (2013) stellen eine Studie vor, in der das Modell GLOMAP über Europa für Mai 2008 anhand von Flugzeugmessungen

ausgewertet wurde, einschließlich der Auswertung der vertikalen Verteilung und der Größenverteilung, und fanden erhebliche Unterschätzungen im Januar. Der Vergleich zeigt eine erhebliche Fehlanpassung zwischen der gemessenen und modellierten BC-Größenverteilung über den Größenbereich des verwendeten Single Particle Soot Photometers (90-400nm BC-Durchmesser). Das Modell sagt BC-Partikelanzahlkonzentrationen voraus, die um einen Faktor $\sim 3,5$ - $5,7$ höher sind als die gemessenen und eine Größenverteilung, die ~ 40 - 65 nm kleiner ist als beobachtet. Mehr als $\sim 90\%$ der Modellpartikel mit Trockendurchmessern >260 nm enthalten BC, während die Beobachtungen im Durchschnitt nur 14% nahelegen. Diese Modell-Beobachtungs-Abweichungen bei den BC-Eigenschaften sind erheblich größer als bei der gesamten Partikelverteilung, was darauf hindeutet, dass die Diskrepanz mit den Modellannahmen über die Größe und den Mischungszustand der emittierten kohlenstoffhaltigen Partikel zusammenhängt. Aan de Brugh et al. (2011) untersuchten das europäische Aerosolbudget im Jahr 2006 mit dem TM5-Modell und fanden eine recht gute Darstellung der jährlichen mittleren EC-Konzentrationen an EMEP-Stationen, aber eine starke Unterschätzung für OC.

Eine Kombination von Messungen und Modellierung für BC auf der regionalen Skala für Europa finden Sie in Genberg et al. (2013). Diese Studie beinhaltet auch die Sensitivität der EC-Lebensdauer auf den Alterungsansatz im Modell in Bezug auf die angenommene Hygroskopizität der emittierten Spezies. Ihre Hauptschlussfolgerung ist, dass die Verbrennung fossiler Brennstoffe die dominante Quelle von EC in Europa ist, mit wichtigen Beiträgen aus der Holzverbrennung in Wohngebieten, obwohl angemerkt werden sollte, dass bei der Holzverbrennung Partikel mit größerem Durchmesser freigesetzt werden.

Weitere Beispiele für urbane Modellierungsstudien für BC werden in Milford et al. (2016) für Sevilla und Huelva (Spanien) im Jahr 2013 und Meroni et al. (2017) für März 2013 in der Po-Ebene vorgestellt. Diese beiden letztgenannten Studien, beide mit CAMx, schenken den Zeitprofilen und der Beziehung zur Meteorologie besondere Aufmerksamkeit. Die Ausführung dieser Modelle mit hoher Auflösung erfordert einen erheblichen Rechenaufwand. Die Modellierungsanalyse für Spanien zeigte, dass die saisonale und tageszeitliche Variabilität der EC-Konzentration in diesen städtischen Gebieten in erster Linie durch die Variation der meteorologischen Bedingungen bestimmt wird, da die Verkehrszählungen wenig saisonale Variabilität zeigten. Für die mittelgroße Stadt Sevilla waren lokale Quellen auf der Straße dominant, für die kleine Stadt Huelva waren lokale und regionale Beiträge gleichermaßen wichtig.

In BAFU (2014) wurden die BC-Konzentrationen für die Jahre 2010 und 2020 für die gesamte Schweiz modelliert. Die räumliche Auflösung für die in dieser Studie als "lokal" bezeichnete Skala beträgt $200 \times 200 \text{ m}^2$. Im Rahmen dieses Projekts kann dies jedoch nicht als "lokal" bezeichnet werden und die Studie besagt auch, dass das Modell aufgrund der Modellauflösung von 200 m keine Variationen der Konzentrationen auf einer Skala $<200 \text{ m}$ darstellen.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass vor allem in kalten Winterzeiten hohe EC-Konzentrationen gefunden werden, die auf den kombinierten Effekt von stabilem Wetter, einer niedrigen Grenzschicht, Kaltstarts und verstärkter Verbrennung in Haushalten zurückzuführen sind. Die Emissionen und die Darstellung der Grenzschicht werden oft als die wesentlichen Unsicherheiten angesehen. Es ist aber zu beachten, dass auch die Deposition ein Prozess ist, der mit relativ großer Unsicherheit modelliert wird.

Bei den oben genannten Studien handelt es sich hauptsächlich um europaweite oder regionale Auswertungen. Es gibt auch lokale Studien, die auf bestimmte Stadtgebiete ausgerichtet sind und

mit höherer Auflösung durchgeführt wurden. Diese lokalen Studien werden in Abschnitt 3.4 diskutiert.

Tabelle 1: Regionale BC Modellstudien

| Author and year | Region | Model | Domain and spatial resolution | Modelled period | Input data Emissions | Input data Meteorology | Evaluation | Comment |
|-----------------------|-----------------|----------|--|---------------------------|-------------------------------|------------------------|---|--|
| Schaap et al 2004 | Europe | LOTOS | 10°W-40°E 35°N -70°N 0.5x0.25° lon-lat. | 1995 | CEPMEIP | Diagnostic, FUB | Compilation from various literature studies | simulated BC concentrations underestimated those measured by about a factor of 2. |
| Tsyro et al 2007 | Europe | EMEP | 50x50km, rotated grid covering 30W-60E, 30N-90N. | 2002-2004 | EMEP and IIASA, GFED wildfire | HIRLAM | EC from CARBOSOL and EMEP campaign | simulated BC concentrations underestimated those measured by about 19% on average, for individual sites bias -79-77%, depending on latitude |
| Simpson et al 2007 | Europe | EMEP | See Tsyro et al 2007 | 2002-2004 | EMEP and IIASA, GFED wildfire | See Tsyro et al 2007 | CARBOSOL and EMEP campaign EC, OC, levoglucosan | emissions of primary EC and OC from fossil fuel sources probably captured within a factor of two at most sites. Discrepancies for wintertime OC at some sites can likely be accounted to missing wood-burning contributions. |
| Chen et al (2016) | Europe, Saxony | WRF-Chem | Europe 54 x54 km, 2 x 2 km around Melpitz, | 10-23 September 2013 | EUCAARI EC/OC | WRF | HOPE-Melpitz campaign, GUAN network | Emissions of coarse mode EC point sources may be overestimated with factor 2-10, emissions of coarse mode EC in Eastern Europe overestimated |
| Nordmann et al (2014) | Europe, Germany | WRF-chem | Europe 36x36 km, Germany 12x12 km | 25 March to 10 April 2009 | EUCAARI EC | WRF | GUAN, MODIS, AERONET | PM captured well but BC underestimated by factor 2. Sensitivity runs with emissions and optical properties of aerosol adjusted. |

| Author and year | Region | Model | Domain and spatial resolution | Modelled period | Input data Emissions | Input data Meteorology | Evaluation | Comment |
|---------------------------|-----------------|--------------------------------|--|-----------------------|--------------------------------|---------------------------|--|--|
| Mues et al (2012) | Europe | LOTOS-EUROS, RCG | 10 W-40E, 35-70N ; 10W-30E, 35-66 N, 0.5x0.25 lon-lat | 2003 | TNO MACC emissions | ECMWF (L-E) TRAMPER (RCG) | EMEP, black smoke for single station | Underestimation of variability of PM and EC with meteorology, in particular increase in EC with temperature |
| Prank 2016 | Europe | SILAM, LOTOS-EUROS, CMAQ, EMEP | Europe, 18 km, or 0.3x0.2 or 0.3x0.3 | 2005 | TRANSPHORM | WRF or ECMWF | EMEP network | Modelling of carbonaceous compounds should be improved by developing high-quality emissions from wildland fires, and explicit consideration of aerosol water content in model-measurement comparison |
| Emep (2016) | Extended Europe | EMEP | Europe + extension 30°N-82°N latitude and 30°W-90°E longitude, 0.1x0.1 lon-lat | 2013 | EMEP+TNO MACC III for shipping | ECMWF | Aerosol absorption measurements, elemental carbon (EC) concentration from EMEP network | |
| Langmann et al (2008) | Europe | REMOTE | Europe, 0.5°x0.5° horizontal resolution and | January and June 2003 | EMEP | REMOTE | EMEP | Underestimations of BC stronger in winter than in summer |
| Reddington et al (2013) | Europe | GLOMAP | Europe 2.8°x2.8° | May 2008 | AEROCOM | ECMWF | LONGREX aircraft campaign (6-22 May), also vertical profile | Discrepancy in modelled and observed size distribution |
| Aan de Brugh et al (2012) | Europe | TM5 | Europe 21°W-39°E 12°N-66°N, 1x1°, including stratosphere | 2006 | AEROCOM +GFED fire emission | ECMWF | EMEP+ OC/EC campaign 2002-2003, AERONET AOD | Reasonable representation of EC but underestimation of OC. Sensitivity experiments for wet removal rates. |

| Author and year | Region | Model | Domain and spatial resolution | Modelled period | Input data Emissions | Input data Meteorology | Evaluation | Comment |
|----------------------|------------------|-------|---|-------------------------|---|---|---|--|
| Genberg et al (2013) | Europe | EMEP | Europe, rotated grid, 50x50km, | 2005-2010 | EMEP/EUCAA RI/TNO new RWC EC/OC inventory FINNV1 fire emissions | PARLAM-PS (2005-2006) ECMWF (2007-2010) | Several data sources and instruments, EC and BC | Model bias less than 20% |
| Milford (2016) | South-west Spain | CAMx | Iberian Peninsula 18 x 18 km, Southern Spain/Portugal 6x6 km, South-West Spain 2x2 km | January 2013, June 2013 | EMEP + PRTR-E+ Spanish national emission inventory for traffic emissions, no residential combustion in inner domain | MM5 | Hourly equivalent BC measurements | Model captured the large diurnal, seasonal and day to day variability, mean biases ranged between -0.14 and 0.07 $\mu\text{g m}^{-3}$ in winter and between 0.01 and 0.29 $\mu\text{g m}^{-3}$ in summer |
| Meroni (2017) | Po Valley | CAMx | Po valley 5x5 km | February 2013 | EMEP+ISPRA national Italian inventory + regional inventories | WRF | Daily EC observations | EC is frequently overestimated at all sites. The overestimation is stronger at the urban site of Milano than at the rural site of Ispra, suggesting that the traffic EC used as input in CAMx should be lowered. |

3.4 Modellierung von BC auf der lokalen Skala

Nur sehr wenige Studien zur Modellierung von BC auf der lokalen Skala wurden gefunden (siehe Ergebnisse in Tabelle 2)), im Gegensatz zur Modellierung auf der regionalen Skala (siehe vorheriger Abschnitt), zu Messungen oder Messmethoden von BC, zu Emissionsquellen oder Quellenanalyse, zu gesundheitlichen Auswirkungen oder zur Modellierung der Klimawirkungen von BC. Diese Publikationen sind jedoch nicht in den Ergebnissen enthalten. Ebenfalls nicht enthalten sind Publikationen, die sich mit der Modellierung von Ausbreitung, Koagulation von ultrafeinen Partikeln beschäftigen, ohne BC, EC oder Ruß explizit zu berücksichtigen, wie z. B. Nikolova et al., (2014).

Mehrere Studien fokussieren auf die Partikelanzahlkonzentration (PNC, Particle Number Concentration). Kukkonen et al. (2016) präsentieren z. B. einen Überblick über die Modellierung der PNC in den fünf europäischen Großstädten Helsinki, Oslo, London, Rotterdam und Athen im Jahr 2008. Tabelle 1 in diesem Artikel fasst die Berechnungsmethoden und die Auswertung der Prognosen in den fünf Städten gemeinsam zusammen. Ein weiterer Übersichtsartikel zur Modellierung von PNC ist Kumar et al. (2011). Das Ziel der Studie war es, die aktuelle Praxis der Modellierung auf fünf verschiedenen lokalen Skalen zusammenzufassen. Es werden die Turbulenzzone in der Nähe des Auspuffs, die Straßenschlucht, der Stadtteil, die Stadt und der Straßentunnel betrachtet. Insbesondere Tabelle 2 in der zitierten Studie zeigt Beispiele für Ausbreitungsmodelle auf städtischer Skala, die sich mit der Partikelanzahlkonzentration befassen.

Karl et al. (2016) verwenden das eindimensionale MAFOR-Modell mit dem Ziel, die Auswirkungen relevanter Aerosolprozesse auf der Quartiers- und Stadtskala zu quantifizieren und eine vereinfachte Parametrisierung der wichtigsten Aerosolprozesse abzuleiten, die in urbanen Luftqualitätsmodellen für Partikelzahlen verwendet werden sollen. Das Modell berücksichtigt EC und OC, wobei verkehrsinduziertes EC und OC in festen Anfangsverhältnissen freigesetzt werden, basierend auf der Massenzusammensetzung der Fahrzeugabgaspartikelemissionen. Aber abgesehen von der Behauptung der Autoren, dass die Entfernung von Nanopartikeln durch Koagulation u. a. durch die fraktale Natur der Rußaggregate beeinflusst wird, werden weder EC/OC noch Ruß speziell berücksichtigt. Der Schwerpunkt der Studie liegt auf der Partikelanzahl.

Studien, die für die Modellierung von BC oder Ruß auf der lokalen Skala relevant sind, werden im Folgenden kurz beschrieben und in Tabelle 2 zusammengefasst.

Studien in Deutschland

Für Ruß gab es einen Jahresgrenzwert von $8,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (gültig ab 1. Juli 1998) in der 23. BImSchV. Bei Überschreitung waren "Maßnahmen zur Verminderung oder Vermeidung des Auftretens schädlicher Umwelteinwirkungen durch Luftschadstoffe ... zu prüfen." Die 23 BImSchV wurde jedoch durch die 22. BImSchV vom 13. Juli 2004 ersetzt, die ihrerseits dann am 2. August 2010 durch die 39. BImSchV ersetzt wurde.

Aufgrund des Rußgrenzwertes der 23. BImSchV wurde Ruß im Zusammenhang mit Luftverunreinigungen z. B. in Screening-Studien für Hauptverkehrsstraßen bis Ende der 1990er Jahre (und gelegentlich auch danach) berücksichtigt. In diesem Fall wurde Ruß in der Regel als Anteil am Feinstaub abgeschätzt. Als Beispiel seien hier Modellrechnungen für München (IVU, 1996) und Hamburg (IVU, 1997a) genannt. Die Dieselrußbelastung an städtischen Straßen wurde in (IVU, 1997a) und Stern (1997) mit Hilfe des Modellbaukastens IMMISnet/cpb zur Beurteilung der Konzentrationsbeeinflussung durch Kraftfahrzeugemissionen im Rahmen der

23. BImSchV modelliert. In Friedrich & Schierbaum (1997) wurde der Vergleich von Konzentrationsmessungen mit Modellrechnungen für 14 Verkehrsstationen im Land Brandenburg durchgeführt. Für Berlin wurde in IVU Umwelt (2005) der Jahresmittelwert für Ruß (als EC) für städtische Hintergrundstationen und Straßenschluchten modelliert und mit den gemessenen Werten verglichen. Diese Modellierungsansätze behandelten Ruß als ein fester, inerter Anteil der PM-Emissionen für Ruß aus Dieselabgasen. Diese Anteile wurden in Steven und Skrzipczyk, (1997) grob abgeschätzt und sind, zusammen mit weiteren differenzierten Zahlen, auch in der VDI-Richtlinie 3782 Blatt 7 (KRdL, 2003) zitiert, allerdings nicht mehr im Entwurf zur anstehenden Aktualisierung (KRdL, 2018). Die Rußemissionen durch Reifenabrieb wurden mit grob abgeschätzten Emissionsfaktoren für Reifen berücksichtigt, die aus Tunnelmessungen in Berlin abgeleitet wurden (Rauterberg-Wulff, 1998). Mit dem Wegfall des Grenzwertes für Ruß wurden diese Ansätze in der Regel nicht weiterverfolgt oder aktualisiert. Ebenso war Ruß als EC Teil des deutschen regulatorischen Screening-Ansatzes MLuS (2002) und wurde mit der Aktualisierung MLuS (2005) aus dieser Regelung herausgenommen.

Berechnungen der schiffahrtsbedingten zusätzlichen Rußbelastung durch Binnenschiffe im Jahr 2013 für Abschnitte am Nieder-, Mittel- und Oberrhein sowie für einen Spreeabschnitt wurden in Nitzsche et al. (2015a, 2015b, 2015c, 2015d) veröffentlicht. Die Emissionsfaktoren wurden aus TREMOD (Ifeu & INFRAS, 2013) übernommen und die Ausbreitung als inerte Tracer mit einer Bodenauflösung von $5 \times 5 \text{ m}^2$ modelliert. Die Zusatzkonzentrationen durch den Schiffsverkehr erreichten bis zu $3,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Fahrrinne, $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ am Ufer und $0,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in einem Abstand von 130 m vom Ufer.

Im aktuellen UFOPLAN-Projekt "Einfluss eines Großflughafens auf zeitliche und räumliche Verteilungen der Außenluftkonzentrationen von Ultrafeinstaub $< 100 \text{ nm}$, um die potentielle Belastung in der Nähe zu beschreiben" wird neben Stickoxiden, PM₁₀ und PM_{2,5} auch Ruß berücksichtigt. Die Auflösung der Modellierung muss kleiner als $100 \times 100 \text{ m}^2$ sein. Wenn der Abschlussbericht dieses UFOPLAN-Projekts vor dem Abschluss des hier vorgestellten Projekts vorliegt, werden die Ergebnisse in diesen Abschnitt aufgenommen.

Internationale Studien

Brasseur et al. (2015)) modellierten BC-Konzentrationen in zwei stark befahrenen Straßenschluchten in Brüssel unter Verwendung einer Version des OSPM-Modells, wobei das chemische Modul nicht angesprochen wurde. Validierungen wurden mit zeitlichen Daten aus dem festen Messnetz in Brüssel durchgeführt. Die BC-Emissionen des Straßenverkehrs wurden zunächst aus den PM_{2,5}-Emissionen abgeleitet, wobei ein Faktor von 0,6611 basierend auf Lefebvre et al. (2011) verwendet wurde. Die Emissionen wurden dann so angepasst, dass die simulierten BC-Konzentrationen den beobachteten, über den gesamten Simulationszeitraum gemittelten Konzentrationen entsprachen, was zu einen Skalierungsfaktor von fast 3 führte. Diese Anpassung spiegelt, laut den Autoren, höhere Emissionen in der Realität aufgrund von nicht standardmäßigen Fahrbedingungen und kalten Motoren wider. Mit dieser Anpassung war das Modell in der Lage, sowohl die monatlichen Schwankungen der BC-Konzentrationen in Straßenschluchten als auch die halbstündlichen Werte, gemittelt über Wochentage, Samstag und Sonntag, gut zu reproduzieren. Weitere Analysen identifizierten Fahrzeuganzahl und Hintergrundkonzentration zusammen mit Winddaten als wichtige Eingabeparameter und zeigen, dass das Modell unter stabilen Bedingungen besser funktioniert als unter instabilen Bedingungen. Die Autoren prüften zusätzlich auf Korrelationen von meteorologischen Variablen und gemessenen BC-Konzentrationen. Für eine städtische Hintergrundstation, die weniger durch lokale Quellen und vergleichsweise viel mehr durch meteorologische Bedingungen

beeinflusst wird, fanden sie eine hohe Korrelation (0,73- 0,77) zwischen den täglichen BC-Konzentrationen und der Grenzschichthöhe sowie der Windgeschwindigkeit in Oberflächennähe (in 10 m Höhe bzw. in der Schicht 0 - 100 m).

Keuken et al. (2009) betrachteten sowohl die Partikelzahlen als auch die EC. Sie leiteten mit Hilfe der Rückwärts-CFD-Modellierung EC-Emissionsfaktoren für den Straßenverkehr ab. Für frei fließenden Verkehr auf einer Autobahn und einer innerstädtischen Straße für das Jahr 2008 fanden sie für schwere und leichte Nutzfahrzeuge von 26 bzw. 3 mg EC/km. Mit diesen Faktoren berechneten sie dann EC-Konzentrationskarten für Rotterdam für das Jahr 2006 mit dem URBIS-Modell wobei Konzentrationen bis zu $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ modelliert wurden.

Keuken et al., (2013) kombinierten lokale und regionale Modelle für die Niederlande für 2010/11. Hinsichtlich der lokalen EC-Beiträge durch den Straßenverkehr wurden das niederländische Standard-Straßenschluchtenmodell "SRM1" und das Linienquellenmodell "SRM2" für innerstädtische Straßen bzw. Autobahnen verwendet. Vergleiche des modellierten jahresmittleren Beitrags der Straßenverkehrsemissionen zu den EC-Konzentrationen mit gemessenen Werten von etwa $1.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an zwei Straßenschluchten, eine in Amsterdam und eine in Rotterdam, zeigen eine gute Übereinstimmung. In ähnlicher Weise wurde für zwei Standorte in 25 m Entfernung von Autobahnen eine gute Übereinstimmung der modellierten Werte mit den gemessenen Beiträgen von $1.1 - 1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gefunden. In einem letzten Schritt kombinierten die Autoren die Ergebnisse ihrer regionalen Modellierung mit $1 \times 1 \text{ km}^2$ Gitterauflösung mit den Ergebnissen der beiden SRM-Modelle, korrigiert für die Doppelzählung von Emissionen, um eine Karte der jährlichen mittleren EC-Konzentrationen in der Stadt Rotterdam mit einer räumlichen Auflösung von $20 \times 20 \text{ m}^2$ zu erstellen. Die modellierten EC-Konzentrationen in der Luft erreichen Werte von bis zu $2.2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in der Nähe von Autobahnen und die Konzentrationen in der Nähe von Verkehrsstandorten sind etwa 2- bzw. 3-mal höher als die an städtischen bzw. regionalen Hintergrundstandorten.

Keuken et al., (2015a) beschreiben PNC- und BC-Messungen in städtischen Gebieten der Stadt Rotterdam in der Nähe eines Industriegebiets. Sie identifizierten dominante industrielle Quellen und verwendeten diese als Eingabe für die Ausbreitungsmodellierung von PN im Jahr 2012. Sie verwendeten das Gauss'sche Fahnenmodell SRM3 mit einer Gitterauflösung von $0.5 \times 0.5 \text{ km}^2$, die dann durch Interpolation zwischen den modellierten Werten auf $50 \times 50 \text{ m}^2$ erhöht wurde. Die Ausbreitungsmodellierung wurde in dieser Studie jedoch nicht für BC durchgeführt, da der Beitrag industrieller Quellen zu BC relativ zu gering war.

In vergleichbarer Weise untersuchten Keuken et al., (2015b), die Umgebung des Flughafens Schiphol in den Niederlanden. Die BC-Messungen zeigten erhöhte Werte hauptsächlich dann, wenn der Wind aus den städtischen Gebieten von Amsterdam-Amstelveen wehte, was auf BC Emissionen aus dem Straßenverkehr als Quelle hinwies. Es gab keine erhöhten Konzentrationen von BC im Windschatten von Schiphol, in Gegensatz zu PNC der stark vom Flughafen beeinflusst war. Es wurde in dieser Studie PNC modelliert, aber kein BC.

Tabelle 2: Lokale BC Modellstudien

| Author and year | Region | Model | Spatial resolution | Temporal resolution | Input data Emissions | Input data Meteorology | Evaluation | Comment |
|--------------------------------|--|--------------------------------------|---|---------------------|--|---|------------------------------------|--|
| Brasseur et al., (2015) | Brussels - two street canyons | OSPM (semi-empirical gaussian + box) | Street canyon (parametrised) | 30 min | BC as a proportion of PM2.5; vehicle counts | Wind direction and speed at above-roof level (height 30 m) | yes | Model quality better in stable conditions than in unstable ones; NOX and BC measurements are highly correlated |
| Keuken et al. (2009) | Rotterdam | URBIS | No information | hourly/year | EC emissions derived from inverse modelling of measurements | No information | no | derivation of EC emission factors |
| Keuken et al. (2013) | Urban and traffic locations in The Netherlands | SRM1 und SRM2 | 20 x 20 m (Rotterdam) street canyon, near highway | Year/Month /Week | EC as source group-specific PM2.5 fraction from existing inventories | No information | yes | EC |
| Keuken et al. (2015a) | Rotterdam | SRM3 (Gaussian-Model) | 500 x 500 m (interpolated to 50 x 50 m) | hourly | Data for industrial sources from environmental authority | Hourly wind direction and speed from measurements | only qualitatively | dispersion modeling only for PNC, not for BC; Focus on industrial sources |
| Keuken et al. (2015b) | Urban areas near Schiphol airport - Amsterdam and Amstelveen | SRM3 (Gaussian-Model) | 500 x 500 m (interpolated to 50 x 50 m) | hourly | Based on traffic data from the airport | Hourly wind direction/speed from meas. | not for BC | Focus on PNC, little on BC |
| Nitzsche et al. (2015 a,b,c,d) | Shipping-related additional soot load at four river sections (Lower, Middle and Upper Rhine and Spree) | LuWas (Gaussian-Model) | 5 m x 5 m | Year/Month /Week | Bottom-up with emission factors from TREMOD | 10-year-AKS (stability class statistics) | no | Soot |
| Lorentz. et al., 2020 | Airport Frankfurt a.M. | LASAT (and LASPORT) | 100 x 100 m ² for road traffic outside of airport (and 200 x 200 m ² for airport sources) | hourly | HBEFA for road traffic | Hourly wind direction, wind speed and stability classes from measurements | no specific results for soot given | Focus on PNC, little on Soot |

4 Analyse und Vergleich des UBA-Emissionsinventars

Dieses Kapitel beschreibt die Ergebnisse der Analyse des deutschen BC-Emissionsinventars für die Referenzjahre 2010 - 2016, welches vom UBA Deutschland erstellt wurde (Berichterstattung 2018). Für die Analyse Anfang 2019 wurden die aktuellsten, im November 2018 verfügbaren, Emissionen verwendet. Basierend auf dem Vergleich der Ergebnisse mit der Literatur und sonstigen Inventaren wurde von TNO ein alternatives/aktualisiertes BC-Emissionsinventar für Deutschland erstellt, in dem der Beitrag mehrerer wichtiger BC-Quellen neu geschätzt wurde. Das neu geschätzte BC-Emissionsinventar und die neu geschätzten PM_{2.5} Emissionen im Rahmen dieses Vorhabens dienen dem Zweck der BC Modellierung und haben keine Relevanz für die Emissionsberichterstattung.

Das deutsche BC-Emissionsinventar wurde vom UBA erstellt, wobei die deutschen PM_{2.5}-Emissionen multipliziert wurden mit BC-Anteilen aus der Literatur. Daher ist die Auswertung in drei Schritte aufgeteilt. Im ersten Schritt vergleichen wir die BC-Emissionen des UBA mit den BC-Emissionen aus der, von TNO erstellten, europäischen CAMS-Datenbank (Berichterstattung 2017, Referenzjahr 2015). In einem zweiten Schritt bewerten wir die vom UBA verwendeten PM_{2.5}-BC-Fraktionen und im dritten Schritt bewerten wir die vom UBA verwendeten PM_{2.5}-Emissionen für verschiedene Sektoren.

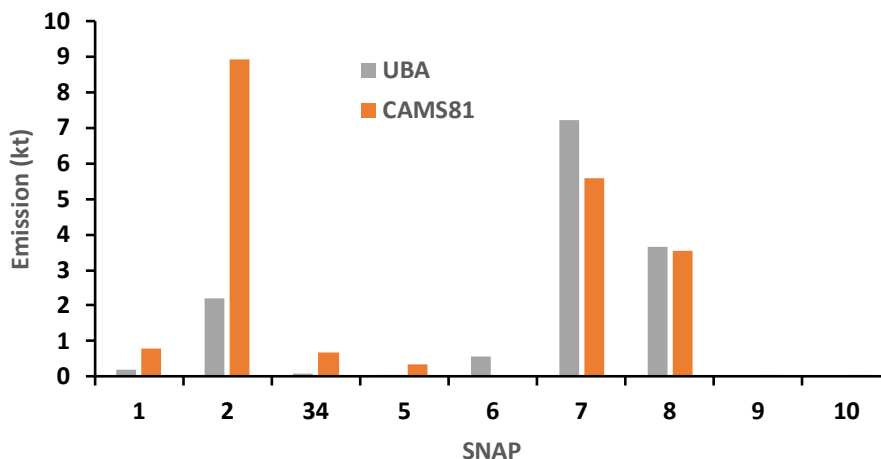
Änderungsvorschlägen bezüglich der PM_{2.5}-Emissionsfaktoren und BC-Emissionsfraktionen, die durch die Überprüfung hervortraten, werden für die relevantesten BC-Quellen im Abschnitt 4.4 vorgestellt.

In den Emissionsinventaren wird meist EC als rein massebasierte Spezies angegeben (CAMS, Emission Guidebook, Dutch Emission registry). Die Massenbeiträge von EC und OC basieren auf Filtermessungen. Unterschiedliche Protokolle (EUSAAR, VDI) führen zu Unterschieden in der Aufteilung von EC und OC. Jedoch liegt eine Überprüfung welche Protokolle zur Trennung von EC und OC in den verschiedenen zugrunde liegenden Studien verwendet wurden außerhalb des Rahmens dieses Projekts. Die Arbeit von Klimont (2017) umfasst viele Studien, in denen unterschiedliche Protokolle verwendet wurden. Angesichts der relativ großen Bandbreite an Emissionsfaktoren für dieselben Emissionsquellen in der Literatur, kann es gerechtfertigt sein, EC und BC in der vorliegenden Studie als gleichwertig zu behandeln und sich auf Diskrepanzen bei den verwendeten Emissionswerten und Splitfaktoren zu konzentrieren.

4.1 Vergleich der BC-Emissionen

Abbildung 8 zeigt den Vergleich der gesamten jährlichen (2015) BC-Emissionen pro SNAP Sektor zwischen dem UBA-Inventar und dem von TNO erstellten CAMS-Inventar.

Abbildung 8: Vergleich der UBA-BC-Emissionen (in Kilotonnen) mit den CAMS81_RWC Emissionen pro SNAP-Sektor für das Jahr 2015



Quelle: TNO

Die wichtigsten SNAP-Quellsektoren für BC sind:

- ▶ SNAP2 Haushalte, etc. (z. B. Hausbrand)
- ▶ SNAP7 Straßenverkehr (z. B. Diesel)
- ▶ SNAP8 Andere mobile Quellen (z. B. Diesel)

Für Haushalte (SNAP2) sind die BC-Emissionen in CAMS viel höher als die BC-Emissionen des UBA. Wir werden in den nächsten Abschnitten zeigen, dass dies auf höhere PM2.5-Emissionsfaktoren und höhere BC-Anteile im CAMS-Inventar zurückzuführen ist.

Für den Straßenverkehr (SNAP7) sind die BC-Emissionen des UBA höher als die BC-Emissionen in CAMS, während hingegen die PM2.5-Emissionen vergleichbar sind. Daher ist der Unterschied wahrscheinlich auf die höheren BC-Anteile, die vom UBA verwendet werden, zurückzuführen. Dies wird im nächsten Abschnitt diskutiert.

Der Unterschied in den anderen Quellsektoren kann durch die unterschiedliche Einbeziehung bestimmter Prozesse erklärt werden:

- ▶ SNAP1: Einbeziehung von stationären (Verbrennungs-)Motoren in CAMS
- ▶ SNAP34: Einbeziehung der Prozessemissionen Metallurgie in CAMS
- ▶ SNAP5: Einbeziehung von Fackeln in der Öl- und Gasproduktion in CAMS
- ▶ SNAP6: Aufnahme von versehentlichen Bränden im UBA Emissionsinventar

Da diese vier SNAP-Quellsektoren nur kleinere Beiträge zu den gesamten BC-Emissionen liefern, wurden diese Sektoren bei der ersten Aktualisierung der Emissionen nicht berücksichtigt und wir konzentrieren uns auf die dominierenden Quellsektoren (SNAP 2, 7 und 8).

4.2 Vergleich der BC-Fraktionen

Um die Unterschiede der gesamten BC-Emissionen zu bewerten, haben wir die vom UBA verwendeten PM_{2.5}-BC-Fraktionen mit denen in anderen EC/BC-Emissionsinventaren verglichen:

- ▶ Ein aktuelles globales PM/BC-Inventar von Klimont et al. (2017)
- ▶ Das EC-Inventar für die Niederlande im Jahr 2015 basierend auf dem niederländischen Emissionskataster
- ▶ Neue Schätzungen für spezifische Fahrzeugemissionen von Ligterink (2017) (als "New Netherlands" bezeichnet)
- ▶ BC-Emissionsfraktionen aus dem EEA Emission Inventory Guidebook 2016
- ▶ Wissenschaftsbasierte Bottom-up PM/EC/OC-Inventare für Europa für das Jahr 2011 (Denier Van Der Gon et al., 2015) und den Zeitraum 2000 - 2015 (CAMSRWC)
- ▶ IIASA GAINS EC-Inventar für 2010 (<http://gains.iiasa.ac.at/models>)
- ▶ Europäisches EC-Emissionsinventar, erstellt von TNO für das Jahr 2005 im Rahmen des Eucaari-Projekts (Kulmala et al., 2011)

4.2.1 Hausbrand

Tabelle 3: Vergleich der PM_{2.5}-BC-Fraktionen für verschiedene Kleinfeuerungsanlagen

| Type | Solid particles only | | | Solid+ volatile | |
|------------------------|-------------------------|----------------|-------------------|-------------------------|-----------------------|
| | Guidebook ¹⁾ | ER Netherlands | UBA ²⁾ | Guidebook ¹⁾ | Klimont ³⁾ |
| Traditional fire place | 0.3 | 0.55 | 0.1 | 0.09 | 0.02-0.22 |
| Conventional stove | 0.55 | 0.40 | | 0.1 | |
| Improved stove | - | 0.20 | | - | 0.1-0.5 |
| DINplus stove | | 0.21 | | | - |
| Log boiler (<50kW) | 0.45 | - | 0.28 | 0.08 | |
| Pellet boiler (<50kW) | 0.15 | | | 0.18 | 0.005-0.5 |
| Med. Boilers (>100kW) | 0.15 – 0.35 | | | 0.13-0.31 | - |

1) Sources: Nussbaumer et al. (2008), IIASA GAINS

2) Park average households

3) Klimont et al. (2017)

Tabelle 3 zeigt die BC-Anteile in verschiedenen Inventaren. Unterschieden werden verschiedene Arten von Öfen und ob der Emissionsanteil nur für Feststoffpartikel oder für Feststoffpartikel und kondensierbare Stoffe gültig ist.

Der im UBA-Inventar verwendete BC-Anteil beträgt 0.1 für alle Arten der Kleinf Feuerungsanlagen außer den mittelgroßen Kesseln. Der Vergleich in Tabelle 3 zeigt, dass dieser Wert für Feststoffpartikel plus kondensierbare Stoffe und traditionelle Geräte (0.1) repräsentativ ist, während das UBA-Emissionsinventar kondensierbare Stoffe nicht berücksichtigt. Für moderne Anlagen und nur feste PM scheint ein BC-Anteil von 0,2 - 0,4 angemessener.

Der im UBA-Inventar verwendete Wert für mittelgroße Heizkessel (z.B. "Landwirtschaft") ist konsistent mit der Literatur.

Das Guidebook (Tabelle 3.42) nennt für Öko-gekennzeichnete Kleinf Feuerungsanlagen BC-Anteile von 28% für PM_{2.5} "Gesamtpartikel" (fest + kondensierbar) und 55% nur für feste PM_{2.5} Partikel (beheizter Filter). Für "Hocheffiziente Kleinf Feuerungsanlagen" (Tabelle 3.41) werden 16% bzw. 43% genannt und für konventionelle Herde (Tabelle 3.40) 10% bzw. 43%. In den früheren Tier-1-Emissionsfaktortabellen sind keine BC-Anteile nur für Feststoffpartikel (beheizter Filter) aufgeführt. Die BC-Fractionen des Guidebooks nur für Feststoffpartikel sind jedoch etwas zu hoch, insbesondere in Anbetracht der jüngsten Arbeiten von Klimont et al. (2017), die zwischen 20 % und 40 % für (moderne) Kaminöfen und Einzelhauskessel vorschlagen. Das DBFZ hat vor einigen Jahren eine Studie mit zwei verschiedenen Herdtypen (einem Billig- und einem Standardherd) durchgeführt und fand, je nach Zug, Belastung, Holzart und gröÙe der Holzstücke, EC-Anteile zwischen 15 % und 70 % der Gesamtpartikelemission. In Anbetracht der Tatsache, dass mehr als 90 % der Partikelmasse aus PM₁ stammen und empfohlen wird, EC als Indikator für BC zu nehmen, könnte ein PM_{2.5} BC-Anteil von 30% ein passender Durchschnittswert für alle in Deutschland betriebenen Kleinf Feuerungsanlagen sein (DBFZ, persönliche Mitteilung).

4.2.2 Straßenverkehr (SNAP 7)

Tabelle 4 vergleicht BC-Emissionsanteile für verschiedene Fahrzeugtypen aus unterschiedlichen Emissionsinventaren

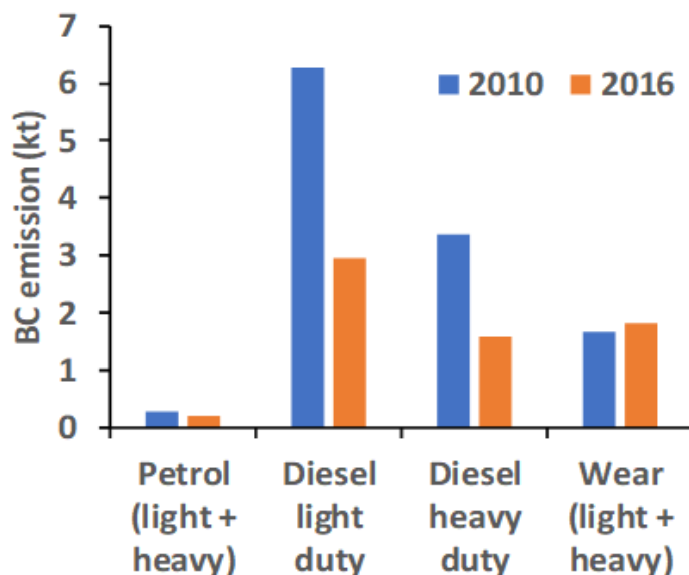
Tabelle 4: Vergleich der PM_{2.5}-BC-Anteile für die wichtigsten Quellen im Straßenverkehr. GDI = Gasoline direct injection, PI = Port injection. EURO1+ bedeutet EURO1 und höher

| Fuel | Vehicle | Category | UBA | CAMS81 | Dutch Emission registration (ER) | New Netherlands |
|--------|-------------|----------|-----------|--------|----------------------------------|-----------------|
| Diesel | Light | EURO1+ | 0.72-0.84 | 0.72 | 0.8 | 0.85-0.95 |
| | Heavy | EURO1+ | 0.59-0.71 | 0.72 | 0.7 | 0.2-0.7 |
| Petrol | Light | PI | 0.04-0.16 | 0.3 | 0.2 | |
| | Light | GDI | 0.04-0.16 | 0.3 | 0.2 | 0.58 |
| Wear | Light+heavy | Tyre | 0.24 | 0.004 | - | |
| | Light+heavy | Brake | 0.26 | 0.02 | - | |

Die in den verschiedenen Datenbanken verwendeten BC-Emissionsfraktionen zeigen für die Dieselfahrzeuge keine großen Unterschiede. Mit Partikelfiltern sollten die neuen Dieselfahrzeuge kaum BC emittieren. Allerdings wurden diese Dieselpartikelfilter (DPF) möglicherweise entfernt (Staps and Ligterink, 2018), was in den jüngsten Schätzungen (new Netherlands) berücksichtigt wurde. Für benzinbetriebene Fahrzeuge sind die BC-Anteile des UBA niedriger als in den anderen Aufstellungen. Neuen Informationen (new Netherlands) zufolge sind PM_{2.5} und die BC-Fraktion für Fahrzeuge mit Benzin-Direkteinspritzung (Gasoline Direct Injection, GDI) höher, z. B. 1 mg PM/km bei 60 % EC.

Die für das UBA-Inventar verwendeten BC-Fractionen für Reifen- und Bremsenabrieb (Sektor 1A3bvi) sind im Vergleich zu den im CAMS-Inventar verwendeten Werten sehr hoch. Dies ist auch in Abbildung 9 zu sehen, welche die SNAP 7 BC-Emissionen in den UBA-Inventaren 2010 und 2016 für vier verschiedene Kategorien zeigt. Hier sind die Reifen- und Bremsenabriebemissionen im Jahr 2016 höher als die Emissionen durch schwere Dieselfahrzeuge und etwa zwei Drittel der leichten Dieselfahrzeuge, was unrealistisch erscheint. Die Literaturwerte für den EC-Anteil im Reifen- und Bremsenabrieb (im Guidebook und im GAINS-Modell) beziehen sich auf EC im rein chemischen Sinne (und nicht auf BC im optischen Sinne). Der größte Teil des im Reifenabrieb enthaltenen elementaren Kohlenstoffs ist in einer Gummimatrix gebunden und nicht optisch aktiv. Die Partikelgrößen liegen zudem meist über 1 µm und somit ist die spezifische Oberfläche der Reifenpartikel zu gering, um signifikante Mengen an Licht zu absorbieren. Wir schlagen daher eine starke Absenkung der BC-Fractionen von 26% auf 2,3% für Bremsen und von 24% BC auf 0,37% für Reifen vor.

Abbildung 9: Die wichtigsten Beiträge zu den SNAP 7 BC-Emissionen wie von UBA berichtet)



Quelle: TNO

4.2.3 Mobile Quellen außerhalb des Straßenverkehrs (SNAP 8)

Tabelle 5 enthält einen Vergleich der BC-Emissionsanteile für verschiedene Kategorien mobiler Quellen außerhalb des Straßenverkehrs aus verschiedenen Emissionskatastern.

Tabelle 5: Vergleich der PM2.5 BC Emissionsanteile für unterschiedliche SNAP 8 Kategorien

| Source | UBA 2010 | UBA 2016 | CAMS 81 & Dutch emission registrations |
|---|----------|----------|--|
| Agriculture, diesel | 0.58 | 0.61 | 0.45-0.52 |
| Construction & Industry, diesel | 0.71 | 0.76 | 0.45-0.52 |
| Railways, diesel | 0.65 | 0.65 | 0.45-0.52 |
| Other mobile sources, diesel | 0.66 | 0.76 | 0.45-0.52 |
| Inland shipping, diesel | 0.31 | 0.31 | 0.35/0.45 |
| Inland shipping, heavy fuel oils | 0.12 | 0.12 | 0.2 |
| International aerial | 0.48 | 0.48 | 0.75 |
| International shipping, diesel | 0.31 | 0.31 | 0.35 |
| International shipping, heavy fuel oils | 0.12 | 0.12 | 0.2 |

Für alle dieselbetriebenen Quellen mit Ausnahme von Schiffen sind die BC-Anteile des UBA höher als die im CAMS-Inventar verwendeten. Da die im CAMS-Inventar verwendeten TNO-Daten recht alt sind, sind die UBA-Werte möglicherweise besser. Für die mit Schweröl betriebenen Quellen sind die UBA-BC-Anteile niedriger als im CAMS-Inventar. Dies liegt daran, dass im CAMS-Inventar die SECA-Verordnung (Sulphur emission control area) berücksichtigt wird, die unter anderem in der Nord- und Ostsee niedrigere Sulfatmissionen erzwingt. Geringere Sulfat-Anteile führen zu höheren relativen BC-Anteilen.

4.3 Bewertung der PM2.5-Emissionsfaktoren

Im letzten Schritt haben wir eine Überprüfung der vom UBA verwendeten PM2,5-Emissionen (Faktoren) für die wichtigsten Quellsektoren durchgeführt, die für schwarzen Kohlenstoff relevant sind: Holzverbrennung in Wohngebäuden, Straßenverkehr und mobile Quellen in der Landwirtschaft. Die Überprüfung basierte hauptsächlich auf dem Vergleich mit der niederländischen Emissionsregistrierung und der zugehörigen TNO-Literatur (Ligterink 2017, Staps and Ligterink, 2018, Visschedijk et al. 2009), dem Leitfaden für Emissionsinventare der EEA aus dem Jahr 2016 und dem aktuellen globalen PM/BC-Inventar von Klimont et al. (2017). Basierend auf diesem Vergleich schlagen wir eine Änderung der vom UBA verwendeten PM2,5-Emissionsfaktoren vor. Im Vergleich zu den Änderungen der BC-Anteile wird die wissenschaftliche Grundlage für die Änderungen der PM2,5-Emissionsfaktoren als etwas schwächer angesehen.

4.3.1 Hausbrand

Tabelle 6: Vergleich der PM_{2.5} Emissionsfaktoren für unterschiedlichen Kleinf Feuerungsanlagen.

| Type | Solid particles only | | | Solid+ volatile | |
|------------------------|-------------------------|----------------|-------------------|-------------------------|-----------------------|
| | Guidebook ¹⁾ | ER Netherlands | UBA ²⁾ | Guidebook ¹⁾ | Klimont ³⁾ |
| Traditional fire place | 260 | 160 | 70-85 | 900 | 90-3000 |
| Conventional stove | 150 | 190 | | 800 | |
| Improved stove | - | 90 | | - | 20-370 |
| DINplus stove | - | 50 | | - | |
| Log boiler (<50kW) | 180 | - | | 1000 | 40-2200 |
| Pellet boiler (<50kW) | 30 | - | ~77 | 60 | 3-70 |
| Med. Boilers (>100kW) | 40-70 | - | | 45-80 | - |

1) Sources: Nussbaumer et al. (2008), IIASA GAINS

2) Park average households

3) Klimont (2017)

Aus der obigen Tabelle wird ersichtlich, dass die Einbeziehung von kondensierbare Gase in die Emissionsfaktoren von PM_{2.5} zu einer 4-fachen Erhöhung der PM_{2.5}-Emission führen kann. Die in der UBA-Emissionsdatenbank verwendeten deutschen PM_{2.5}-Emissionsfaktoren scheinen repräsentativ für Kaminöfen zwischen den Typen "Verbessert" und "DINplus" zu sein und sind "Solid PM only". Dies würde darauf hindeuten, dass fast alle Kleinf Feuerungsanlagen im Hausbrandsektor in Deutschland als modern gelten, während der Anteil von Pelletkesseln in Deutschland im Jahr 2018 nur etwa 10 % betrug (Juhrich, 2021). Es ist unsicher, ob in Deutschland so wenig konventionelle/traditionelle Kleinf Feuerungsanlagen genutzt werden.

Der Gesamt-BC-Emissionsfaktor (PM_{2.5}-Emissionsfaktor x BC-Anteil, siehe vorheriger Abschnitt) für den Hausbrandsektor im UBA-Inventar beträgt nur etwa 8 g/GJ. Vergleicht man dies mit den in Klimont (2017) angegebenen Werten: 12 - 200 g/GJ für traditionelle Herde, 9 - 95 g/GJ für verbesserte Herde, 9 - 33 g/GJ, für neue Herde, 0,5 - 24 g/GJ für Pelletkessel, so kann man wiederum zu dem Schluss kommen, dass der UBA-Wert der Gesamt-BC-Emissionsfaktor sehr effizienten Kleinf Feuerungsanlagen in Deutschland annimmt, was möglicherweise nicht sehr realistisch ist.

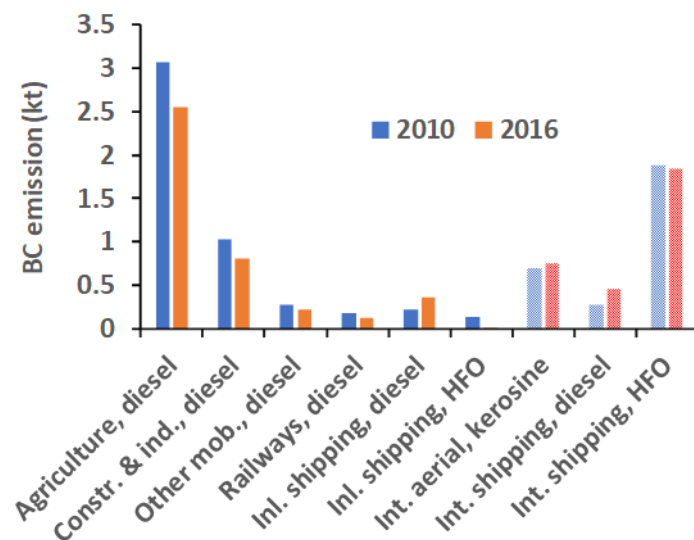
Der durchschnittliche PM_{2.5}-Emissionsfaktor über alle Herdtypen wird wahrscheinlich zwischen etwa 50 g/GJ und 140 g/GJ liegen (Guidebook Werte für Anlagen mit Umweltzeichen/DIN+ bzw. konventionelle Anlagen). Über 90 % aller Holzfeuerungsanlagen in Deutschland sind manuell beschickte Scheitholzkessel/-öfen und weniger als 10 % sind Pelletöfen (Juhrich, 2021). Es wird vermutet, dass der geplante Ausstieg aus allen älteren Holzfeuerungsanlagen (ohne Umweltzeichen/DIN+) vor 2025 in den Jahren 2010 - 2016 keineswegs vollständig erfolgt ist, obwohl die Mehrzahl der eingesetzten Öfen wahrscheinlich neueren Datums war. Eine aktuelle Studie des UBA wird den Vollzug der neuen Verordnung belegen und den Faktor mit dem die Prüfstandsemissionen in Emissionen unter realen Bedingungen umgerechnet werden überprüfen. Bis die Ergebnisse dieser Studie vorliegen, halten wir einen durchschnittlichen

Emissionsfaktor von mindestens 100 g/GJ für angemessener. Der Anteil der sehr sauberen Pelletöfen liegt derzeit unter 10 %, so dass diese den durchschnittlichen PM_{2,5}-Emissionsfaktor nicht stark beeinflussen. In Abschnitt 4.4 wird daher eine Aktualisierung für die Verbrennungsemissionen der Haushalte vorgeschlagen und in die erste Emissionsanpassung aufgenommen.

4.3.2 Mobile Quellen außerhalb des Straßenverkehrs (SNAP 8)

In Abbildung 10 ist zu erkennen, dass für die SNAP 8 UBA BC-Emissionen der Beitrag der landwirtschaftlichen mobilen Quellen am größten ist. Dies wirft die Frage auf, ob die Nutzung und die PM_{2,5}-Emissionen von veralteten (aber noch in TREMOD registrierten) landwirtschaftlichen Traktoren möglicherweise überschätzt werden. Nach verschiedenen Überprüfungen, u. a. der verbrauchten Kraftstoffmenge (z. B. Diesel), empfehlen wir jedoch keine Änderungen für mobile Maschinen und Geräte. Der Einsatz von flüssigen Brennstoffen in der Land-/Forstwirtschaft lag beispielsweise in Deutschland im Jahr 2016 bei ca. 60 PJ, in den Niederlanden dagegen bei 17 PJ.

Abbildung 10: Die relevantesten Beiträge zu den SNAP8 BC Emissionen im UBA Inventar



Quelle: TNO

4.4 Vorgeschlagene Emissionsänderung (Schritt 1)

Auf der Grundlage der in den beiden vorangegangenen Abschnitten beschriebenen Überprüfung der BC-Fractionen und PM_{2,5}-Emissionsfaktoren des UBA wurden für die erste Emissionsänderung (Schritt 1) folgende Aktualisierungen vorgeschlagen und im Projekt umgesetzt:

1. Aktualisierung des BC-Anteils im Hausbrandsektor in Anlehnung an Tabelle 7. von 10 auf 30 %.
2. Erhöhung des PM_{2,5}-Emissionsfaktors für Hausbrand von 77 g/GJ auf 100 g/GJ.

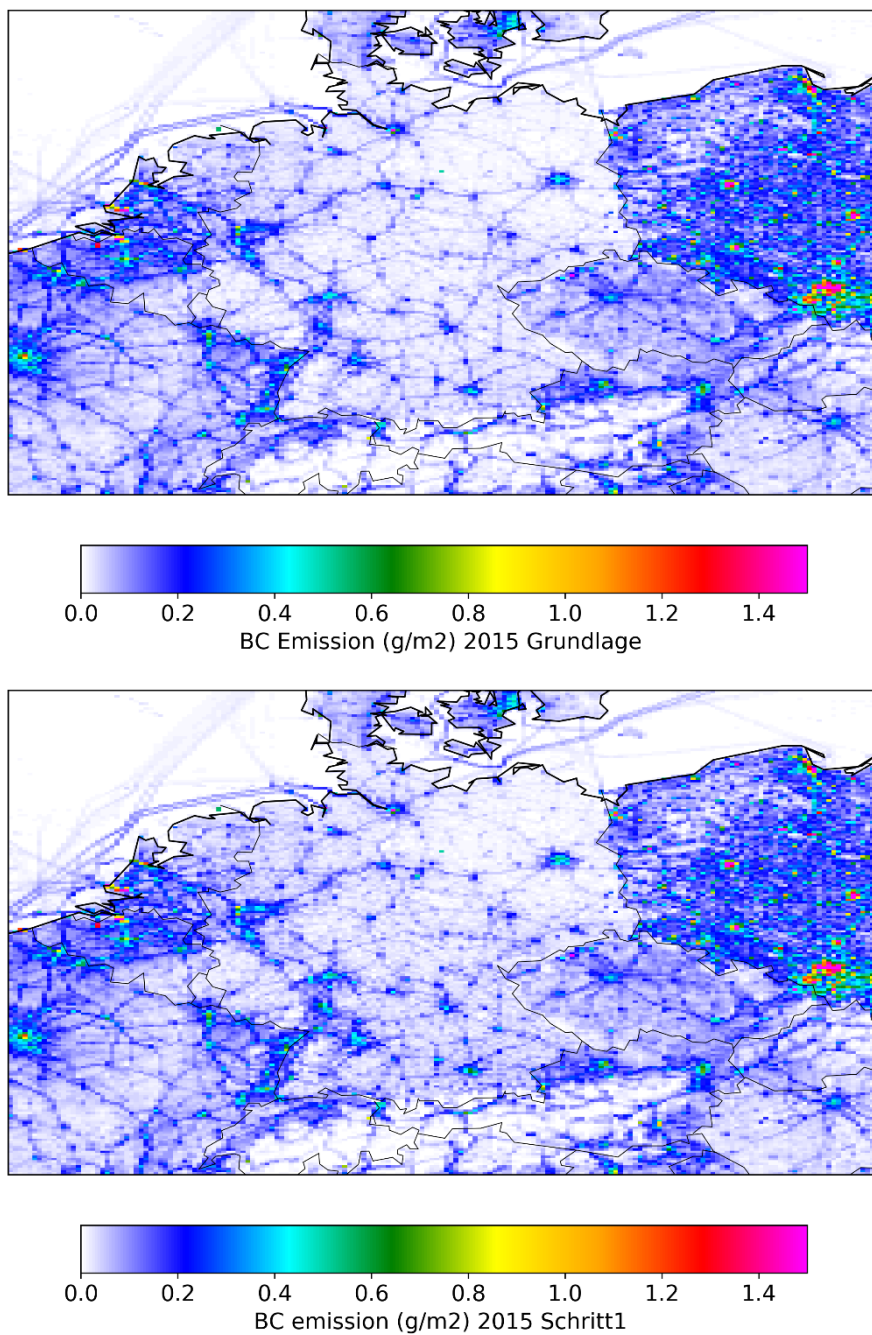
3. Änderung der BC Anteile in Abriebpartikel im Straßenverkehr von 24 auf 0.37% (Reifenabrieb) und von 26 auf 2.3% (Bremsenabrieb).

Tabelle 7: Aktualisierte BC Anteile

| Quellsektor | Original % BC | Neu % BC | Referenz |
|----------------------------------|---------------|----------|--|
| 1A4bi, solid biomass residential | 10 | 30 | Guidebook tables 3.40-3.42 and Klimont et al. (2017) |
| 1A3bvi tyre | 24 | 0.37 | Schauer (2006), as used in EUCAARI and CAMS |
| 1A3bvi brake | 26 | 2.3 | Schauer (2006), as used in EUCAARI and CAMS |

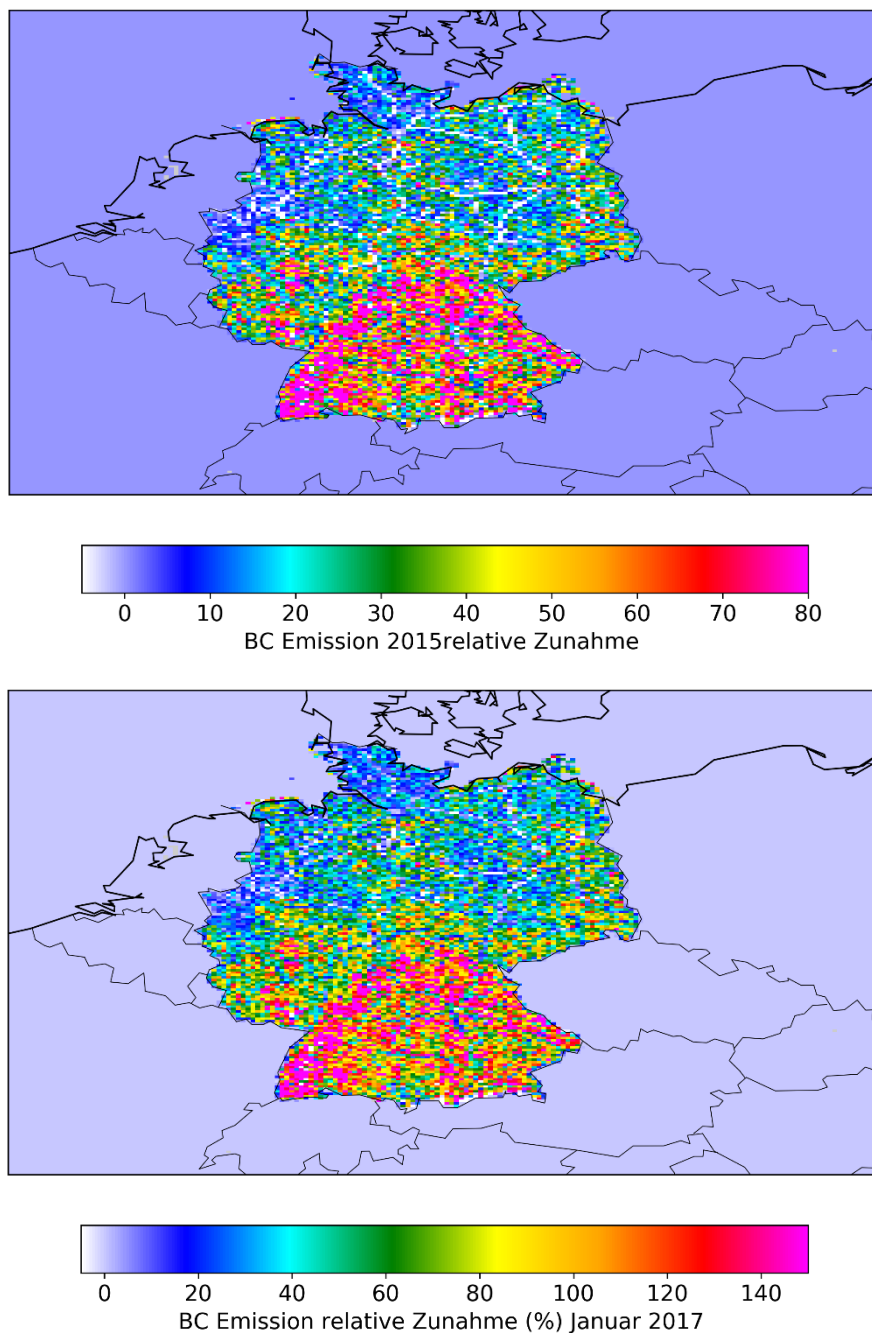
Abbildung 11 zeigt die Verteilung der BC-Emissionen im UBA-Basisinventar und die erste Aktualisierung (Schritt 1) für das Basisjahr der Emissionen (2015). Die Emissionen sind nicht in maximaler Auflösung dargestellt sondern auf einem 0.1x0.05 Gitter, in dem auch die Emissionen der Nachbarländer (CAMS-81_RWC) dargestellt werden. Dies erlaubt die Darstellung von geographischen Differenzen zu CAMS Emissionen in den Nachbarländern. Abbildung 12 zeigt den relativen Anstieg der Schritt 1-Emissionen für das gesamte Jahr 2015 (Basisjahr Emissionsdaten). Zusätzlich ist der relative Anstieg für den Januar 2017 dargestellt, wobei Heizgradtage berücksichtigt sind. Das Jahr 2017 wurde ausgewählt, weil 2017 das Basisjahr für die Modellierung ist. Die Emissionen selber sind die räumliche Verteilung der 2015 Jahreswerte. Der Hauptanstieg der Emissionen zeigt sich im südlichen Teil Deutschlands, wo sich die meisten Verbrennungsemissionen der Haushalte befinden. Besonders im Januar, wenn die Temperaturen niedrig und die Verbrennungsemissionen der Haushalte hoch sind, wird dieser Effekt mit Anstiegen von 180 % und höher für besiedelte Gebiete deutlich.

Abbildung 11: Jahresemissionen 2015 von UBA und CAMS81_RWC dargestellt auf dem gleichen Gitter (0.1x0.05° lonxlat). Grundlage und Schritt 1



Quelle: TNO

Abbildung 12: Relativer Anstieg der BC Emissionen in Schritt 1, Jahresgesamtwert (oben) und unter Verwendung von Emissionszeitprofile für Januar 2017 (Basisjahr Modellierung, unten). Beachten Sie den Unterschied in der Skala



Quelle: TNO

5 Feldmesskampagne BC Berlin

In diesem Kapitel werden Messungen des schwarzen Kohlenstoffs (BC, engl. Black Carbon) und deren Analyse vorgestellt, die während der Feldmesskampagne von 12 Monaten in Berlin durchgeführt wurden. Das Ziel dieser Messungen war es, die räumliche und zeitliche Variabilität der BC-Massenkonzentrationen in der Stadt zu bestimmen. Diese sollen auch als Referenz zur Beurteilung der Modellierung im Rahmen des Projektes zur Ermittlung des schwarzen Kohlenstoffs verwendet werden.

Die Massenkonzentrationen von elementarem Kohlenstoff (EC) und organischem Kohlenstoff (OC) werden ebenfalls in diesem Kapitel beschrieben. EC- und OC-Messungen wurden während der 12-monatigen Feldkampagne in Berlin gleichzeitig durchgeführt und zur Abschätzung der lokalen Werte des Massenabsorptionsquerschnitts (MAC) von schwarzem Kohlenstoff verwendet. Der MAC Wert quantifiziert die Absorptionseffizienz eines Partikels pro Masseneinheit und hängt von der Zusammensetzung der Partikel und von der Wellenlänge ab. Der lokale MAC diente zur Korrektur der äquivalenten BC-Massenkonzentrationen, die in der Stadt gemessen wurden.

Am Ende des Kapitels wird die Analyse des Beitrags der Biomasseverbrennung zum schwarzen Kohlenstoff, basierend auf Messungen der Lichtabsorption bei verschiedenen Wellenlängen und unter Verwendung von zwei Berechnungsmodellen, vorgestellt.

5.1 Messung von eBC-Massenkonzentrationen in Berlin

Die Massenkonzentrationen von schwarzem Kohlenstoff wurden mit Hilfe von Aethalometern an vier Messstationen bestimmt. Die Messstationen sind: Wedding Amrumer Str., Neukölln, Nansenstr., Friedrichshain, Frankfurter Allee, und Buch, Wiltberger Straße. An diesen Stationen sind Verkehrsemissionen die Hauptquellen für BC. Es tragen aber auch Biomasseverbrennung und Ferntransport zu den BC Konzentrationen bei.

Das Aethalometer (Model AE33) ist ein optisches Messgerät, welches aus der Messung der Lichtabsorption eine äquivalente Massenkonzentration eBC (engl. equivalent black carbon) mit hoher Zeitauflösung bestimmt. Die Berechnung erfordert dabei die Annahmen eines Massenabsorptionskoeffizienten (MAC) und eines optische Korrekturfaktors (C) aufgrund von Mehrfachstreuung. Diese beiden Parameter hängen vom Aerosoltyp ab und sind somit stationsabhängig. Im Gerät werden zunächst Standardwerte für MAC und C verwendet. Diese Konzentrationsangaben werden später harmonisiert, um mit Messungen von EC Konzentrationen übereinzustimmen. In diesem Prozess werden dann auch stationsabhängige Massenabsorptionskoeffizienten bestimmt. Harmonisierte Konzentrationen werden mit BC bezeichnet, da diese an die Messungen von EC angebunden wurden.

Das Aethalometer misst die Lichtabsorption bei sieben optischen Wellenlängen. Aus dem Spektralgang der Lichtabsorption kann nach einem Modell eine Faktor BB (engl. Biomass Burning fraction) berechnet werden, der den Anteil von schwarzem Kohlenstoff auf Biomasseverbrennung angibt.

Im Folgenden werden die Grundlagen des Aethalometers vorgestellt und Methoden zur Harmonisierung der BC Konzentrationen und Bestimmung des Anteils von BC aus Biomassenverbrennung dargestellt.

5.1.1 Methoden

Aethalometer Modell AE33

Das Aethalometer ist ein filter-basiertes Absorptionsphotometer in dem kontinuierlich Aerosolpartikel auf einem Filter abgeladen werden und die Änderung der Lichttransmission gemessen wird. Beim Dual-Spot-Aethalometer Modell AE33 (Magee Scientific) wird die Probe zunächst in zwei Kanäle mit unterschiedlichen Volumenströmen aufgespalten, die durch das Filterband geleitet werden (Drinovec et al., 2015). Die Änderung der Lichttransmission wird für die beiden mit Partikeln beladenen Spots gemessen, wobei Licht unterschiedlicher Wellenlängen (370, 470, 520, 590, 660, 880 und 950 nm) verwendet wird. Das Dual-Spot-System wird verwendet, um einen Beladungseffekt zu korrigieren, der durch die Akkumulation von Partikeln und einem dadurch verursachten Abschattungseffekt verursacht wird (Drinovec et al., 2017).

Die Änderung der Lichttransmission, wird zur Bestimmung der Lichtabschwächung (Gl. 1) verwendet, und anschließend in den Licht-Absorptionskoeffizienten (Gl. 2) transformiert:

$$b_{atn} = \frac{S * (\Delta ATN / 100)}{F_{in} * \Delta t} \quad Gl. 1$$

$$b_{abs} = \frac{b_{ATN}}{C} \quad Gl. 2$$

Dabei sind b_{atn} der Licht-Abschwächungskoeffizient, b_{abs} der Licht-Absorptionskoeffizient, S , die Fläche des Spots, ATN die absolute Lichtabschwächung, F_{in} die Aerosol Flussraten, Δt die Messzeitauflösung und C der Mehrfachstreuparameter.

Die Konzentration des schwarzen Kohlenstoffs wird anschließend aus dem Absorptionskoeffizienten (Gleichung 3) abgeleitet und um den Beladungseffekt korrigiert (Gleichung 4):

$$eBC = \frac{b_{abs}}{MAC} \quad Gl. 3$$

$$eBC = \frac{eBC_{measured}}{(1 - k * ATN)} \quad Gl. 4$$

Darin sind eBC die Konzentration des äquivalenten schwarzen Kohlenstoffs, MAC , der Massen-Absorptionsquerschnitt und k , ein intern berechneter Parameter zur Kompensation des Beladungseffekts. Der Kompensations-Parameter wird durch Vergleich der Lichtabschwächung der beiden beladenen Spots für jede Wellenlänge unabhängig abgeleitet. Die Konzentration des schwarzen Kohlenstoffs wird üblicherweise vom Kanal 6 (880 nm) übernommen. Die anderen Kanäle werden für die Quelltypisierung, die Ableitung von BB, verwendet (Magee Scientific, 2018).

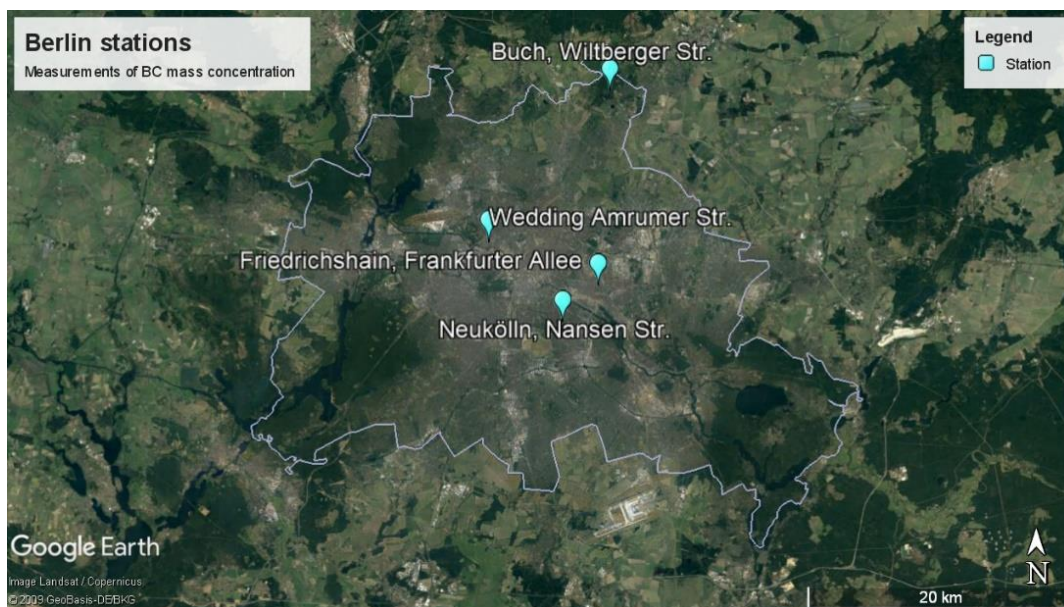
Messungen der eBC-Massenkonzentration

Die Massenkonzentrationen des schwarzen Kohlenstoffs (eBC) wurden von September 2018 bis September 2019 an vier Stationen in Berlin (Abbildung 13) mit dem Aethalometer (Modell AE33) gemessen. Die Stationen in Neukölln (Nansen Str., MC042) und Friedrichshain-Frankfurter Allee

(MC174) sind Teil des Berliner Luftgütemessnetzes (BLUME) und haben bereits vor Beginn des Projektes BC Konzentrationen gemessen. Die Stationen in der Wedding Amrumer Str., (MC010) und Buch (Wiltberger Str., MC077) wurden wegen des möglichen Einflusses von lokalen Emissionen aus der Holz- und Biomasseverbrennung ausgewählt.

Die zusammenfassende Statistik der an den Stationen gemessenen nicht harmonisierten eBC-Konzentrationen ist in Tabelle 8 dargestellt. Die mittlere eBC Massenkonzentration beträgt an den vier Stationen zwischen $0,94$ und $1,67 \mu\text{g m}^{-3}$. Die niedrigste mittlere Massenkonzentration wurde an der Station Wedding Station ($0,94 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,87$) gemessen, gefolgt von Buch Station ($0,97 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,15$) und Neukölln, Nansen Str. ($1,09 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,15$). Die höchsten mittlere eBC Konzentration wurde an der Messstation Friedrichshain ($1,67 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,33$) gemessen. Die zusätzlich zu den Konzentrationen angegebenen Unsicherheiten repräsentieren die einfache Standardabweichung. Über den gesamten Messzeitraum wurde eine hohe Datenverfügbarkeit erreicht. An allen Stationen betrugen die Ausfälle weniger als 3,5% der Messzeit.

Abbildung 13: Standorte der BC-Messstationen in Berlin (Quelle: Google Earth)



Quelle: Google Earth/TROPOS

Tabelle 8: Statistische Zusammenfassung der stündlichen eBC Massenkonzentrationen

| Statistik | Wedding Amrumer Str. | Neukölln, Nansen Str. | Friedrichshain, Frankfurter Allee | Buch, Wiltberger Str. |
|--|-------------------------|--------------------------|---|--------------------------|
| Container code | MC010 | MC042 | MC174 | MC077 |
| Instrument Seriennummer | AE33-S07-00705 | AE33-S06-00578 | AE33-S05-00443 | AE33-S07-00706 |
| Beginn des Messzeitraums | 25/09/2018 | 18/09/2018 | 18/09/2018 | 21/09/2018 |
| Ende des Messzeitraums | 24/09/2019 | 24/09/2019 | 23/09/2019 | 24/09/2019 |
| Mittelwert $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,94 | 1,09 | 1,67 | 0,97 |
| Minimum $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,02 | 0,01 | 0,04 | 0 |
| Maximum $\mu\text{g m}^{-3}$ | 9,03 | 13,35 | 13,48 | 16,43 |
| Standard- Abweichung $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,87 | 1,15 | 1,33 | 1,15 |
| Medianwert $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,68 | 0,69 | 1,34 | 0,58 |
| P25% $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,37 | 0,39 | 0,75 | 0,27 |
| P75% $\mu\text{g m}^{-3}$ | 1,23 | 1,35 | 2,21 | 1,25 |
| Datenausfälle ^a | 0,7% | 1,7% | 2,8% | 3,5% |

^a Berechnet unter Berücksichtigung einer Datenverfügbarkeit von mind. 75 % innerhalb der jeweiligen Stunden.

5.1.2 Ergebnisse

Im Folgenden werden die gemessenen Konzentrationen des äquivalenten schwarzen Kohlenstoffs eBC gezeigt. Es ist zu beachten, dass diese Konzentrationen von den Instrumenten unter Verwendung der Standardparameter C und MAC berechnet wurden. Die Ergebnisse für harmonisierte BC-Konzentrationen werden in Abschnitt 5.4 vorgestellt.

Wedding Amrumer Str. (MC010)

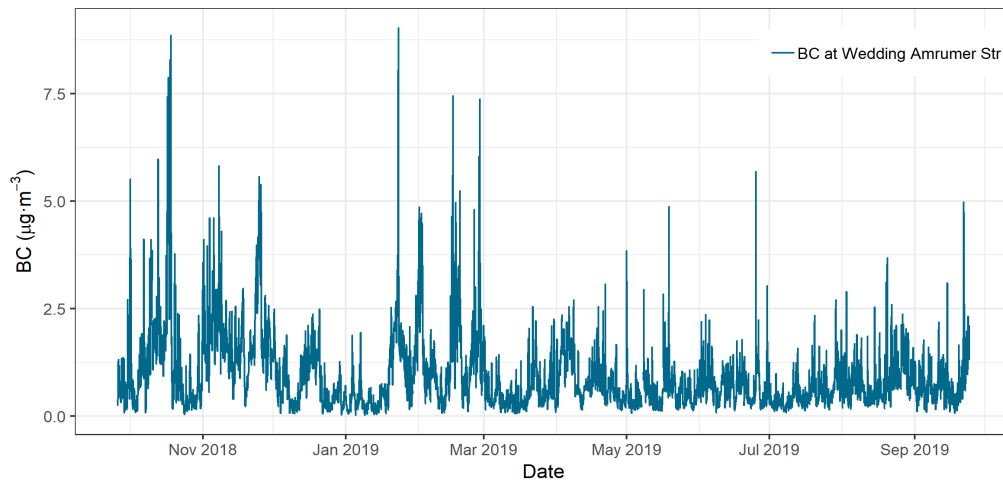
Abbildung 14 zeigt die Zeitserie der stündlichen eBC Konzentrationen gemessen an der Station Wedding Amrumer Str. Die höchste zeitlich Variabilität wurde im Herbst 2018 (Mittelwert \pm Standardabweichung: $1,58 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,24$) und Winter 2018/2019 ($1,03 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,96$) gemessen. Die niedrigste Variabilität und auch niedrigere Konzentrationen wurden im Frühjahr ($0,67 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,50$) und Sommer 2019 ($0,69 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,46$) gemessen.

Die Wochen- und Tagesgänge der stündlichen Mittelwerte sind in Abbildung 15 dargestellt. Über die Woche sind die Konzentrationen (sehr) konstant. Es wird nur eine geringe Abnahme an

Sonntagen aufgrund verminderter Verkehrsemissionen gesehen. Im Tagesgang sind zwei Maxima (Abbildung 15b) aufgrund der morgendlichen Stoßzeit des Berufsverkehrs und einer abendlichen Absenkung der Mischungsschichthöhe zu sehen.

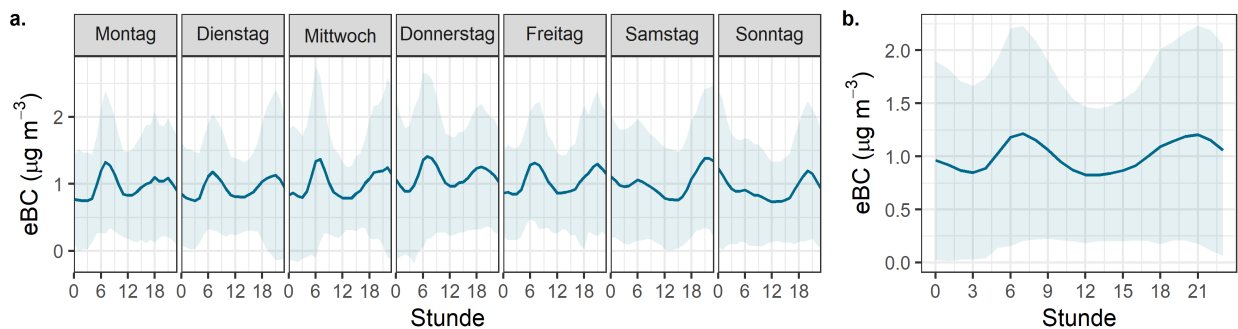
Vom 17. bis 25. Juni 2019 befanden sich die Aethalometer der vier Messstellen im WMO-GAW World Calibration Center for Aerosol Physics (WCCAP) zu einem Kalibrier-Workshop (Cuesta-Mosquera et al., 2020a). In den meisten Messstationen wurden während dieser Zeit Ersatzinstrumente eingesetzt.

Abbildung 14: Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Wedding Amrumer Str.



Quelle: TROPOS

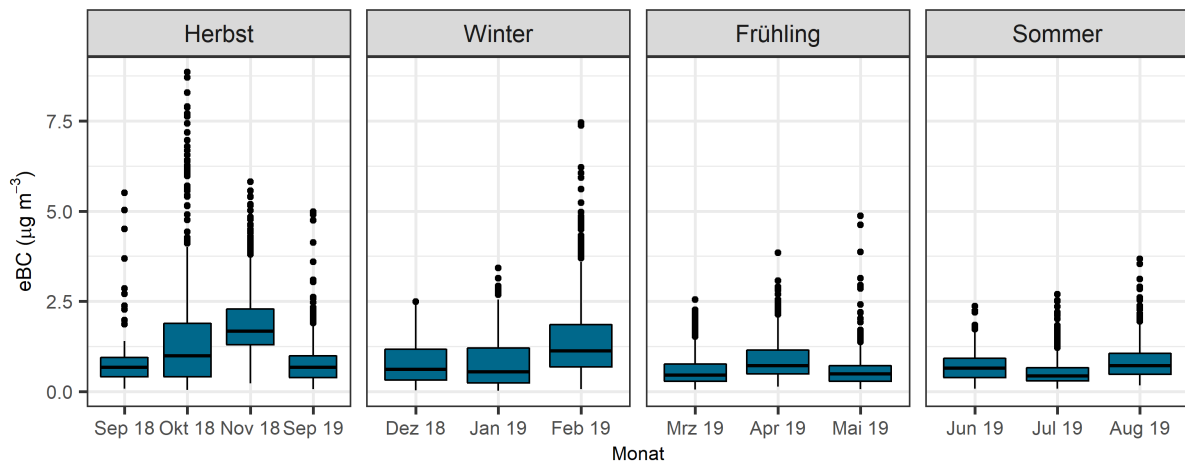
Abbildung 15: Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Wochentage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Wedding-Amrumer Str.



Quelle: TROPOS

Abbildung 16 zeigt die monatliche Variation der eBC Konzentration an der Station Wedding Amrumer Str. Die höchste Konzentration wurde im November 2018 mit $1,89 \mu\text{g m}^{-3}$ gemessen. Die niedrigste Konzentration mit $0,53 \mu\text{g m}^{-3}$ trat im Juli 2019 auf.

Abbildung 16: Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Wedding Amrumer Str.



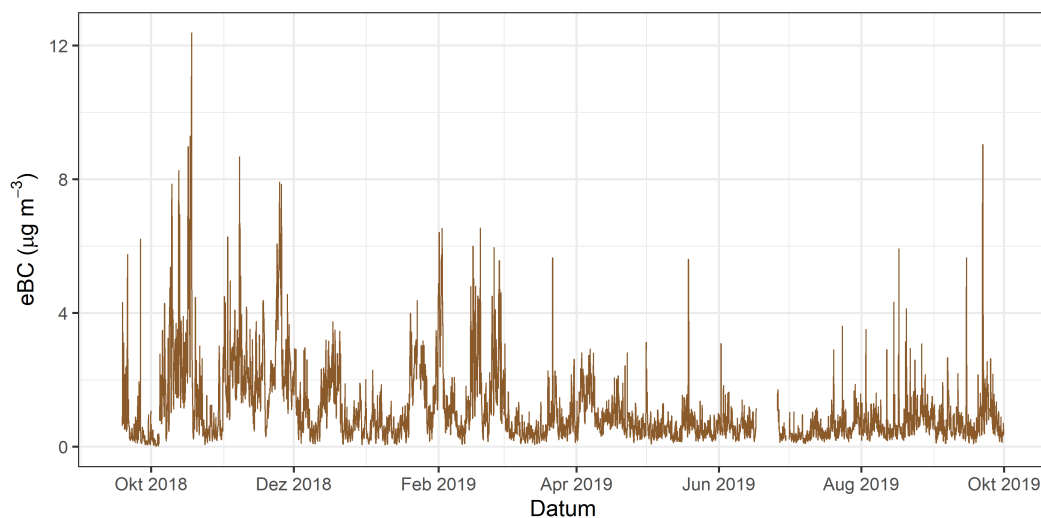
Quelle: TROPOS

Neukölln, Nansen Str. (MC042)

Für die Station Neukölln, Nansenstr. sind die stündlichen Konzentrationen in Abbildung 17 dargestellt. Die höchste Variabilität trat im Herbst 2018 ($1,84 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,63$) und Winter 2018/2019 ($1,35 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,24$) auf. Die niedrigsten Konzentrationen mit geringerer Variabilität wurden im Frühjahr ($0,72 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,55$) und Sommer 2019 ($0,64 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,50$) gemessen.

In dem Zeitraum vom 26. September bis 4. Oktober 2018 wurden erhöhte Verluste im Aerosoleinlass registriert. Daraufhin wurde ein neu konzipierter Einlass installiert.

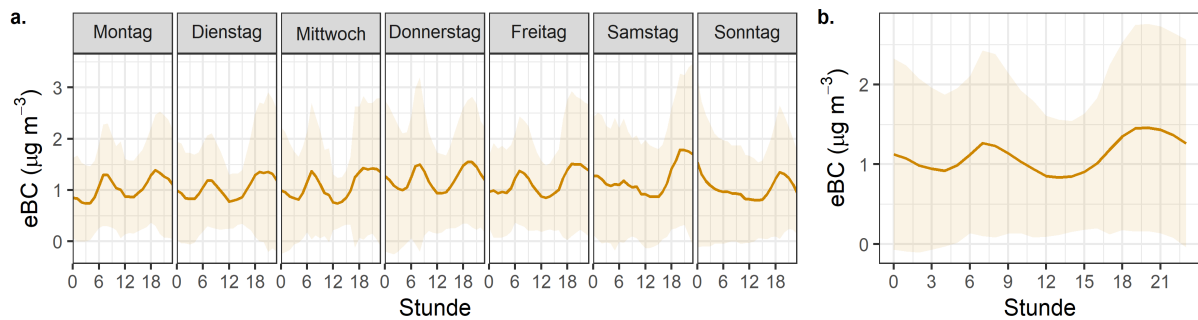
Abbildung 17: Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Neukölln, Nansenstr.



Quelle: TROPOS

Abbildung 18 zeigt den Wochen- und Tagesgang der eBC Konzentrationen mit Werten zwischen $0,7$ und $1,5 \mu\text{g m}^{-3}$ und Wochentagen. An Sonntagen sinkt die Konzentration aufgrund verringerter Verkehrsemissionen ab. Der Tagesgang zeigt Maxima morgens zur Stoßzeit des Berufsverkehrs und in den frühen Abendstunden.

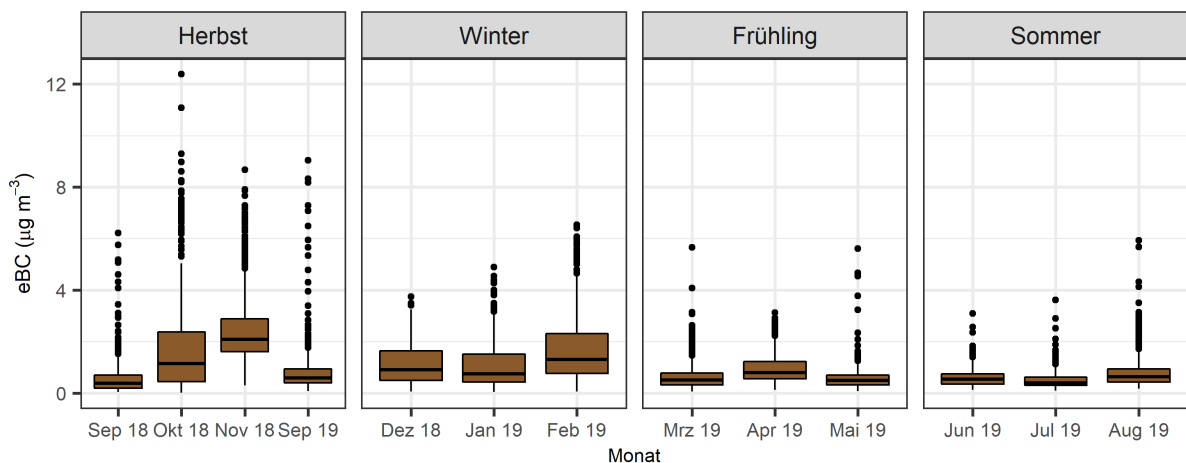
Abbildung 18: Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Werktage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Neukölln, Nansenstr.



Quelle: TROPOS

Die höchsten monatlichen Konzentrationen wurden im November 2018 ($2,45 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,35$) und Februar 2019 ($1,74 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,38$) gemessen (Abbildung 19). Die niedrigsten Konzentrationen traten im Mai ($0,57 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,47$) und Juli 2019 ($0,50 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,34$) auf.

Abbildung 19: Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Neukölln, Nansenstr



Quelle: TROPOS

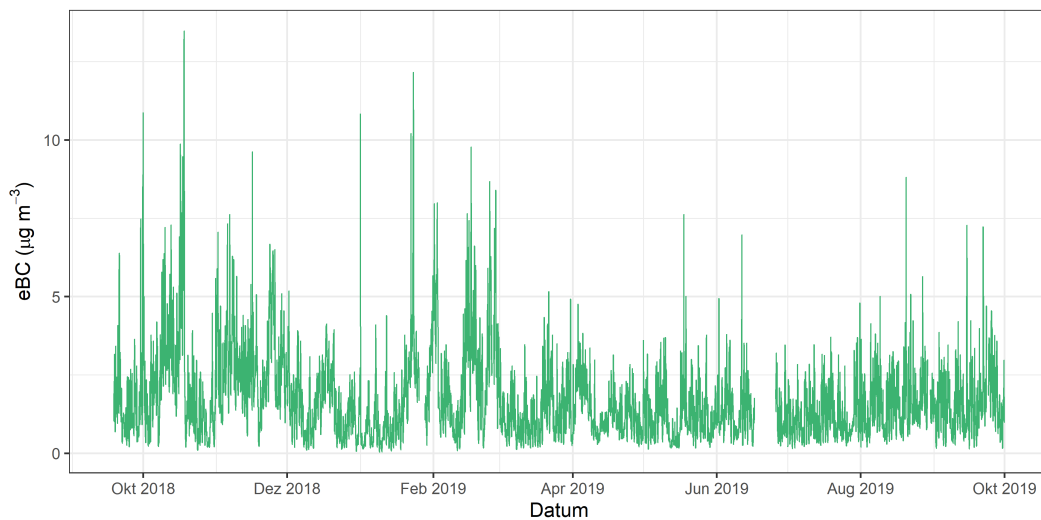
Friedrichshain, Frankfurter Allee (MC174)

Abbildung 20 zeigt die stündlichen eBC Konzentrationen gemessen an der Station Frankfurter Allee mit einem Mittelwert und $1,67 \mu\text{g m}^{-3}$ und einer Standardabweichung von $1,33 \mu\text{g m}^{-3}$. Die

Konzentrationen im Herbst und Winter betrugen $2,42 \mu\text{g m}^{-3}$ und $1,87 \mu\text{g m}^{-3}$. Im Frühjahr und Sommer betrugen die eBC Konzentrationen dagegen nur $1,24 \mu\text{g m}^{-3}$ und $1,32 \mu\text{g m}^{-3}$.

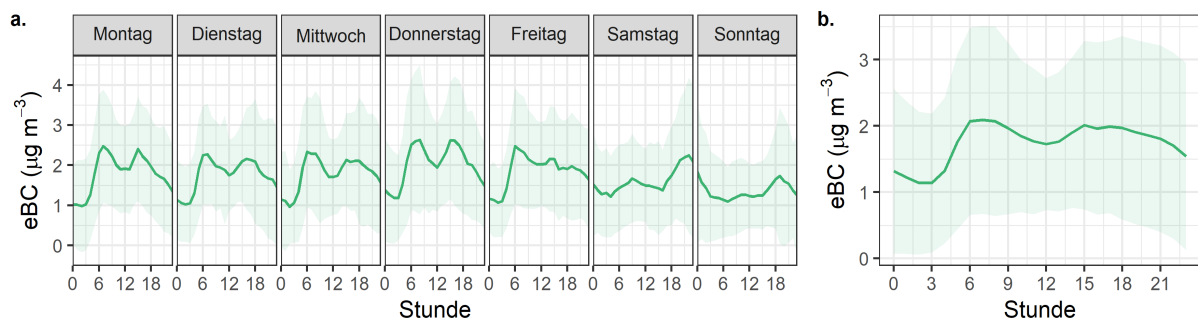
Der Wochen- und Tagesgang der stündlichen Mittelwerte wird in Abbildung 21 gezeigt. Im Wochengang sieht man eine leichte Abnahme am Wochenende, besonders an Sonntagen durch den reduzierten Straßenverkehr. Im Tagesgang fällt eine Verdopplung der Konzentrationen nach dem morgendlichen Berufsverkehr auf. Die Konzentration sinkt über den Tag aber nur sehr langsam ab. Der Grund für diese hohen Tageswerte ist die Lage der Station an einer Hauptverkehrsstraße mit einer hohen Verkehrsdichte über den gesamten Tag.

Abbildung 20: Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Friedrichshain, Frankfurter Allee



Quelle: TROPOS

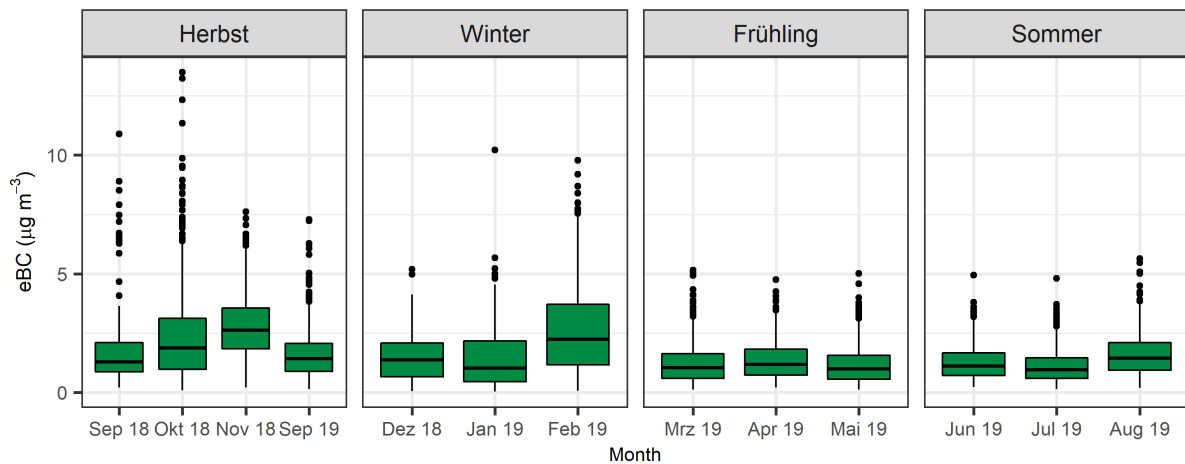
Abbildung 21: Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Werktage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Friedrichshain, Frankfurter Allee



Quelle: TROPOS

Die höchsten monatlichen Konzentrationen wurden im November 2018 ($2,85 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,38$) und Februar 2019 ($2,64 \mu\text{g m}^{-3} \pm 1,85$) gemessen. Die niedrigsten Konzentrationen traten im Juli 2019 ($1,14 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,72$) und Mai 2019 ($1,17 \mu\text{g m}^{-3} \pm 0,81$) auf.

Abbildung 22: Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Friedrichshain, Frankfurter Allee



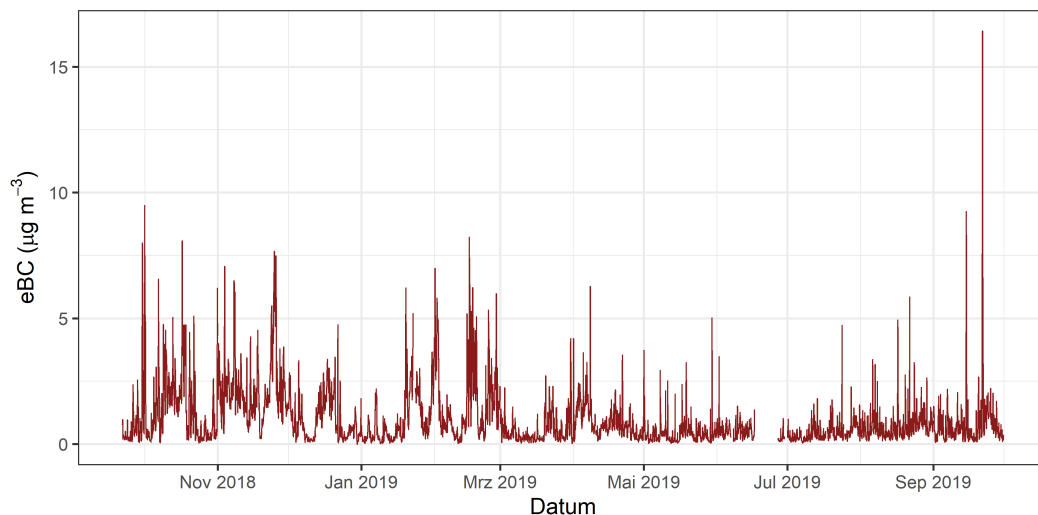
Quelle: TROPOS

Buch, Wiltberger Str. (MC077)

Die Zeitreihe der stündlichen eBC Konzentrationen an der Station Buch, Wiltberger Straße ist in Abbildung 23 dargestellt. Der Mittelwert und die Standardabweichung über den gesamten Messzeitraum betrug $0,97 \mu\text{g m}^{-3}$ und $1,15 \mu\text{g m}^{-3}$. Im Herbst 2018 und Winter 2018/2019 wurde die höchsten Monatsmittel mit Werten von $1,69 \mu\text{g m}^{-3}$ und $1,20 \mu\text{g m}^{-3}$ gemessen. Spitzenwerte der Stundenmittel von bis zu $12,5 \mu\text{g m}^{-3}$ traten im Januar und September 2019 auf. Die mittleren Monatswerte im Frühjahr und Sommer betrugen $0,56 \mu\text{g m}^{-3}$ und $0,59 \mu\text{g m}^{-3}$.

Während der Zeit des Workshops wurde ein Ersatzgerät installiert. Für den Zeitraum vom 26. Juli bis 06. August wurde ohne PM2.5 Zyklon im Einlass gemessen.

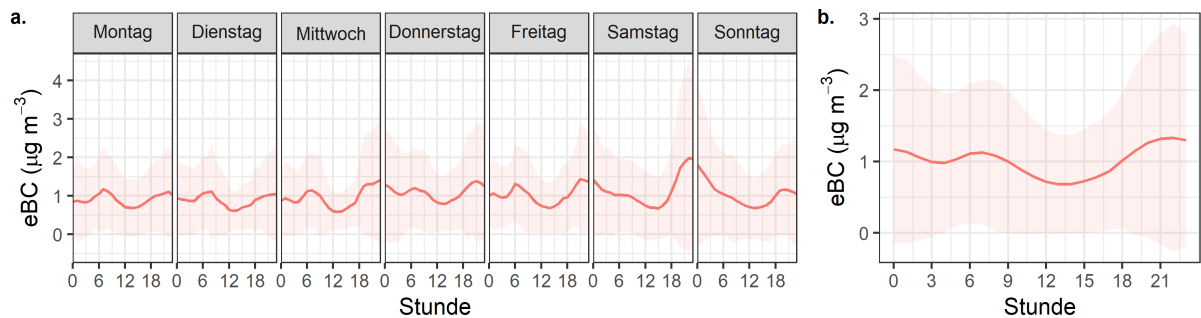
Abbildung 23: Zeitreihe der stündlichen eBC Massenkonzentrationen an der Station Buch, Wiltberger Str.



Quelle: TROPOS

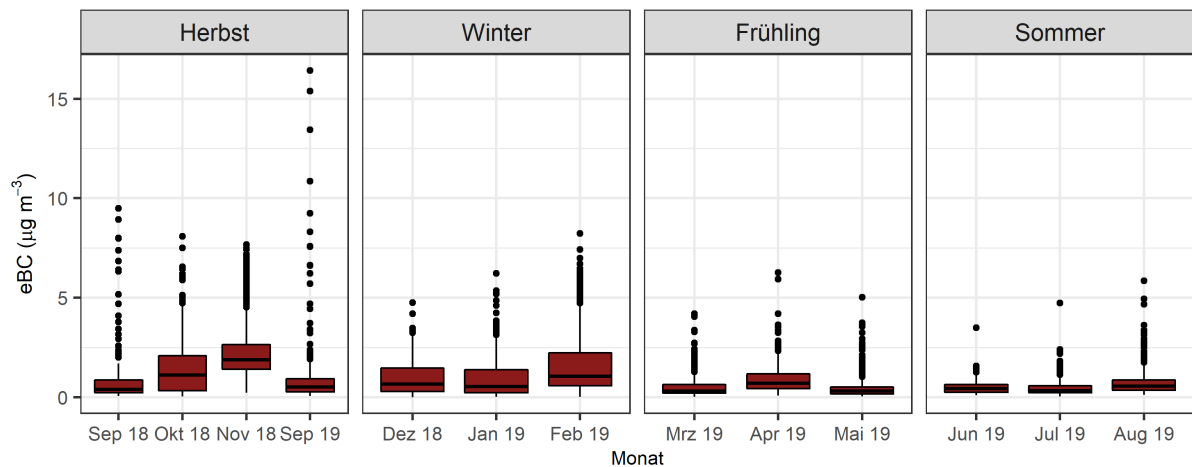
Abbildung 24 zeigt den Wochen- und Tagesgang der eBC Konzentrationen an der Station Buch, Wiltberger Str. Der Mittelwert der Konzentrationen ist etwas $1,0 \mu\text{g m}^{-3}$. Es fällt ein Maximum Samstag abends von $2,0 \mu\text{g m}^{-3}$ auf. Die Gründe für Samstagabend-Maxima werden in Ereignissen mit Biomassen Verbrennung vermutet. Im Vergleich mit den anderen Stationen werden keine so ausgeprägten Maxima während des morgendlichen Berufsverkehrs und in den frühen Abendstunden gesehen.

Abbildung 24: Tagesgänge der stündlichen eBC Massenkonzentrationen für (a) alle Werktage und (b) im Mittel über alle Tage an der Station Buch, Wiltberger Str.



Quelle: TROPOS

Abbildung 25: Monatliche eBC Konzentrationen an der Station Buch, Wiltberger Str.



Quelle: TROPOS

Der höchsten Monatsmittelwerte der eBC Konzentration wurden im November 2018 und Februar 2019 mit $2,22 \mu\text{g m}^{-3}$ und $1,60 \mu\text{g m}^{-3}$ gemessen (Abbildung 25). Die niedrigsten Monatsmittel traten im Mai und Juli 2019 mit Werten von $0,42 \mu\text{g m}^{-3}$ und $0,44 \mu\text{g m}^{-3}$ auf. Im September 2019 traten Spitzenwerte der eBC Konzentration auf. Eine Ursache für diese Peaks konnte nicht gefunden werden.

5.2 EC und OC Messungen

In diesem Kapitel werden die Messungen des Arbeitspaketes „Zusätzliche Messungen für Validierung BC-EC“ berichtet. Im Arbeitspaket wurden Analysen von elementarem Kohlenstoff (EC) durchgeführt, mittels derer Übersetzungsfaktoren bestimmt werden können, die eine bestmögliche Überführung der von Aethalometern im Projekt gemessenen optischen Parameter in eine äquivalente Konzentration von schwarzem Kohlenstoff (equivalent black carbon, eBC) ermöglichen. Gleichzeitig mit der EC-Analyse wurden Konzentrationen des organischen Kohlenstoffs (OC) bestimmt, die im Projektverlauf für die Modellierung bzw. deren Evaluierung genutzt werden können.

5.2.1 Methoden

Die Probenahme für die zusätzlichen OC/EC-Messungen erfolgte mit Kleinfiltersammelgeräten (Typ SEQ47/50-19"RACK), die an den Messstationen Wedding Amrumer Str. (Code MC010) und Buch Wiltberger Str. (Code MC077) im Berliner Luftgütemessnetz installiert wurden. Mit diesen erfolgte in Wedding jeden 3. Tag und in Buch jeden 2. Tag die Probenahme von PM_{2.5} auf ausgeheizten Quarzfaserfiltern (Typ MN QF-10, 50 mm Durchmesser) bei einem Volumenstrom von 2,3 m³ h⁻¹ für 24 h (00:00 – 24:00 Uhr MEZ). Von diesen Filtern wurden die Konzentration von OC und EC mit einem thermo-optischen Verfahren gemäß EUSAAR2-Protokoll (DIN EN ISO 16909, 2017; Cavalli et al., 2010) und optischer Korrektur von Pyrolyseartefakten mittels Transmission (TOT) durchgeführt. Dies entspricht der Methodik, die im Routinebetrieb des Berliner Luftgütemessnetzes auch an den anderen beiden Stationen des Projektes Friedrichshain Frankfurter Allee (Code MC174) und Neukölln Nansenstr. (Code MC042) jeden 3. Tag angewandt wird. Zur Sicherstellung einheitlicher Qualitätsstandards wurden alle Probenahmen und Analysen vom Berliner Luftgütemessnetz durchgeführt.

5.2.2 Ergebnisse

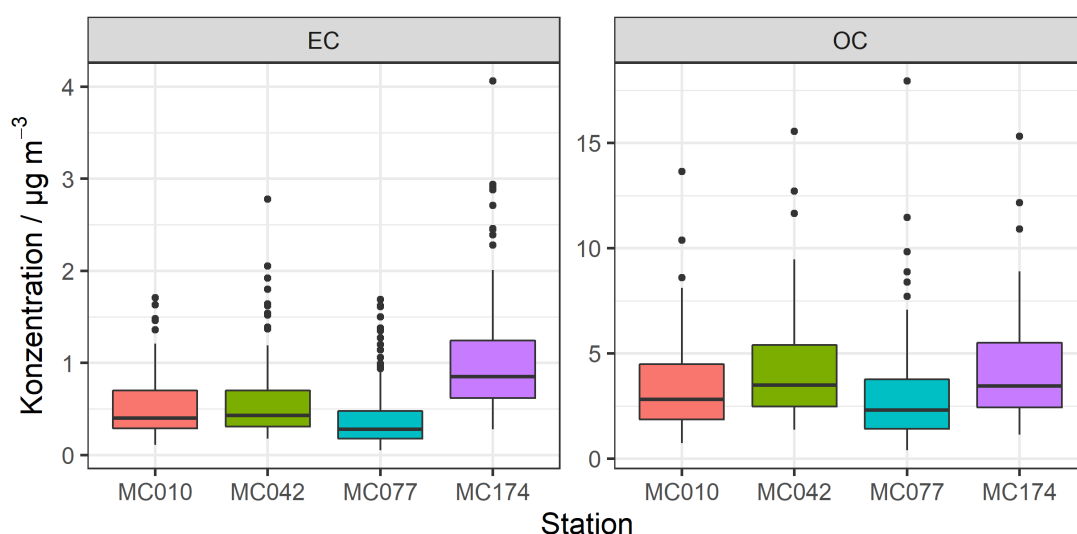
Im Ergebnis wurde ein einjähriger Datensatz von Tagesmittelwerten EC und OC i.d.R. an jedem 3. Tag an allen 4 Stationen des Projektes erhalten, der in Tabelle 9 zusammengefasst und in Abbildung 26 als Boxplot dargestellt ist.

Tabelle 9: Übersicht über EC- und OC-Konzentrationen in µg m⁻³ an den 4 Messstationen des Projektes (Min: Minimalwert, MW: Mittelwert, Max: Maximalwert)

| Statistik | Wedding- Amrumer Str. | Neukölln- Nansen Str. | Friedrichshain- Frankfurter Allee | Buch- Wiltberger Str. |
|--------------------------------------|--------------------------|--------------------------|--------------------------------------|-----------------------------|
| Station Code | MC010 | MC042 | MC174 | MC077 |
| Elementarere Kohlenstoff (EC) | | | | |
| Anzahl Filter | 131 | 131 | 130 | 222 |
| Mittelwert in µg m ⁻³ | 0,40 | 0,43 | 0,85 | 0,28 |
| Minimum in µg m ⁻³ | 0,11 | 0,18 | 0,28 | 0,05 |
| Maximum in µg m ⁻³ | 1,71 | 2,78 | 4,06 | 1,69 |

| Statistik | Wedding- Amrumer Str. | Neukölln- Nansen Str. | Friedrichshain- Frankfurter Allee | Buch- Wiltberger Str. |
|-------------------------------------|--------------------------|--------------------------|--------------------------------------|-----------------------------|
| Organischer Kohlenstoff (OC) | | | | |
| Anzahl Filter | 131 | 131 | 130 | 222 |
| Mittelwert in $\mu\text{g m}^{-3}$ | 2,82 | 3,49 | 3,45 | 2,31 |
| Minimum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,73 | 1,37 | 1,14 | 0,39 |
| Maximum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | 13,65 | 15,55 | 15,31 | 17,94 |

Abbildung 26: Box-Whisker Plots der Konzentrationen von EC und OC an den 4 Messstationen

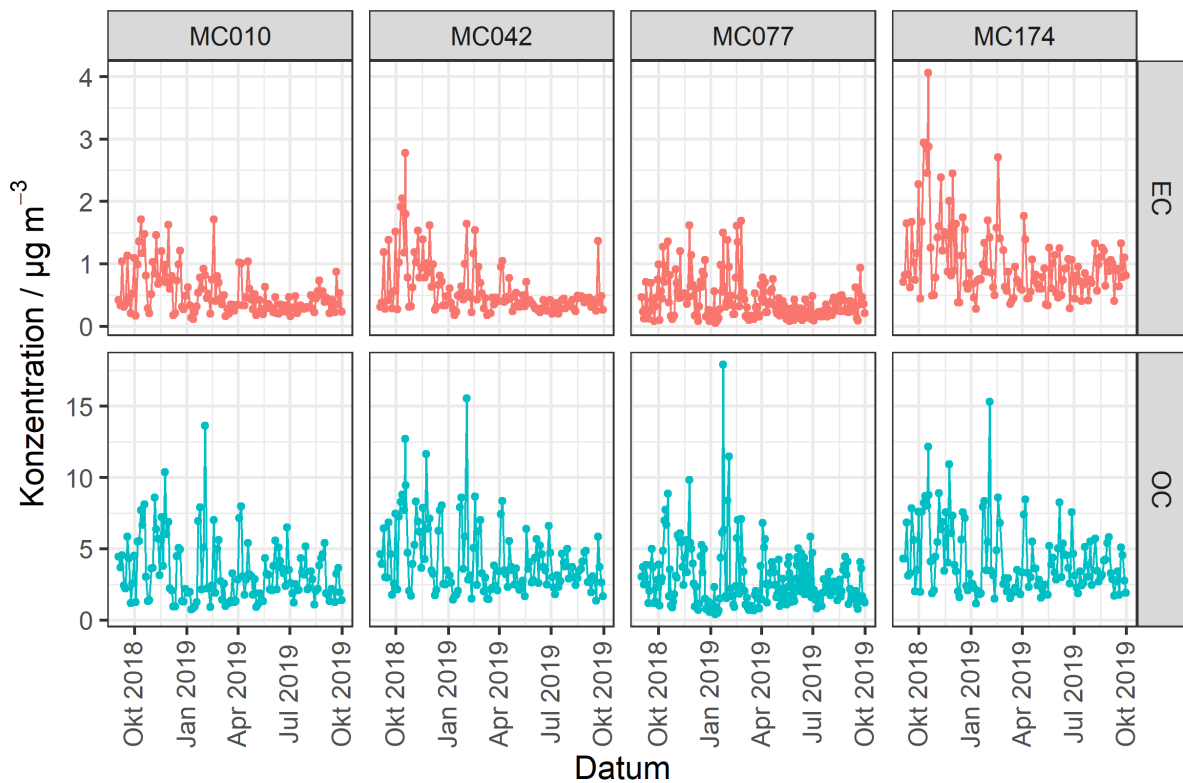


Quelle: TROPOS

Aufgrund der höheren Probenahmefrequenz an Station MC077 wurden dort etwa 1,7-mal mehr Tagesmittelwerte bestimmt als an den übrigen 3 Stationen. In den Mittelwerten und Medianen (mittlere Linie in den Boxplots) ist ein dem jeweiligen Stationscharakter entsprechender Trend zu erkennen. Die Konzentrationen von EC sind am niedrigsten an MC077 am Stadtrand, etwas höher an MC010 und MC042 im städtischen Hintergrund und deutlich am höchsten an der Verkehrsstation MC174. Für OC zeigt sich ein ähnliches Bild, wobei die Unterschiede etwas weniger stark ausgeprägt sind und die Konzentrationen in der Nansenstr. denen der Verkehrsstation Frankfurter Allee sehr ähnlich sind.

In Abbildung 27 sind die Konzentrationen von EC und OC von September 2018 bis Ende Oktober 2019 im Verlauf an den 4 Messstationen gezeigt.

Abbildung 27: Konzentrations-Zeitreihen von EC und OC über den Projektzeitraum von 1 Jahr an den 4 Messstationen.



Quelle: TROPOS

Für EC sind typische Jahresverläufe an allen Stationen zu erkennen, mit höheren Werten im Winter und niedrigeren Werten im Sommer. Neben unterschiedlichen Emissionsstärken z.B. aus der Gebäudeheizung dürften hierfür v.a. auch meteorologische Einflüsse ursächlich sein, die zu höherer Anreicherung im Winter bzw. stärkerer Verdünnung der Emissionen im Sommer führen. Für OC ergibt sich wieder ein ähnliches Bild, wobei auch der Jahresgang weniger stark ausgeprägt ist, was u.a. mit der Bildung sekundärer organischer Partikelmasse im Sommer zu erklären ist.

Im Arbeitspaket „Zusätzliche Messungen für Validierung BC-EC“ wurden 2- bzw. 3-tägliche Filterprobenahme von PM_{2.5} und anschließende Bestimmung von OC/EC an zusätzlichen 2 Messstationen durchgeführt, so dass an allen 4 Stationen des Projektes ein konsistenter Datensatz über das Jahr zur Verfügung steht. Dieser wird im weiteren Projektverlauf verwendet werden, um die Ableitung von eBC aus optischen Messungen der Aethalometer zu ermöglichen, sowie die Modellergebnisse zu validieren.

5.2.3 Zusammenfassung

Im Arbeitspaket „Zusätzliche Messungen für Validierung BC-EC“ wurden 2- bzw. 3-tägliche Filterprobenahme von PM_{2.5} und anschließende Bestimmung von OC/EC an zusätzlichen 2 Messstationen durchgeführt, so dass an allen 4 Stationen des Projektes ein konsistenter Datensatz über das Jahr zur Verfügung steht.

Dieser wird im Weiteren verwendet, um die Ableitung von eBC aus optischen Messungen der Aethalometer zu ermöglichen, sowie die Modellergebnisse zu validieren.

5.3 Harmonisierung der äquivalenten Kohlenstoffkonzentrationen (eBC)

5.3.1 Methoden

Die vom Aethalometer gemessenen Licht-Absorptionskoeffizienten werden durch Division des Licht-Abschwächungskoeffizienten durch dem Mehrfachstreuparameter C (Gl. 2) berechnet. Die Werte von C ändern sich in Abhängigkeit vom Filtermaterial. Für die in dieser Kampagne verwendeten Filter (M8060) beträgt der Wert $C=1,39$. Verschiedene Studien haben jedoch gezeigt, dass der Wert von C auch abhängig vom vorherrschenden Aerosoltyp ist (Ajtai et al., 2019; Collaud Coen et al., 2010). Idealerweise sollten für den jeweiligen Aerosoltyp angepasste Werte von C verwendet werden.

Daher wurden die Absorptionskoeffizienten unter Verwendung eines in ACTRIS berechneten Harmonisierungsfaktors (H) korrigiert. Dieser beschreibt die Empfindlichkeit der Aethalometer gegenüber einem Mehrwinkel-Absorptionsphotometer (MAAP, Model 5012, Thermo scientific). Gleichzeitige Messungen mit beiden Geräten wurden an mehreren europäischen Standorten, einschließlich Melpitz in Deutschland, durchgeführt. Das MAAP ist als Referenzabsorptions-Messgerät bekannt, da es nicht nur die Lichtabschwächung, sondern auch die Streuung des Lichts am mit Partikeln beladenen Filter misst. Mit Hilfe eines Strahlungstransport-Modells wird der Licht-Absorptionskoeffizienten bei einer Wellenlänge von 637 nm bestimmt (Petzold and Schönlinner, 2004).

Der Harmonisierungsfaktor H ist definiert durch:

$$H = \frac{b_{abs}^{AE33}}{b_{abs}^{MAAP}} \quad Gl. 5$$

Dabei sind H der ACTRIS-Harmonisierungs-Faktor, b_{abs}^{AE33} Absorptionskoeffizient des Aethalometers bei 660 nm und b_{abs}^{MAAP} der Absorptionskoeffizient des MAAP bei 600 nm.

Der ACTRIS-Harmonisierungsfaktor wurde zu $H=1,76$ bestimmt. Dieser Faktor wurde auf die Berlin-Messungen angewandt um harmonisierte Absorptionskoeffizienten für das Aethalometer mit Gleichung 6 zu bestimmen.

$$b_{abs}^H = \frac{eBC * MAC_{AE33}}{H} \quad Gl. 6$$

Darin sind b_{abs}^H der harmonisierte Absorptionskoeffizient, eBC die äquivalente Konzentration des schwarzen Kohlenstoffs und MAC_{AE33} der im Aethalometer hinterlegte Massen-Absorptionsquerschnitt von $7.77 \text{ m}^2/\text{g}$ bei 880 nm.

Es wird angenommen, dass der Wert von H für alle Wellenlängen gleich ist. Bisher wurde nur ein korrigierter und harmonisierter Absorptionskoeffizient berechnet. Die im Gerät hinterlegten Werte von C und MAC wurden nur angewandt um im Gerät durchgeführte Berechnungen rückgängig zu machen.

5.3.2 Ergebnisse

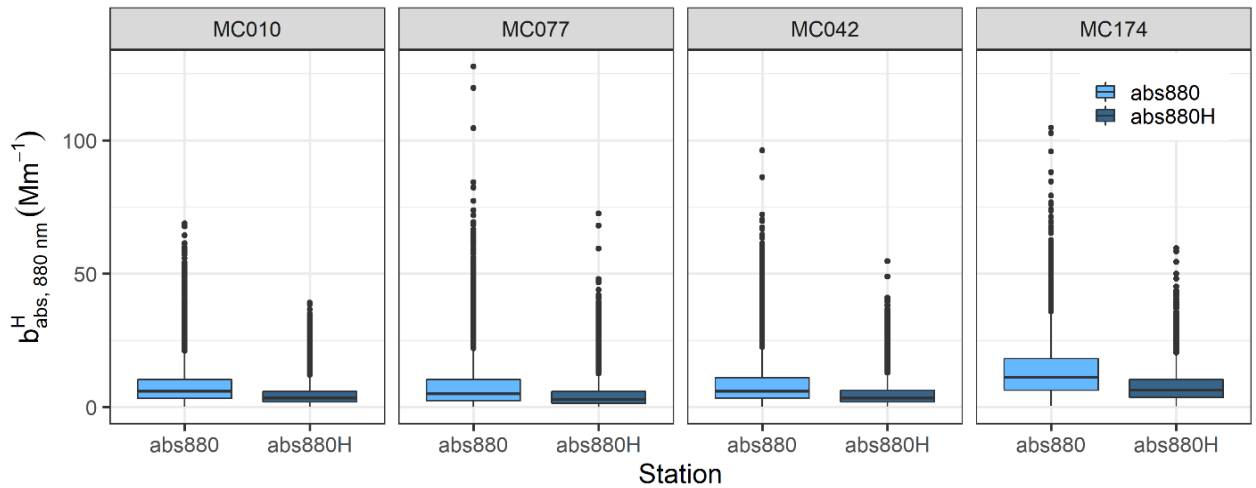
Die harmonisierten Absorptionskoeffizienten waren im Durchschnitt um 43% niedriger als die nicht harmonisierten Werte. Auch die Streuung der Werte verringerte sich nach der Harmonisierung um den gleichen Faktor. Die mittleren Absorptionskoeffizienten waren für die

Stationen in den städtischen Wohn- und Geschäftsvierteln Wedding Amrumer Str. und Neukölln Nansen Str. ähnlich niedrig mit Werten zwischen 4,43 und 4,09 Mm^{-1} . Auch für die Hintergrundstation Buch Wiltberger Str. waren die Werte mit 4,43 Mm^{-1} ähnlich hoch, obwohl für diese Station ein geringerer Einfluss durch Fahrzeug- oder industrielle Emissionen erwartet wurde. Eine höhere Absorption mit 7,69 Mm^{-1} wurde in Friedrichshain Frankfurter Str. gemessen, wo eine mittlere bzw. hohe Verkehrsbelastung vorherrscht.

Tabelle 10: Statistische Zusammenfassung der harmonisierten und nicht harmonisierten Absorptionskoeffizienten

| Statistik | Station | | | | | | | |
|--------------------------------------|----------------------|---------------|-----------------------|---------------|-----------------------------------|---------------|-----------------------|---------------|
| | Wedding Amrumer Str. | | Neukölln, Nansen Str. | | Friedrichshain, Frankfurter Allee | | Buch, Wiltberger Str. | |
| Container code | MC010 | | MC042 | | MC174 | | MC077 | |
| Absorptionskoeffizienten | Nicht harmonisierte | Harmonisierte | Nicht harmonisierte | Harmonisierte | Nicht harmonisierte | Harmonisierte | Nicht harmonisierte | Harmonisierte |
| Mittelwert Mm^{-1} | 7,79 | 4,43 | 8,63 | 4,90 | 13,50 | 7,69 | 7,80 | 4,43 |
| Minimum Mm^{-1} | 0,16 | 0,08 | 0,08 | 0,04 | 0,31 | 0,18 | 0,00 | 0,00 |
| Maximum Mm^{-1} | 68,80 | 39,10 | 96,20 | 54,70 | 105,00 | 59,50 | 128,00 | 72,50 |
| Standard-Abweichung Mm^{-1} | 6,77 | 3,85 | 8,32 | 4,72 | 10,10 | 5,72 | 8,43 | 4,79 |
| Medianwert Mm^{-1} | 5,83 | 3,31 | 5,83 | 3,31 | 11,10 | 6,31 | 4,97 | 2,83 |
| P25% Mm^{-1} | 3,19 | 1,81 | 3,34 | 1,89 | 6,29 | 3,58 | 2,41 | 1,37 |
| P75% Mm^{-1} | 10,33 | 5,87 | 11,03 | 6,27 | 18,10 | 6,31 | 10,25 | 5,83 |

Abbildung 28: Boxplots der harmonisierten und nicht harmonisierten Absorptionskoeffizienten



MC010: Wedding Amrumer Str. Station; MC077: Buch, Wiltberger Str. Station; MC174: Friedrichshain, Frankfurter Allee Station; MC042: Neukölln, Nansen Str. Station; abs880: Nicht harmonisierte Absorptionskoeffizienten gemessen mit dem Aethalometer bei 880 nm; abs880H: Harmonisierte Absorptionskoeffizienten bei 880 nm.

Quelle: Dieses Projekt

5.4 Ermittlung der Massen-Absorptionsquerschnitte (MAC) und harmonisierte BC-Konzentrationen

5.4.1 Methoden

Der Massen-Absorptionsquerschnitt (MAC) setzt die Absorptionseffizienz eines Partikels mit der Masse in Beziehung. Der Wert von MAC hängt von der Wellenlänge, der Partikelgröße und Partikel-Zusammensetzung ab, d.h. der Wert kann sich in Abhängigkeit vom Aerosoltyp ändern (Yuan et al., 2020; Zanatta et al., 2016). Der MAC-Wert kann durch eine Korrelation des Absorptionskoeffizienten (b_{abs}) und der Massenkonzentration des elementaren Kohlenstoffs (EC) berechnet werden. Dabei wird angenommen, dass der optisch gemessene äquivalente und thermografisch bestimmte Kohlenstoff die gleichen Kohlenstoff-Fraktion im Partikel darstellen. Die harmonisierte MAC wurde wie folgt berechnet:

$$MAC^H = \frac{b_{abs}^H}{EC} \quad Gl. 7$$

Darin sind MAC^H der harmonisierte Massenabsorptions-Querschnitt, b_{abs}^H der harmonisierte Absorptionskoeffizient und EC die Konzentration elementaren Kohlenstoffs.

Die harmonisierte Rußkonzentration eBC^H kann dann mit folgender Gleichung bestimmt werden.

$$eBC^H = \frac{b_{abs}^H}{MAC^H} \quad Gl. 8$$

5.4.2 Ergebnisse

Die berechneten Werte der Massenabsorptions-Querschnitte für die vier Stationen sind in Tabelle 11 zusammengefasst. An den Stationen, die stärker durch lokale Verkehrsemissionen beeinflusst

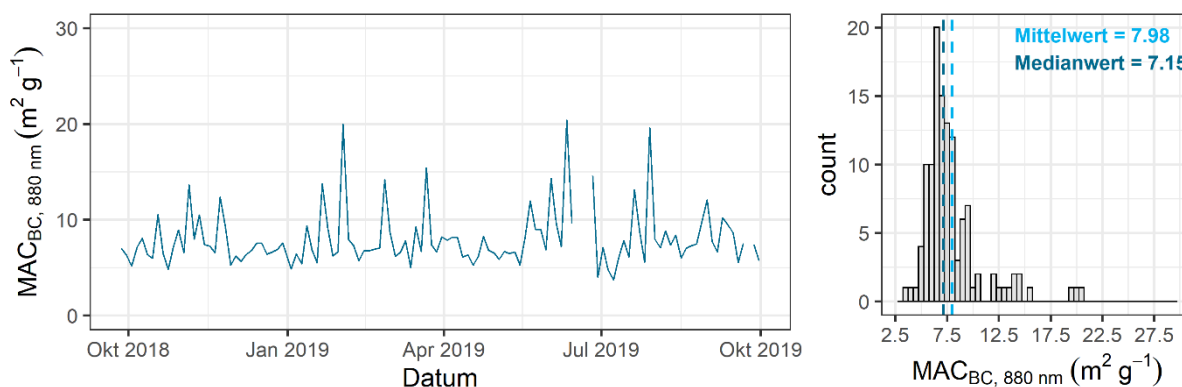
sind (Wedding Amrumer Str., Neukölln Nansenstr. und Friedrichshain Frankfurter Allee), lagen die mittleren MAC-Werte zwischen 7,5 und 8,1 $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$. Dies sind typische Werte für BC-Partikel mit sehr geringem organischem Anteil aus Verbrennungsprozessen fossiler Brennstoffe. Etwas höhere MAC-Werte im Mittel von 9,79 $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ wurden an der Station Buch gemessen, was durch eine Zunahme der Menge an organischen Kohlenstoff auf dem Rußkern erklärt werden kann. Eine Zunahme der organischen Hülle kann eine Folge der Alterung des Aerosols durch, mittel- und weiträumigen Transport, oder durch nahegelegenen Biomassen Verbrennungsquellen erklärt werden kann.

Tabelle 11: Statistische Zusammenfassung des Massenabsorptions-Querschnitts

| Statistik | Station | | | |
|--|----------------------|-----------------------|-----------------------------------|-----------------------|
| | Wedding Amrumer Str. | Neukölln, Nansen Str. | Friedrichshain, Frankfurter Allee | Buch, Wiltberger Str. |
| Container code | MC010 | MC042 | MC174 | MC077 |
| Mittelwert $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ | 7,98 | 8,21 | 7,53 | 9,79 |
| Standard-Abweichung $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ | 2,96 | 2,95 | 1,69 | 3,66 |

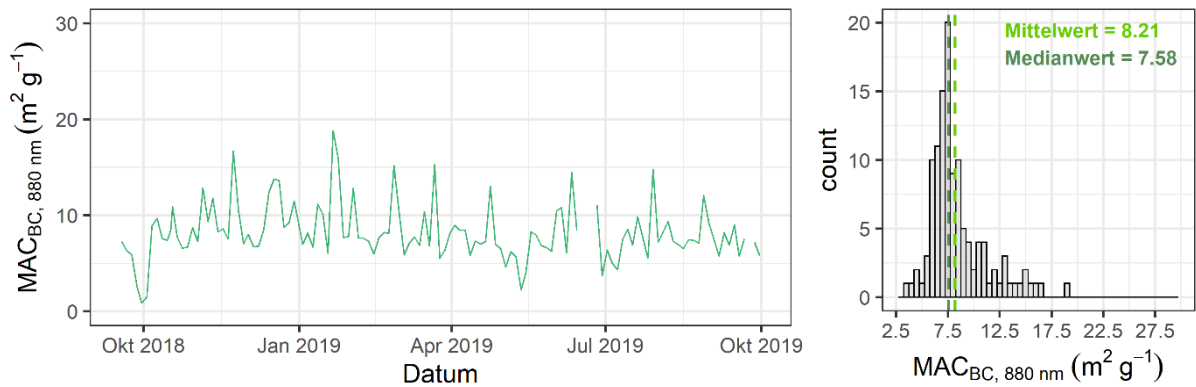
Abbildung 29 bis Abbildung 32 zeigen die Zeitreihen und die Häufigkeitsverteilung der berechneten Werte der MAC für die vier Messstation.

Abbildung 29: MAC-Werte berechnet für Wedding, Amrumer Str.



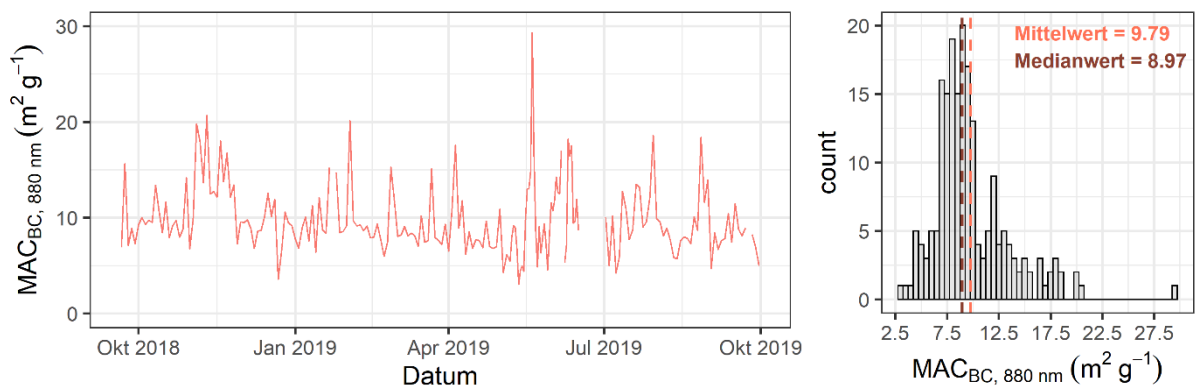
Quelle: TROPOS

Abbildung 30: MAC-Werte berechnet für Neukölln, Nansen Str.



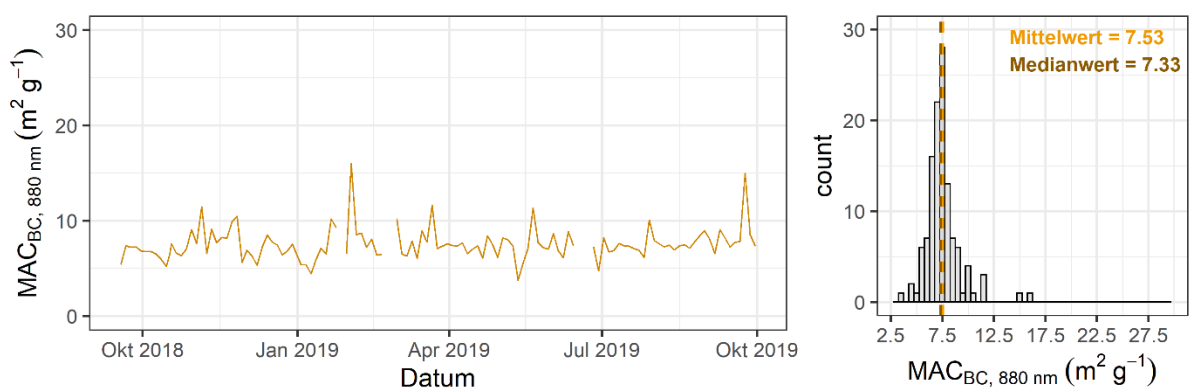
Quelle: TROPOS

Abbildung 31: MAC-Werte berechnet für Buch, Wiltberger Str.



Quelle: TROPOS

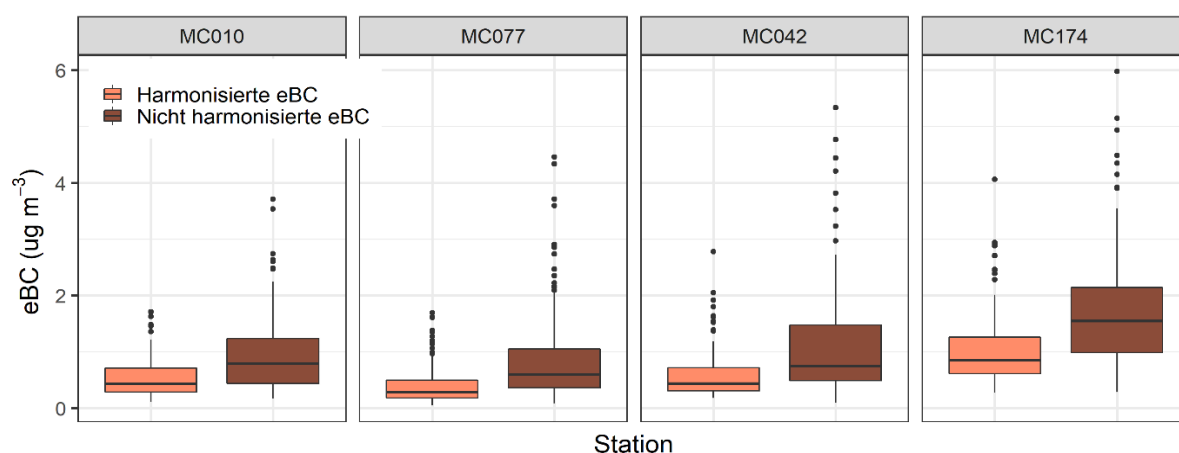
Abbildung 32: MAC-Werte berechnet für Friedrichshain, Frankfurter Allee



Quelle: TROPOS

Die berechneten harmonisierten eBC-Konzentrationen sind in Abbildung 33 und die statistische Zusammenfassung in Tabelle 12 gegeben. Im Durchschnitt sanken die Konzentrationen durch die Harmonisierung zwischen 40 und 50%. Da die Konzentrationen direkt proportional zu den harmonisierten Absorptionskoeffizienten sind, wurden beim Vergleich der Beobachtungen zwischen den Stationen ähnliche Trends beobachtet: höhere eBC-Werte in Friedrichshain-Frankfurter Allee Station, gefolgt von Neukölln-Nansen Str., Wedding-Amrumer Str. und Buch-Wiltberger Str.

Abbildung 33: Harmonisierte und nicht harmonisierte eBC-Massenkonzentrationen



Quelle: TROPOS

Tabelle 12: Statistische Zusammenfassung der harmonisierten eBC-Massenkonzentrationen

| Statistik | Station | | | |
|--|-------------------------|--------------------------|--------------------------------------|--------------------------|
| | Wedding Amrumer Str. | Neukölln, Nansen Str. | Friedrichshain, Frankfurter Allee | Buch, Wiltberger Str. |
| Container code | MC010 | MC042 | MC174 | MC077 |
| Mittelwert $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,53 | 0,60 | 1,03 | 0,39 |
| Minimum $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,11 | 0,18 | 0,28 | 0,05 |
| Maximum $\mu\text{g m}^{-3}$ | 1,71 | 2,78 | 4,06 | 1,69 |
| Standard- Abweichung $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,36 | 0,45 | 0,64 | 0,31 |
| Medianwert $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,43 | 0,44 | 0,85 | 0,28 |
| P25% $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,29 | 0,31 | 0,61 | 0,18 |
| P75% $\mu\text{g m}^{-3}$ | 0,71 | 0,72 | 1,26 | 0,50 |

5.5 Anteil der Biomassenverbrennung an der Lichtabsorption

Model 1: BB Aethalometer Modell (Sandradewi, 2008)

Ein Modell um den "Prozentsatz des durch Biomasseverbrennung entstandenen schwarzen Kohlenstoffs" – BB (%) (Magee Scientific, 2018) zu berechnen ist im Aethalometer enthalten. Das Modell basiert auf den Absorptionskoeffizienten und dem Spektralgang der Absorption, die durch den Absorptions-Ångström-Exponenten (AAE) wiedergegeben wird. Es werden zwei Hauptquellen von lichtabsorbierenden Aerosolen berücksichtigt: Emissionen aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe (ff, engl. fossil fuel) und Emissionen aus der Verbrennung von Biomasse (bb, engl. biomass burning) (Sandradewi, 2008). Die Gesamtaborption lässt sich wie folgt darstellen:

$$b_{abs}(\lambda) = b_{abs}(\lambda)_{bb} + b_{abs}(\lambda)_{ff} \quad Gl. 9$$

Darin sind $b_{abs}(\lambda)$ gesamte Absorptionskoeffizient bei der gegebenen Wellenlänge, $b_{abs}(\lambda)_{ff}$ der Absorptionskoeffizient aus Quellen fossiler Brennstoffe und $b_{abs}(\lambda)_{bb}$ der Absorptionskoeffizient aus Biomassenverbrennung.

Die Berechnungen basieren auf den Werten der Absorptionskoeffizienten bei 470 nm und 950 nm. Dabei absorbieren Partikel aus Biomassenverbrennung Licht im nahen UV sehr stark aber kaum im Nahinfrarot (brauner Kohlenstoff). Schwarzer Kohlenstoff aus Verbrennung fossiler Brennstoffe ist dagegen für die Gesamtaborption im nahen Infrarot verantwortlich. Für die jeweiligen Aerosolquellen werden die Beziehungen zwischen den Absorptionskoeffizienten und dem jeweiligen AAE durch Gl. 10 und Gl. 11 dargestellt. Die Gesamtaborption bei 470 und 950 nm wird durch Gl. 12 und Gl. 13 gegeben.

$$\frac{b_{abs}(470 \text{ nm})_{ff}}{b_{abs}(950 \text{ nm})_{ff}} = \left(\frac{470}{950}\right)^{-\alpha_{ff}} \quad Gl. 10$$

$$\frac{b_{abs}(470 \text{ nm})_{bb}}{b_{abs}(950 \text{ nm})_{bb}} = \left(\frac{470}{950}\right)^{-\alpha_{bb}} \quad Gl. 11$$

$$b_{abs}(470 \text{ nm}) = b_{abs}(470 \text{ nm})_{ff} + b_{abs}(470 \text{ nm})_{bb} \quad Gl. 12$$

$$b_{abs}(950 \text{ nm}) = b_{abs}(950 \text{ nm})_{ff} + b_{abs}(950 \text{ nm})_{bb} \quad Gl. 13$$

Darin sind $b_{abs}(\lambda)_{ff}$ der Absorptionskoeffizient von fossilen Brennstoffen, $b_{abs}(\lambda)_{bb}$ der Absorptionskoeffizient durch Biomassenverbrennung, α_{ff} der Absorptions Ångström Exponent für fossile Brennstoffe, α_{bb} der Absorptions Ångström Exponent für Biomassenverbrennungs-Produkte und λ die Wellenlänge.

In dem im AE33 verwendeten Modell nach Sandradewi et al. (2008) werden Werte von $\alpha_{ff}=1,0$ für Verbrennungsprodukte aus fossilen Brennstoffen und Werte von $\alpha_{bb}=2,0$ für Produkte aus Biomassenverbrennung verwendet. Mit diesen Angaben kann der Anteil der Absorption aus

Biomassenverbrennung an der Gesamtabsorption für eine gegebene Wellenlängen bestimmt werden.

$$BB(\%) = \frac{b_{abs}(950\text{ nm})_{bb}}{b_{abs}(950\text{ nm})} \quad Gl. 14$$

Die prozentualen Anteile des schwarzen Kohlenstoffs aus Biomassenverbrennung bzw. Verbrennung fossiler Brennstoffe werden wie folgt berechnet:

$$eBC_{bb} = eBC * \frac{BB(\%)}{100} \quad Gl. 15$$

$$eBC_{ff} = eBC - eBC_{bb} \quad Gl. 16$$

Limitierungen des Modells

Obwohl das Modell vielfach verwendet wird, um die Beiträge der Biomasseverbrennung zu den Schwarzkohle-Massekonzentrationen abzuschätzen (Favez et al., 2010; Fuller et al., 2014; Helin et al., 2018; Herich et al., 2011; Martinsson et al., 2017), besteht eine erhebliche Unsicherheit bei den abgeleiteten Werten von BB(%) (Harrison et al., 2013).

In Modellalgorithmus verwendet spezifische Werte für AAE für Aerosole aus fossilen Brennstoffen ($\alpha_{ff} = 1,0$) und Biomasseverbrennung ($\alpha_{bb} = 2,0$). Obwohl das Gerätehandbuch die Möglichkeit der Feinabstimmung des Algorithmus durch die Einführung lokaler Werte von AAE abhängig vom Untersuchungsort vorschlägt, vertrauen die Benutzer des Geräts in der Regel den Ergebnissen mit den voreingestellten Werten von AAE. In mehreren Studien wurden Werte für AAE für Aerosole aus der Verbrennung fossiler Brennstoffe α_{ff} im Bereich von 0,9 bis 1,1 (Bond et al., 2013; Kirchstetter et al., 2004; Liu et al., 2018) und für Aerosol aus der Verbrennung von Biomasse α_{bb} im Bereich von 1,3 bis 4,5 (Garg et al., 2016; Martinsson et al., 2017; Russell et al., 2010) abgeleitet. Die Werte von AAE hängen von der Verbrennungseffizienz, der chemischen Zusammensetzung des Brennstoffs, dem Mischungszustand der Aerosole und ihrer Partikelgröße ab (Bond et al., 2013; Garg et al., 2016; Liu et al., 2018).

Das Modell ist stark empfindlich gegenüber den Werten von α_{ff} und α_{bb} . Eine Sensitivitätsanalyse von BB(%) wurde durch Variation von AAE durchgeführt, wobei auch Werte verwendet wurden, die zuvor in den Studien *Senat Berlin* (2018a, 2018b) abgeleitet wurden. Die für die Empfindlichkeitsanalyse verwendeten AAE sind in Tabelle 13 aufgeführt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 34 im Abschnitt der Ergebnisse dargestellt.

Tabelle 13: Werte der Absorption-Ängström-Exponenten für eine Sensitivitätsstudie

| Absorption-Ängström-Exponent (AAE) | AE33 (Sandradewi, 2008) | Berlin (Clemen et al., 2018) | Senat Berlin 2018 (a) | Senat Berlin 2018 (b) | Melpitz (Cuesta-Mosquera et al., 2020b) |
|------------------------------------|-------------------------|------------------------------|-----------------------|-----------------------|---|
| α_{ff} | 1,0 | 0,9 | 1,0 | 1,1 | 1,0 |
| α_{bb} | 2,0 | 1,9 | 1,6 | 1,7 | 1,4 |

Model 2: TROPOS Modell

Es wird angenommen, dass die gesamte Aerosolabsorption, die bei einer bestimmten Wellenlänge λ gemessen wird, durch den Beitrag von zwei Licht absorbierenden Aerosoltypen erzeugt wird: schwarzer Kohlenstoff und organische Aerosole (OA) (Gl. 17).

$$b_{abs}(\lambda) = b_{abs}(\lambda)_{BC} + b_{abs}(\lambda)_{OA} \quad \text{Gl. 17}$$

Dabei ist $b_{abs}(\lambda)$ der Gesamtabsorptionskoeffizient bei einer bestimmten Wellenlänge, $b_{abs}(\lambda)_{BC}$

ist der Absorptionskoeffizient von schwarzem Kohlenstoff und $b_{abs}(\lambda)_{OA}$ ist der Absorptionskoeffizient für organische Aerosolpartikel.

Der spektrale Verlauf der Lichtabsorption von BC und OA Aerosolen folgt einem Potenzgesetz mit den jeweiligen Ångström Exponenten $-\alpha_{BC}$ und $-\alpha_{OA}$

$$\frac{b_{abs}(\lambda_1)_{BC}}{b_{abs}(\lambda_2)_{BC}} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-\alpha_{BC}} \quad \text{Gl. 18}$$

$$\frac{b_{abs}(\lambda_1)_{OA}}{b_{abs}(\lambda_2)_{OA}} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-\alpha_{OA}} \quad \text{Gl. 19}$$

Darin sind α_{BC} der Absorptions-Ångström-Exponent (AAE) von schwarzem Kohlenstoff und α_{OA} der Absorptions-Ångström-Exponent von organischen Aerosolen.

Der Wert von AAE für schwarzen Kohlenstoff wird mit $\alpha_{BC} = 1$ angenommen, in Übereinstimmung mit in der Literatur berichteten Werten ($0.9 < \alpha_{BC} < 1.1$) Bond et al., 2013; Kirchstetter et al., 2004; Liu et al., 2018). Für die organischen Aerosole wurde α_{OA} aus repräsentativen Messungen für einen ländlichen Hintergrund in Slowenien übernommen. Der Untersuchungsort war das Dorf Retje in der Gemeinde Loški Potok. An diesem Standort ist die Holzverbrennung in den Wintermonaten die Hauptquelle für organische Aerosolpartikel. Die lokalen Verkehrsemissionen sind in dem Gebiet sehr gering. Im Durchschnitt werden weniger als 100 Fahrzeuge pro Tag gezählt, und die nächsten Industriebetriebe befinden sich mehr als 10 km entfernt (Glojek et al., 2020).

Der Wert für AAE und der Massenabsorptionsquerschnitt für organische Aerosole M_{OA} (470 nm), die lokal durch die Verbrennung von Biomasse erzeugt werden, wurden anhand von Messungen der Aerosolabsorption bei mehreren Wellenlängen und Messungen der Aerosolmassenkonzentrationen während der Winterzeit in Zeiten mit hoher atmosphärischer Stabilität berechnet. Aus den Daten von Loški Potok ergibt sich $\alpha_{OA} = 1,9$ für den Wellenlängenbereich von 470-950 nm.

Mit den Werten von $\alpha_{OA} = 1,9$ und $\alpha_{BC} = 1$ können Gleichung 18 und 19 für die Wellenlängenpaare 470 und 950 nm geschrieben werden als:

$$\frac{b_{abs}(470)_{BC}}{b_{abs}(950)_{BC}} = \left(\frac{470}{950}\right)^{-1}$$

$$\frac{b_{abs}(470)_{OA}}{b_{abs}(590)_{OA}} = \left(\frac{470}{590}\right)^{-1.9}$$

Durch Kombination dieser Gleichungen und unter der Annahme, $b_{abs}(950) = b_{abs}(950)_{BC}$, d.h., dass die Absorption bei 950 nm durch BC dominiert wird, erhält man:

$$b_{abs}(470) = b_{abs}(950) * \frac{950}{470} + \frac{M_{OA} * MAC(590)_{OA}}{\left(\frac{470}{590}\right)^{1.9}}$$

Darin sind M_{OA} die Massenkonzentration von organischen Aerosolen und $MAC(590)_{OA}$ der zugehörige Massenabsorptionskoeffizient bei der Wellenlänge 590 nm.

$$M_{OA} = \frac{\left(b_{abs}(470) - b_{abs}(950) * \frac{950}{470}\right) * \left(\frac{470}{590}\right)^{1.9}}{MAC(590)_{OA}} \quad Gl. 20$$

Es sei hier darauf hingewiesen, dass alle Berechnungen unter Verwendung der harmonisierten Absorption durchgeführt wurden, wie sie in Abschnitt 10.3 (Gl. 6) beschrieben wurden.

Die Gesamtmasse des organischen Aerosols M_{OA} wird durch das durchschnittliche OC/EC-Verhältnis aus Filtermessungen geteilt, um die gesamte EC-Masse zu berechnen, die durch die Verbrennung von Biomasse erzeugt wird (EC_{bb}). Hier wird die Masse von OA durch die OC-Masse ersetzt. Aus Gründen der Konsistenz entspricht der im Modell verwendete Wert von OC/EC dem für Loški Potok, für Perioden mit hohen Konzentrationen von Biomasseverbrennungsaerosolen. Da M_{OA} mit der harmonisierten Absorption berechnet wird, gilt mit $EC_{bb} = eBC_{bb}$:

$$EC_{bb} = \frac{M_{OA}}{\left(\frac{OC}{EC}\right)_{bb}} = eBC_{bb} \quad Gl. 21$$

Die eBC-Masse aus der Verbrennung von fossilen Brennstoffen eBC_{ff} wird durch:

$$eBC_{ff} = eBC^H - EC_{bb} \quad Gl. 22$$

berechnet, wobei eBC^H die harmonisierte gemessenen eBC Massenkonzentration ist.

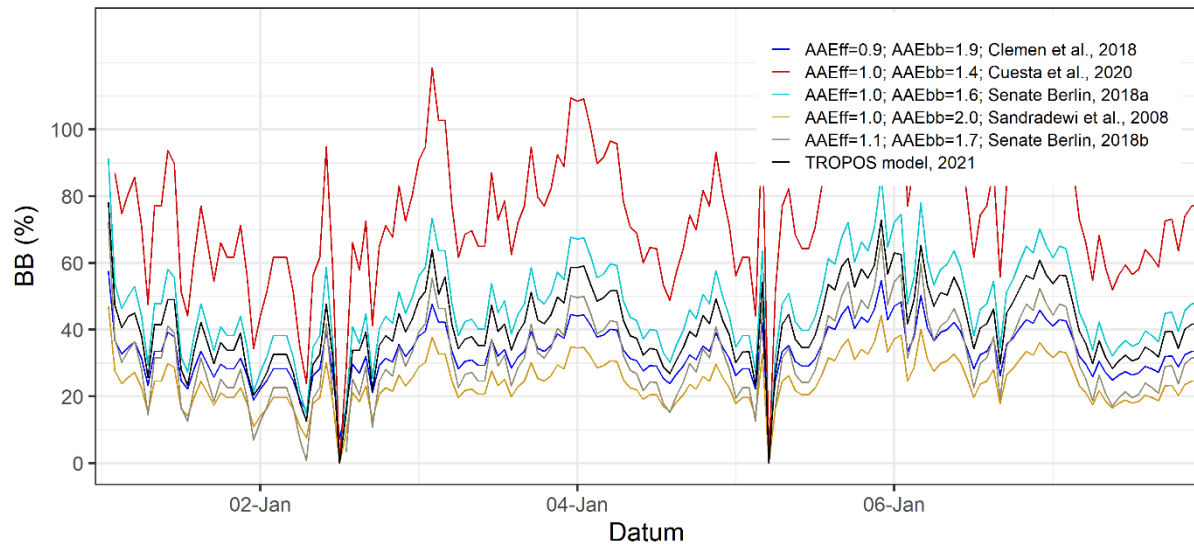
5.5.1 Ergebnisse

Sensitivitätsanalyse für den Parameter BB(%)

Abbildung 34 zeigt exemplarisch BB(%) -Werte für einen Zeitraum von einer Woche gemessen an der Station Wedding, Amrumer Str. Dabei wurden die Ausgangsparameter α_{ff} und α_{bb} aus Tabelle 13 übernommen. Das Modell nach (Sandradewi, 2008) liefert Werte überwiegend im Bereich zwischen 15 und 30%. Für konstante Werte von $\alpha_{ff} = 1.0$ ist der Wert von BB negativ mit α_{bb} korreliert. Bei einem Wert von $\alpha_{bb} = 1.4$ (Cuesta-Mosquera et al., 2020b) kann der BB(%) -Wert 100% überschreiten. Nach der Definition, dass BB(%) den Anteil der Absorption durch Biomassenverbrennungs-Produkte an der gesamten Absorption beschreibt, ist dieses Ergebnis physikalisch nicht sinnvoll. Die Werte des BB-Anteils wurden ebenfalls berechnet, indem der eBC_{bb} aus dem TROPAS-Modell durch die gesamte harmonisierte BC-Masse geteilt wurde. Diese BB-Werte lagen überwiegend zwischen 20 und 60 % und damit höher als die mit der Standardeinstellung im Sandradewi-Modell berechneten Werte.

Diese einfache Sensitivitätsstudie unter Verwendung von Initialisierungsparametern aus der Literatur zeigt, dass der absolute Wert von BB(%) sehr großen Unsicherheiten unterliegt.

Abbildung 34: Sensitivitätsanalyse für den BB(%) -Wert gezeigt am Beispiel von Wedding-Amrumer Str.



Quelle: TROPOS

Diese Ergebnisse stimmen mit den Ergebnissen einer Sensitivitätsstudie in Deng et al. (2020) überein. In dieser Studie wurde auch beobachtet, dass eBC_{ff} und eBC_{bb} sehr sensible auf Änderungen von α_{ff} und $|\alpha_{bb}|$ reagieren.

Vergleich zwischen dem Sandradewi Modell und dem TROPOS-Modell

Tabelle 14 fasst die Ergebnisse für die abgeleiteten Massenkonzentrationen von schwarzem Kohlenstoff, die der Verbrennung von Biomasse und den Emissionen fossiler Brennstoffe zugeschrieben werden, zusammen. Ergebnisse werden für die Modelle nach Sandradewi (2008) ($\alpha_{ff} = 1,0$; $\alpha_{bb} = 2,0$) und TROPOS (2021) gezeigt. Die zusätzlich zu den mittleren Konzentrationen angegebenen Unsicherheiten stellen die einfache Standardabweichung dar.

Für alle Messstationen war die durchschnittliche Masse des vom TROPOS-Modell berechneten Werts von eBC_{bb} höher als der Wert nach dem Sandradewi-Modell (Wedding-Amrumer Str. MC010: höher um 69%; Neukölln-Nansen Str., MC042: höher um 75%; Friedrichshain-Frankfurter Allee, MC174: höher um 60%; Buch-Wiltberger Str., MC077: höher um 108%). Folglich war der Anteil, der den Emissionen fossiler Brennstoffe eBC_{ff} zugeschrieben wurde, geringer als der Wert, der durch das Sandradewi Modell berechnet wurde (Wedding-Amrumer Str., MC010: 21% niedriger; Neukölln-Nansen Str., MC042: 27% niedriger; Friedrichshain-Frankfurter Allee, MC174: 15% niedriger; Buch-Wiltberger Str., MC077: 39% niedriger).

Im gesamten Untersuchungszeitraum (September 2018 - September 2019) wurden die höchsten mittleren Konzentrationen von eBC_{bb} für Friedrichshain-Frankfurter Allee bestimmt (Sandradewi Modell: $0,20 \pm 0,21$; TROPOS Modell: $0,32 \pm 0,34$). Außerdem wies diese Station die höchsten Konzentrationen von eBC_{ff} unter allen Messstationen auf (Sandradewi Modell: $0,78 \pm 0,59$; TROPOS Modell: $0,66 \pm 0,51$). Es sei hier nochmal angemerkt, dass sich die Station Friedrichshain in der Nähe einer stark befahrenen Straße befand. Die niedrigsten eBC_{bb} Konzentrationen wurden für Wedding-Amrumer Str., einem städtischen Wohngebiet, ermittelt (Sandradewi Modell: $0,13 \pm$

0,16; TROPOS Modell: $0,22 \pm 0,27$). Die Station Buch dagegen zeigte die geringsten eBC_{ff} Konzentrationen (Sandradewi Modell: $0,31 \pm 0,33$; TROPOS Modell: $0,19 \pm 0,20$). Diese Station wird als städtischer Hintergrund betrachtet und liegt in einem Waldgebiet.

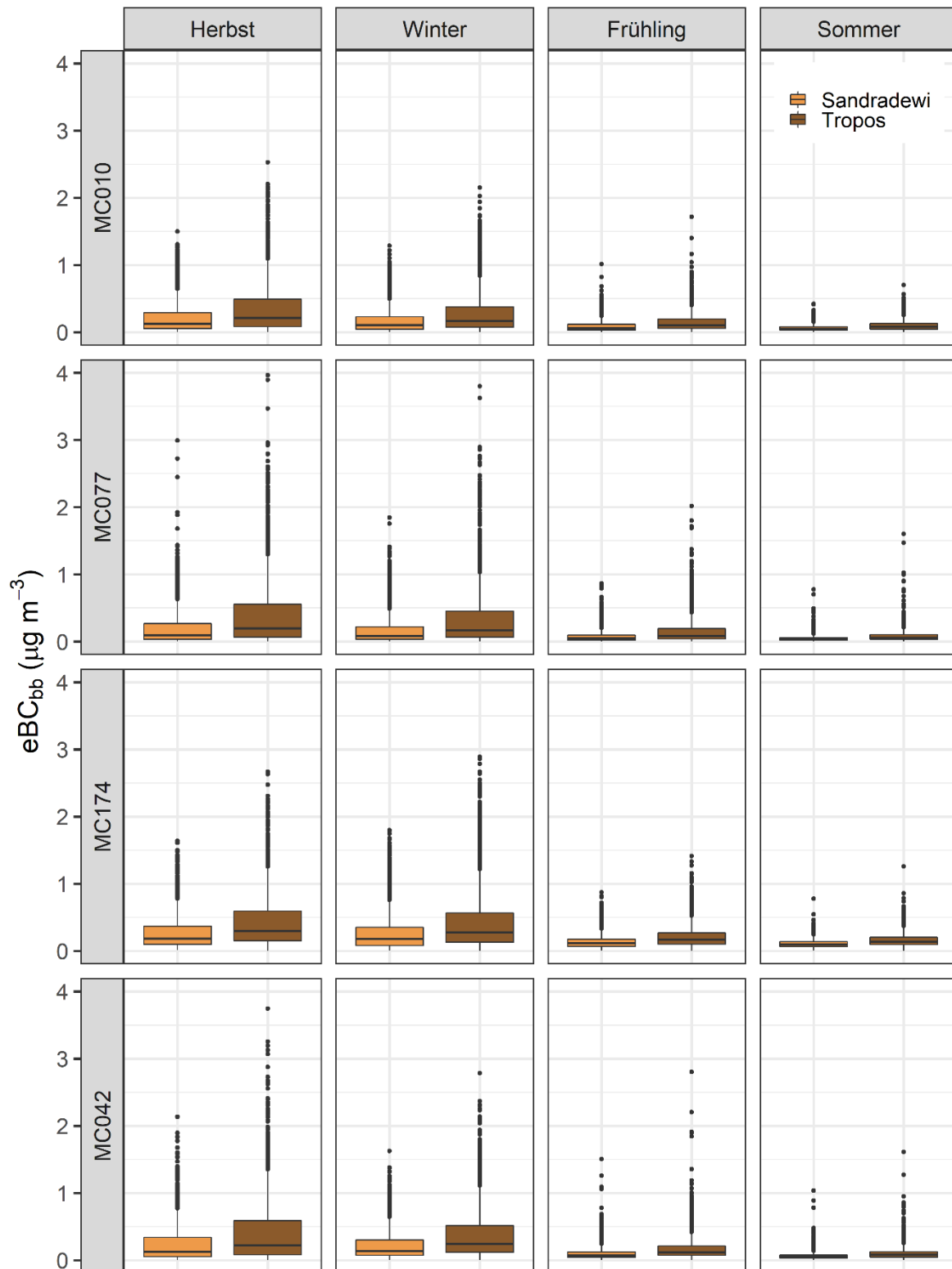
Tabelle 14: Zusammenfassung der eBC -Massenkonzentrationen, die auf die Verbrennung von Biomasse und fossilen Brennstoffen zurückzuführen sind

| Massenkonzentration | Mittelwert in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Minimum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Maximum in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Standard- Abweichung in $\mu\text{g m}^{-3}$ | Medianwert in $\mu\text{g m}^{-3}$ |
|--|---------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|--|---------------------------------------|
| Wedding Amrumer Str. (MC010) | | | | | |
| eBC_{bb} (TROPOS, 2021) | 0,22 | 0,00 | 2,53 | 0,27 | 0,12 |
| eBC_{bb} (Sandradewi, 2008) | 0,13 | 0,00 | 1,50 | 0,16 | 0,73 |
| eBC_{ff} (TROPOS, 2021) | 0,30 | 0,00 | 3,21 | 0,25 | 0,24 |
| eBC_{ff} (Sandradewi, 2008) | 0,38 | 0,01 | 3,57 | 0,33 | 0,30 |
| Neukölln, Nansen Str. (MC042) | | | | | |
| eBC_{bb} (TROPOS, 2021) | 0,28 | 0,00 | 3,74 | 0,36 | 0,14 |
| eBC_{bb} (Sandradewi, 2008) | 0,16 | 0,00 | 2,14 | 0,20 | 0,08 |
| eBC_{ff} (TROPOS, 2021) | 0,30 | 0,00 | 4,45 | 0,29 | 0,22 |
| eBC_{ff} (Sandradewi, 2008) | 0,41 | 0,01 | 5,12 | 0,41 | 0,29 |
| Friedrichshain, Frankfurter Allee (MC174) | | | | | |
| eBC_{bb} (TROPOS, 2021) | 0,32 | 0,00 | 2,89 | 0,34 | 0,19 |
| eBC_{bb} (Sandradewi, 2008) | 0,20 | 0,01 | 1,80 | 0,21 | 0,13 |
| eBC_{ff} (TROPOS, 2021) | 0,66 | 0,02 | 10,30 | 0,51 | 0,54 |
| eBC_{ff} (Sandradewi, 2008) | 0,78 | 0,02 | 6,54 | 0,59 | 0,64 |
| Buch, Wiltberger Str. (MC077) | | | | | |
| eBC_{bb} (TROPOS, 2021) | 0,25 | 0,00 | 6,19 | 0,38 | 0,10 |
| eBC_{bb} (Sandradewi, 2008) | 0,12 | 0,00 | 2,99 | 0,18 | 0,05 |
| eBC_{ff} (TROPOS, 2021) | 0,19 | 0,00 | 8,22 | 0,20 | 0,13 |
| eBC_{ff} (Sandradewi, 2008) | 0,31 | 0,00 | 4,42 | 0,33 | 0,20 |

Die saisonalen Schwankungen der eBC_{bb} -Massekonzentrationen der einzelnen Messstation sind in Abbildung 35 dargestellt. Höhere Konzentrationen wurden im Herbst und Winter beobachtet.

Spitzenwerte von eBC_{bb} traten während des Winters an der Station Buch-Wiltberger Str. (MC077) mit Konzentrationen bis zu $2,99 \mu\text{g m}^{-3}$ (Sandradewi Modell) und $> 4,0 \mu\text{g m}^{-3}$ (TROPOS Modell), auf. Niedrigere oder ähnliche Konzentrationen von eBC_{bb} wurden über das ganze Jahr an den Stationen Wedding-Amrumer Str., Neukölln-Nansen Str. (MC042) und Friedrichshain-Frankfurter Allee (MC174) gemessen.

Abbildung 35: Saisonale Variation der eBC_{bb} -Massenkonzentrationen, die auf die Verbrennung von Biomasse zurückzuführen sind

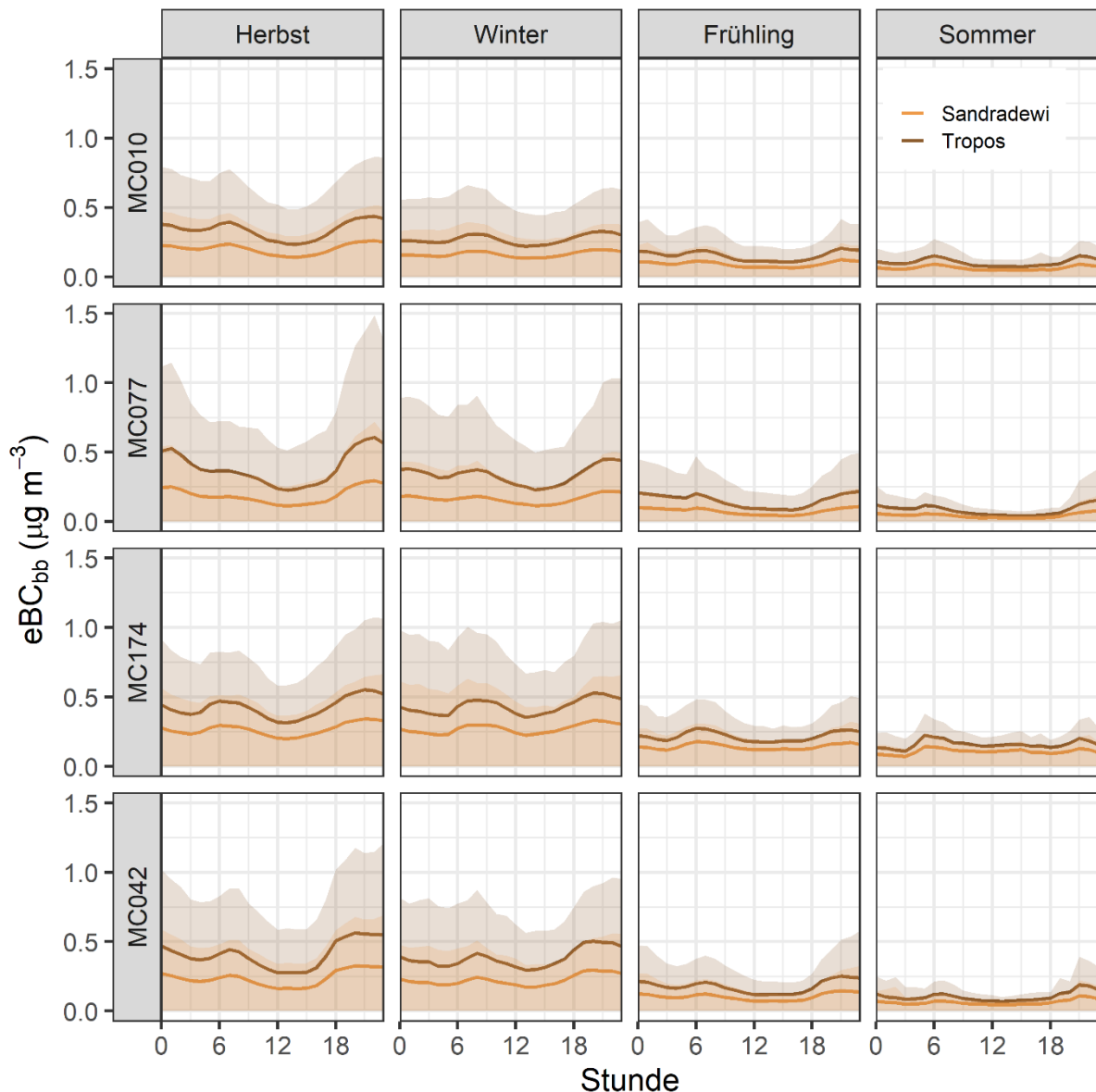


MC010: Wedding-Amrumer Str. Station; MC077: Buch-Wiltberger Str. Station; MC174: Friedrichshain-Frankfurter Allee Station; MC042: Neukölln-Nansen Str. Station

Quelle: TROPOS

Abbildung 36 zeigt den stündlichen Verlauf der eBC_{bb} -Massenkonzentrationen nach Jahreszeit und Messstation. Im Tagesverlauf wurden zwei leichte Maxima beobachtet, die morgens und abends auftraten, und minimale Werte zur Mittagszeit. Dieses Verhalten war im Herbst und Winter am stärksten ausgeprägt. Im Gegensatz dazu waren die stündlichen Konzentrationen im Frühjahr und Sommer deutlich stabiler über den Tag verteilt.

Abbildung 36: Stündliche Variation der eBC_{bb} -Massekonzentrationen, die auf die Verbrennung von Biomasse zurückzuführen sind



MC010: Wedding-Amrumer Str. Station; MC077: Buch-Wiltberger Str. Station; MC174: Friedrichshain-Frankfurter Allee Station; MC042: Neukölln-Nansen Str. Station

Quelle: TROPOS

5.6 Schlussfolgerungen

Die räumlichen und zeitlichen Änderungen der eBC Konzentrationen wurden mittels Aethalometern (Model AE33) an vier Stationen in Berlin untersucht. Es wurden höhere eBC Konzentrationen an Stationen mit direktem Einfluss von Straßen mit mittlerem und hohem Autoverkehr beobachtet (Wedding-Amrumer Str., Neukölln-Nansenstr., und Friedrichshain-Frankfurter Allee). Die niedrigsten Konzentrationen wurden an der Station Buch-Wiltberger Str., die in der Nähe eines Waldgebietes liegt, beobachtet. Die Werte sind aber nur geringfügig niedriger als die Werte, die in Wedding-Amrumer Str. und Neukölln-Nansenstr. gemessen wurden.

Aus der Analyse der stündlichen, wöchentlichen und monatlichen Trends wurde der Einfluss der Verkehrsemissionen deutlich. Im Allgemeinen wurden während der Hauptverkehrszeiten an Wochentagen höhere Konzentrationen festgestellt, mit einer sichtbaren Reduzierung an Sonntagen. An der Station Buch zeigte der Trend eine leichte Zunahme der eBC-Masse an den Samstagabenden, was mit Emissionen aus Biomasseverbrennung in Verbindung gebracht werden kann. Im Herbst und Winter wurde ein Anstieg der eBC-Massenkonzentrationen gemessen, der auf die Verbrennung von Biomasse zurückzuführen ist.

Für die vier Messstationen wurden lokale Werte der Massenabsorptions-Querschnitte (MAC) bestimmt und zur Neuberechnung der eBC-Massenkonzentrationen herangezogen. Die Werte von MAC zeigen leichte Unterschiede zwischen den Stationen auf. Für Stationen mit einem stärkeren Einfluss durch Verkehrsemissionen ist der Wert von MAC tendenziell niedriger als für Stationen, die stärker von Biomassenverbrennung beeinflusst werden.

Die abgeleiteten eBC-Massenkonzentrationen wurden zusätzlich harmonisiert, wodurch die Absolutwerte an ein anerkanntes Referenz Messgerät angeglichen wurden. Die harmonisierten eBC-Konzentrationen, die anhand der lokalen MAC-Werte berechnet wurden, sanken im Durchschnitt um 40 bis 50% im Vergleich zu den Konzentrationen, die von den Aethalometern in den Messstationen direkt gemessen wurden. Durch diese Maßnahme wird ein realistischerer Vergleich mit der im Rahmen des Projekts durchgeführten Modellrechnungen ermöglicht.

Die Verwendung des Aethalometermodells zur Abschätzung des Biomasse-Verbrennungsanteils (BB%-Wert) und der eBC_{bb}- und eBC_{ff}-Massenkonzentrationen, muss von Fall zu Fall sorgfältig abgewogen werden. Erstens verwendet das Modell in den Aethalometern feste Werte für die Absorptions-Ängström-Exponenten (AAE), die nicht immer die Aerosole an den Messstellen repräsentieren. Das Auftreten des Wertes von AAE ist sehr komplex und hängt von der Verbrennungseffizienz, der chemischen Zusammensetzung und der Partikelmorphologie ab. Zweitens wurde bei der Sensitivitätsanalyse festgestellt, dass sich die Ergebnisse für BB(%) deutlich ändern, sobald die AAE-Werte im Algorithmus geändert werden, und auch über 100% hinausgehen können, was nicht realistisch ist. Daher sollte die Verwendung des BB(%) Wertes als Tracer für die Biomasseverbrennung kritisch betrachtet werden.

Als Alternative zur Abschätzung der eBC Massenkonzentrationen aus Biomasseverbrennung wurde ein neues Modell vorgeschlagen und angewandt. Dieses Modell verwendet Messungen des Lichtabsorptionskoeffizienten, des Massenabsorptionsquerschnitts (MAC) und der Absorptions-Ängström-Exponenten (AAE) von organischem Kohlenstoff (α_{OC}) und schwarzem Kohlenstoff (α_{BC}). Der Anteil von schwarzem Kohlenstoff aus der Verbrennung von Biomasse wurde durch eine Kalibrierung (Loški Potok Experiment) ermittelt und auf die Berlin-Messungen übertragen. Eine ähnliche Annahme wird auch in dem Sandradewi Modell gemacht, auch wenn dies nicht explizit in dem Modell erwähnt wird. Die Ergebnisse beider Modelle zeigen für eBC_{bb} unterschiedliche Absolutwerte, aber ähnliche Tendenzen.

6 Regionale Modellierung

6.1 LOTOS-EUROS Modellbeschreibung

LOTOS-EUROS ist ein Open-Source 3D-Chemie-Transportmodell, das die Prozesse der Emission, Konzentration und Deposition chemischer Stoffe in der unteren Troposphäre simuliert. Das Modell wurde am TNO in Zusammenarbeit mit Partnern wie RIVM und der Freien Universität Berlin entwickelt. Das Modell wird sowohl für wissenschaftliche Forschungsarbeiten als auch für gesetzliche Beurteilungen, zum Beispiel für Prognosen der Luftqualität oder Szenario-Rechnungen in Klimastudien eingesetzt. Das Modell ist Teil des regionalen Ensembles Copernicus Atmospheric Monitoring Service (CAMS), das operative Prognosen und Analysen für ganz Europa liefert. In diesem Zusammenhang wird das Modell regelmäßig aktualisiert und validiert, indem Daten aus Boden- und Satellitenbeobachtungen verwendet werden. Für eine detaillierte Beschreibung des LOTOS-EUROS-Modells, seine Historie und Anwendungen, verweisen wir auf Manders et al. (2017) und darin angegebene Referenzen.

Das LOTOS-EUROS-Modell simuliert Luftschadstoffkonzentrationen in der Troposphäre auf einem regelmäßigen Euler-Gitter mit variabler Auflösung über Europa. Das vertikale Gitter basiert auf geländefolgenden Koordinaten und erstreckt sich bis zu 5 km über dem Meeresspiegel. Das Modell verwendet dynamische Grenzschichthöhen zur Bestimmung der vertikalen Struktur, d. h. die vertikalen Schichten variieren in Raum und Zeit. Diese Struktur macht das Modell weniger rechenintensiv und ist ein realistischer Ansatz für eine horizontale Auflösung im Bereich 5-25 km. Eine relativ neue Entwicklung ist, dass das Modell auch auf den vertikalen Schichten der treibenden Meteorologie gerechnet werden kann. Dies erlaubt eine bessere Darstellung des vertikalen Austauschs von Stoffen, was vor allem bei einer höheren horizontalen Auflösung (2-5 km) wichtig ist.

Das Modell ist von mittlerer Komplexität in dem Sinne, dass die Prozessbeschreibungen optimiert sind auf die Rechenanforderungen. Dadurch können die Emissionen, Konzentrationen und Deposition mit einer stündlichen Frequenz über mehrere Jahre in akzeptabler Rechenzeit berechnet werden. In dem Euler-Gitter werden die Konzentrationsänderungen durch Advektion, vertikale Durchmischung, chemische Umwandlung, physikalische Aerosol-Prozesse und Abreicherung durch nasse und trockene Deposition berechnet. Die Prozessbeschreibung erfordert Informationen über die anthropogenen Emissionen, die Flächennutzung und die meteorologischen Bedingungen. Die Ergebnisse des Modells werden in Ausgabedateien gespeichert, welche die modellierten Konzentrationen und Depositionsflüsse enthalten

6.2 Modelleinrichtung

Es wurden zwei Versionen von LOTOS-EUROS verwendet. Für die Simulation der Ausgangssituation, Schritt 1, und die Szenarien- wurde v2.2.000 verwendet. Für die Simulationen der Läufe mit optimierten Emissionen wurde auf v2.2.001 gewechselt, Diese Version ist nahezu identisch mit v2.2.000, bietet aber eine optimierte Darstellung der Vertikalschichtung. Im Folgenden werden die Modelleinrichtung, die Eingangsdaten und die Modellparametrisierungen kurz beschrieben. Für eine ausführliche Beschreibung der Prozesse und der verwendeten meteorologischen Variablen verweisen wir auf die LOTOS-EUROS Rerefence Guide (Manders et al, 2016). Für eine schematische Übersicht über die Modellgebiete

verweisen wir auf die Tabelle 15. Eine schematische Übersicht über alle Simulationen finden Sie in Tabelle 16.

Meteorologischer Treiber

Der Auswahl der Meteorologie und Vertikalschichtung des Modells ist vor allem für einen inerten Stoff mit starken lokalen Quellen und Gradienten wie BC wichtig. Dies zeigt Thuerkow et al (2021) mit LOTOS-EUROS für PM in Deutschland. Die meteorologischen Schichten des Treibermodells bestimmen teilweise die Struktur der Vertikalschichtung von LOTOS-EUROS.

Als Grundlage für Schritt 1 und die Szenarien wurden die operationellen Vorhersagen des Europäischen Zentrums für mittelfristige Wettervorhersagen (ECMWF) verwendet. Es wurden die 12h-Vorhersagen mit einer Auflösung von etwa 16 km (F640) verwendet.

Für die hochaufgelösten Simulationen des Zeitraums der Messkampagne wurden die Daten von COSMO-DE verwendet (Consortium for Small-scale Modeling). Mit COSMO-DE in einer Auflösung von $2 \times 2 \text{ km}^2$ ist eine detailliertere Darstellung von räumlichen Differenzen möglich. Dies ist vor allem wichtig im Hinblick auf Unterschiede zwischen Stadt und Umland und innerhalb von Großstädten. Wir verwenden tägliche COSMO-DE Vorhersagedaten, wie sie vom DWD im operationellen Zyklus bereitgestellt werden.

Modellgebiete und Vertikalstruktur

Die Modellierung wurde auf drei verschiedenen Domänen mit Schachtelung der inneren Domänen durchgeführt. Die äußere Domäne (D1) repräsentiert den europäischen Kontinent und reicht von 15°W - 35°E , 35°N - 70°N bei einer Auflösung von $0.5^\circ \times 0.25^\circ \text{ lon} \times \text{lat}$. Die innere Domäne D2 repräsentiert Deutschland mit den angrenzenden Ländern (hauptsächlich Benelux und Frankreich im Westen und Polen im Osten) mit einer um den Faktor 5 höheren Auflösung ($0.1^\circ \times 0.05^\circ \text{ lon} \times \text{lat}$). Diese Auflösung entspricht der Auflösung und Definition des europaweiten Emissionsinventars, das verwendet wurde. Die Ausdehnung der Domäne (2°E , 46°N - 56°N) wurde gewählt, um Unterschiede zwischen den modellierten Konzentrationen in den Nachbarländern und Deutschland sichtbar zu machen und zu interpretieren, und um mit BC-Messungen aus den Niederlanden und Belgien vergleichen zu können. Die innerste Domäne D3 umschließt Deutschland eng und hat eine um einen Faktor 3 höhere Auflösung als D2, also $1/30^\circ \times 1/60^\circ$. Dies entspricht für Deutschland ungefähr $2 \times 2 \text{ km}^2$. Dieses Gitter ist auch genau einen Faktor 2 gröber als die Greta-Emissionen, die als Eingangsdaten für Deutschland verwendet wurden, so dass die Emissionen nicht interpoliert werden müssen. Das Gitter reichte von $5,73^\circ\text{E}$ - $15,366^\circ\text{E}$ und $47,133^\circ\text{N}$ - $55,133^\circ\text{N}$.

Für die Simulation der Grundlage-, Schritt 1 und -die Szenarioläufe wurde der Modellaufbau mit dynamischen vertikalen Schichten verwendet (25 m Oberflächenschicht, Mischungsschicht (=ECMWF-Grenzschichthöhe) + 3 Reservoirschichten bis zu 5 km Höhe). Dies ist eine häufig verwendete Modellkonfiguration, die es erlaubt relativ viele Läufe auszuführen.

Für die endgültigen Simulationen 2015-2019 auf der D2-Domäne wurden die vertikalen Schichten der treibenden ECMWF-Meteorologie verwendet. In Oberflächennähe wurden die ursprünglichen ECMWF-Schichten verwendet, aber mit zunehmender Höhe wurden mehrere ECMWF-Schichten kombiniert, um die Rechenzeit zu reduzieren, wobei die Auflösung nach oben abnahm. Das Modell verwendet 13 Schichten, die bis in $\sim 8 \text{ km}$ Höhe reichten.

Für die Simulationen des Kampagnenzeitraums wurden COSMO-D2-Modellschichten verwendet, wobei 11 Schichten bis zu einer Höhe von $\sim 5 \text{ km}$ reichten. Die untersten drei Schichten wurden direkt von COSMO-D2 übernommen, für nachfolgende Schichten wurden 2 COSMO-Schichten zu einer einzigen LOTOS-EUROS-Schicht kombiniert.

Für D1 wurde kein BC aus externen Randbedingungen bezogen. Für D2 sind die Randbedingungen für BC aus D1 Simulationen entnommen. Gründe dafür sind, dass die BC Konzentrationen aus globalen Modellen wenig akkurat und Hintergrundkonzentrationen von BC über dem Atlantik sehr niedrig sind. Außerdem sind Transportabstände für BC für bodennahe Emissionen relativ gering, so dass die Konzentrationen am Rand wenig Einfluss haben auf BC Konzentrationen in Deutschland. Für einige Szenarioläufe sind Randbedingungen aus D1 neu berechnet.

Zeiträume

Es war ursprünglich vorgesehen, das Jahr 2015 als Basisfall zu verwenden, da dies das letzte Jahr war, für das offiziell gemeldete Emissionen verfügbar waren. Für dieses Jahr waren jedoch extrem wenige Validierungsdaten verfügbar. Für 2017 war die Situation mit verfügbaren Validierungsdaten deutlich besser, daher wurde dieses Jahr gewählt. So können z.B. die Messungen aus dem PM-Ost-Projekt (Heizungssaison 2016-2017) berücksichtigt werden. Um alle Messungen verwenden zu können, wurde auch der Zeitraum September -Dezember 2016 modelliert. Das Jahr 2017 war geprägt durch eine Episode mit relativ hohen PM Konzentrationen im Winter, was dieses Jahr sehr geeignet macht für eine Analyse von Hausbrandszenarien.

Die Meteorologie hat einen wesentlichen Einfluss auf die Konzentrationen. Der Effekt der Meteorologie auf die Jahresmittelkonzentration ist oft höher als der Effekt von Emissionsänderungen für zwei aufeinanderfolgende Jahre. Eine Periode von 5 Jahren bildet den Einfluss der meteorologischen Variabilität auf die Konzentrationen in der Regel gut ab. Deshalb wurde für das Endergebnis mit optimierten Emissionen der Zeitraum 2015-2019 modelliert und durchschnittliche Ergebnisse abgeleitet.

Landnutzung

Es wurden die CORINE2006 Landnutzungsdaten verwendet. Für Bereiche im Modellgebiet, bei denen diese Information nicht verfügbar war, wurden die CORINE/Smiattek (2000) Landnutzungsdaten verwendet.

Prozesse

Black Carbon ist ein inerter Stoff und wird als PM_{2.5} Komponente modelliert. Für die Partikeldeposition wird das Schema von Zhang (Zhang, 2001) verwendet. Das Nassdepositionsmodul berücksichtigt die Sättigung der Wassertröpfchen (Banzhaf et al., 2012). Die horizontale Advektion von Schadstoffen wird nach einem monotonen Advektionsschema berechnet (Walcek, 2000). Im FKZ- 3716 51 203 0 Projekt haben wir für die Stabilität und Deposition über Schneeflächen relevanten Parameter aktualisiert, um eine Konsistenz innerhalb der verschiedenen Prozesse im Modell zu erreichen. Zum Beispiel gehen wir davon aus, dass die Landnutzungsklassen Gras und (unbebautes) Ackerland eine geschlossene Schneedecke haben. Für die Berechnung der Stabilität und des Oberflächenwiderstandes im Modul zur Berechnung der trockenen Deposition werden daher die Oberflächenparameter für Schnee anstelle der Parameter für Ackerland oder Gras verwendet. Zusätzlich haben wir für die Berechnung des Oberflächenwiderstandes im Modul die Einstellungen für Eis verwendet, wenn die Temperaturen unter -5 Grad Celsius liegen. In dieser Situation wirkt die Schneeoberfläche eher wie eine Eisfläche als eine Wasserfläche. Dies hat zur Folge, dass die Stabilität der Atmosphäre erhöht ist und die Effizienz der Deposition reduziert wird.

6.3 Emissionen

Für das Modellgebiet außerhalb Deutschlands wurden, wie zuvor in Abschnitt 4.4. beschrieben, die CAMS81_RWC-Emissionen verwendet, die europaweit konsistente Faktoren für kondensierbare Emissionen aus der privaten Holzverbrennung enthalten. Für Deutschland wurden die Daten vom UBA bereitgestellt, wobei das Greta-Tool (UBA, 2016) zur räumlichen Verteilung der offiziell gemeldeten Emissionen verwendet wurde. Das Basisjahr für beide Datensätze ist 2015. Im Schritt 1 wurden die Emissionen für Deutschland mit den vorgeschlagenen Faktoren für die Verbrennung in Haushalten und den Brems- und Reifenabrieb skaliert.

Die Emissionen wurden in der Vertikalen unter Verwendung der EC4MACS/EURODELTA III-Definitionen (adaptiert von Thunis et al 2008) für beide Inventare verteilt. Die Emissionen wurden unter Verwendung von Standard-Emissionsfaktoren von Roemer et al., 2003 (Montats-, Wochen und Tageszeitprofile) über die Zeit verteilt.

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

Eine weitere Verfeinerung der räumlichen und zeitlichen Verteilung der Emissionen ist Teil der Szenarien.

Zusätzlich sind Emissionen von Waldbränden berücksichtigt. Die Emissionen stammen vom CAMS GFAS Waldbrandprodukt (Kaiser et al, 2012), und sind direkt dargestellt als Tageswert von BC Emissionen, werden dann von LOTOS-EUROS in der zweiten Modellschicht über die Stunden verteilt.

6.4 Kennzeichnung (Labeling Ansatz)

Im Rahmen des FP7-Projekts EnerGEO hat TNO ein System zur Verfolgung der Auswirkungen von Emissionskategorien innerhalb einer LOTOS-EUROS-Simulation basierend auf einer Kennzeichnungstechnik entwickelt (Kranenburg et al., 2013). Neben den Spezieskonzentrationen werden die Beiträge der vordefinierten Quellkategorien berechnet. Die Kennzeichnungsroutine wird sowohl für primäre, inerte Aerosol-Tracer als auch für chemisch aktive Tracer mit einem C-, N- (reduziert und oxidiert) oder S-Atom durchgeführt, da diese konserviert und rückverfolgbar sind. Das Quellzuordnungsmodul für LOTOS-EUROS bietet eine Quellzuordnung, die für die aktuellen atmosphärischen Bedingungen gültig ist, da alle chemischen Umwandlungen bei gleichen Konzentrationen von Oxidanten erfolgen. Zu Einzelheiten und Validierung dieses Quellzuordnungsmoduls verweisen wir auf Kranenburg et al.(2013). Die Technik der Quellzuordnung wurde bisher zur Untersuchung der Herkunft von

PM (Episoden) (Hendriks et al., 2016; Timmermans et al., 2017) und Stickstoffdioxid (Schaap et al., 2013) angewendet.

Tabelle 15: Zielregionen, Eingangsdaten und Label Definition

| Zielregion | Eingangsdaten | Label Definition |
|--|---|---|
| Europa D1 (0.5x0.25°) 15°W-35°E 35-70°N | ECMWF Meteorologie 16x16 Km ² | Straßenverkehr, übriger Verkehr, Hausbrand, Wildbrand Berlin, Brandenburg, Baden-Württemberg Deutschland-Restlich Benelux, Frankreich, Schweiz-Österreich-Tschechien, Polen, Dänemark, Übrig |
| Mitteleuropa D2 (0.1x0.05°) 2°W-20°E 46-56°N | ECMWF Meteorologie 16x16 Km ² COSMO-DE Meteorologie 2x2 Km ² Randbedingung von D1 | Straßenverkehr, übriger Verkehr, Hausbrand, Wildbrand Berlin, Brandenburg, Baden-Württemberg, Deutschland-Restlich, Benelux, Frankreich, Schweiz-Österreich-Tschechien, Polen, Dänemark, Übrig |
| Deutschland D3 (0.0333x0.0167) 5.73°W-15.33°E 47.13-55.13°N | COSMO-DE Meteorologie 2x2 km ² Randbedingungen von D2 | Straßenverkehr, übriger Verkehr, Hausbrand, Wildbrand Nansenstraße, Frankfurter Allee, Amrumer Straße, Buch, Berlin-Restlich, Deutschland-Restlich, Übrig |

Tabelle 16: Kennzeichnung der Modellläufe

| Lauf | Zeitraum | Met. Treiber | Emissionen | Kennzeichnung |
|------------|-----------------------------------|-----------------|-----------------|---------------|
| D1_ECMWF_0 | 2015 Sep 2016- Dez 2017 | ECMWF | CAMS GRETA | Grundlage |
| D2_ECMWF_0 | 2015, Sept 2016- Dez2017 | ECMWF | CAMS GRETA | Grundlage |
| D1_ECMWF_1 | 2014- 2018 | ECMWF | CAMS GRETA_1 | Schritt 1 |
| D2_ECMWF_1 | 2014- 2018 | ECMWF | CAMS GRETA_1 | Schritt 1 |

| Lauf | Zeitraum | Met. Treiber | Emissionen | Kennzeichnung |
|----------------|-------------------|--------------------|--|---------------|
| D1_ECMWF_Szen1 | Sep 2016-Dec 2017 | ECMWF | CAMS GRETA_RWC_OFFR | Szenario 1 |
| D2_ECMWF_Szen1 | Sep 2016-dec 2017 | ECMWF | CAMS GRETA_RWC_OFFR | Szenario 1 |
| D2_ECMWF_Szen2 | Sep 2016-dec 2017 | ECMWF | CAMS GRETA_RWC_OFFR Zeitprofile Kfz | Szenario 2 |
| D1_ECMWF_Szen3 | Sep 2016-Dec 2017 | ECMWF | CAMS +Zeitprolfile Kalter Start GRETA_RWC_OFFR Zeitprofile Kfz +Zeitprolfile Kalter Start | Szenario 1 |
| D2_ECMWF_Szen3 | Sep 2016-dec 2017 | ECMWF | CAMS+Zeitprolfile Kalter Start GRETA_RWC_OFFR +Zeitprofile Kfz +Zeitprolfile Kalter Start | Szenario 3 |
| D2_ECMWF_Szen4 | Sep 2016-dec 2017 | ECMWF | CAMS+Zeitprolfile Kalter Start GRETA_RWC_OFFR +Zeitprofile Kfz +Zeitprofile Kalter Start +Zeitprofile Landwirtschaftliches Verkehr | Szenario 4 |
| D2_ECMWF_Szen5 | Sep 2016-dec 2017 | ECMWF | CAMS +Zeitprolfile Kalter Start GRETA_RWC_II_OFFR +Zeitprofile Kfz +Zeitprofile Kalter Start +Zeitprofile Landwirtschaftliches Verkehr | Szenario 5 |
| D1_ECMWF_End | 2015-2019 | ECMWF (multilayer) | CAMS +Zeitprolfile Kalter Start GRETA_RWC_FINAL +Zeitprofile Kfz +Zeitprofile Kalter Start +Zeitprofile Landwirtschaftliches Verkehr | Endergebnis |
| D2_ECMWF_End | 2015-2019 | ECMWF (multilayer) | CAMS +Zeitprolfile Kalter Start GRETA_RWC_FINAL +Zeitprofile Kfz +Zeitprofile Kalter Start +Zeitprofile Landwirtschaftliches Verkehr | Endergebnis |

| Lauf | Zeitraum | Met. Treiber | Emissionen | Kennzeichnung |
|--------------|---------------------|-----------------------|---|---------------|
| D3_COSMO_End | Sept 2018-Sept 2019 | COSMO-DE (multilayer) | CAMS +Zeitprofile Kalter Start GRETA_RWC_FINAL +Zeitprofile Kfz +Zeitprofile Kalter Start +Zeitprofile Landwirtschaftliches Verkehr | Endergebnis |

6.5 Messungen zur Evaluierung außerhalb Berlins

In Abschnitt 5 wurde die Messkampagne in Berlin besprochen und die Besonderheiten und Äquivalenz der Aethalometermessungen von BC im Vergleich zu EC Filtermessungen abgeleitet. Für eine deutschlandweite Evaluierung der Modellläufe sind zusätzliche Messungen unentbehrlich.

6.5.1 Bereits verfügbare Messungen in Deutschland

Messungen sind bezogen aus verschiedenen Quellen und damit aus verschiedenen Messprotokollen. Die Protokolle haben sich dazu noch über die Zeit geändert. Dies macht es schwierig eine konsistente zeitliche und räumliche Abdeckung Deutschlands zu erzielen. In der finalen Validierung sind die folgenden Gegebenheiten berücksichtigt:

- ▶ Stündliche BC Messungen mit Aethalometern sind in einigen Messnetzen im PM_{2.5} Anteil enthalten, in anderen Messnetzen im PM₁₀ Anteil. Diese Messungen werden in der Auswertung vom Modell nicht differenziert, weil, beide repräsentieren das optisch aktive BC, welches einen Durchmesser kleiner als 2.5 µm hat.
- ▶ MAAP und Aethalometer Daten sollen bei der Auswertung der Modellläufe differenziert werden: Aethalometer Daten sind oft 10-20% höher als MAAP.
- ▶ Filtermessungen mit VDI Protokoll verursachen Artefakte. Die Messungen sind hier in der quantitativen Validierung deshalb nicht enthalten und können nur für den qualitativen Vergleich angewandt werden (Episodendarstellung).
- ▶ Filtermessungen mit EUSAAR TOT Protokoll (DIN EN ISO 16909, 2017, Cavalli et al, 2010), wie beschrieben in Abschnitt 5, werden verwendet für Evaluierung und Validierung. Die Daten der PM₁₀ Messkampagne und die Station Melpitz decken jeden Tag ab und zeigen den Verlauf der Konzentrationen in der Zeit. Für andere Stationen ist die zeitliche Auflösung meist drei oder sechs Tage (siehe z.B. Abbildung 37) und die Werte sind fast konstant über den Frühling und Sommer. Damit geben diese Stationen eine weitgehende Unterschätzung der Variabilität und möglicherweise eine Unterschätzung der Jahresmittelwerte.
- ▶ Stationen, die als verkehrsbelasteten Stationen gekennzeichnet sind, werden in erstem Ansatz nicht miteinbezogen in der Evaluierung, weil die räumliche Auflösung des Modells nicht ausreichend ist um die lokalen starken Gradienten zu repräsentieren.

- Stationen auf Berggipfeln (z.B. Schauinsland) werden in erstem Ansatz nicht miteinbezogen in der Evaluierung, weil die räumliche Auflösung des Modells nicht ausreichend ist um die lokalen starken Gradienten zu repräsentieren.

Die Tabellen im Appendix A geben einen Überblick über die verfügbaren Messungen.

Als wichtigste Stationen der Evaluierung wurden die folgenden ausgewählt:

- Melpitz (DE0044R), Rurales Gebiet, Hintergrundbelastung. Langjähriges EMEP Station. Tägliche EC Daten mit EURSAAR_ TOT Protokoll.
- Waldhof (DE0005). Rurales Gebiet, Hintergrundbelastung. Langjähriges UBA Messtation. Stündliche BC Daten in PM2.5 mit MAAP Instrument.
- Mainz Mombach (RP0007). Urbanes Gebiet, Kennzeichnung urbaner Hintergrund, nicht zu stark von lokalem Verkehr betroffen. Stündliche BC Messungen in PM2.5 mit MAAP Instrument.

Diese Stationen repräsentieren verschiedene Regionen und Bedingungen und verfügen über Daten von hoher Qualität über lange Zeiträume hinweg.

6.5.2 Messungen Europaweit

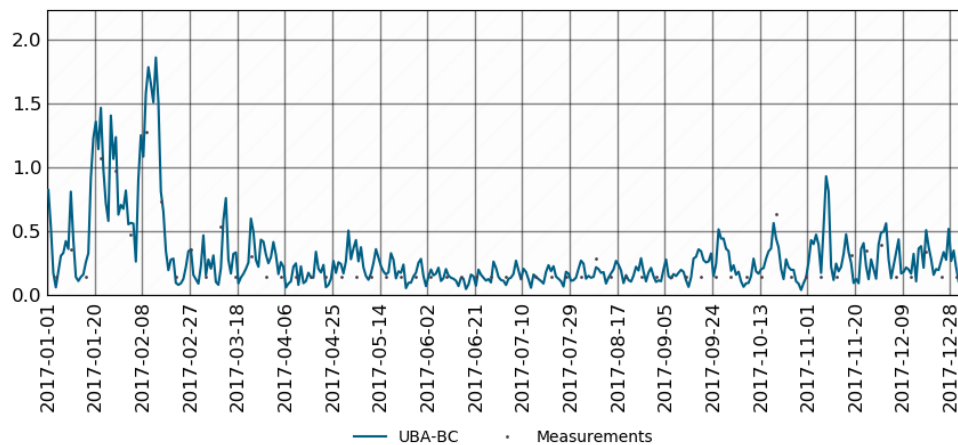
Im Rahmen des EMEP berichten einige Länder langfristig über die Konzentrationen von Feinstaub und seiner Bestandteilen. Nicht alle Stationen decken alle Jahre ab und die Berichterstattung kann mehr als ein Jahr zurückliegen. Insbesondere sind wenig Messungen für EC verfügbar. Für Deutschland ist die Station Melpitz in der EMEP-Datenbank enthalten und ist die einzige Station, die EC über einen langen Zeitraum meldet. Um ein besseres Verständnis für den Beitrag der Hausbrandsektor zum EC zu erhalten, wurde im Rahmen einer EMEP/ACTRIS/COLOSSAL-Initiative eine europaweite Messkampagne (Intensive Measurement Period, IMP) durchgeführt (<https://projects.nilu.no/ccc/tfmm/Winter%20intensive%20measurement%20period.pdf>). In dieser Kampagne wurde nur die Winterperiode 2017-2018 in einem umfangreichen Programm gemessen. Es wurde nicht nur BC gemessen, sondern an einigen Stationen auch Levoglucosan. Für Deutschland wurden Daten aus Berlin, Melpitz und Hohenpeissenberg einbezogen. Diese Daten sind bereits in den oben beschriebenen Datensätzen enthalten, mit Ausnahme der Station Hohenpeissenbergs, die eine Bergstation ist und vom Modell nicht gut dargestellt werden kann, da sie oft in der freien Troposphäre liegt. Da die Daten nur eine Winterkampagne betreffen und die Auswertung von EURODELTA-CARB noch aussteht, wurden diese Daten nicht in das aktuelle Projekt aufgenommen.

Zusätzlich wurden Daten von der flämischen Umweltagentur (Vlaamse Milieumaatschappij, VMM) und dem niederländischen nationalen Luftqualitätsüberwachungsnetzwerk (Landelijk Meetnet Luchtkwaliteit, LML, verwaltet von RIVM, Nationales Institut für öffentliche Gesundheit und Umwelt) zur Verfügung gestellt. Dies sind beides Messungen von MAAP PM10-Geräten und beziehen sich auf die Jahre 2017 und 2018. Sie sind eine wertvolle Ergänzung zu den Daten aus Deutschland. Die Niederlande und Belgien sind Nachbarländer und bieten die Möglichkeit, das Modell außerhalb Deutschlands mit der gleichen Modelldomäne zu validieren. Außerdem wird erwartet, dass die BC-Werte in diesen Ländern ähnlich sind wie in Deutschland. Sie werden als Hintergrundstationen in die Analyse einbezogen. Es liegt außerhalb des Rahmens des Projekts, Messdaten aus anderen europäischen Ländern zu sammeln.

Abbildung 37: Messungen der Station Collmburg, zusammen mit Modellierter Konzentration.

Collmburg; run: UBA-BC; tracer: ec_pm10 [ug/m3]; meas_prot: TOT

Daily measurements vs simulations



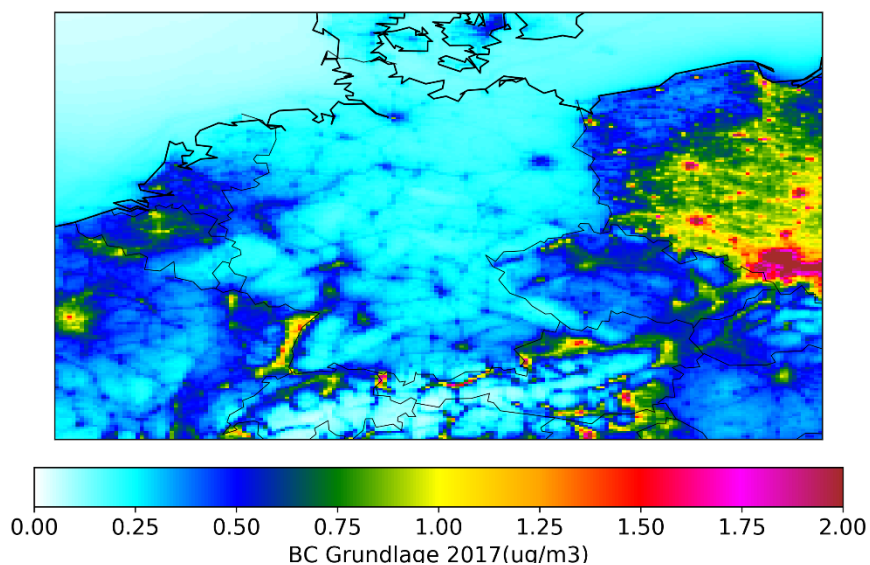
Quelle: TNO

7 Ergebnisse der Modellierung: Grundlage und Effekt der Emissionsfaktoren

7.1 Modellierte BC Konzentrationen (Grundlage)

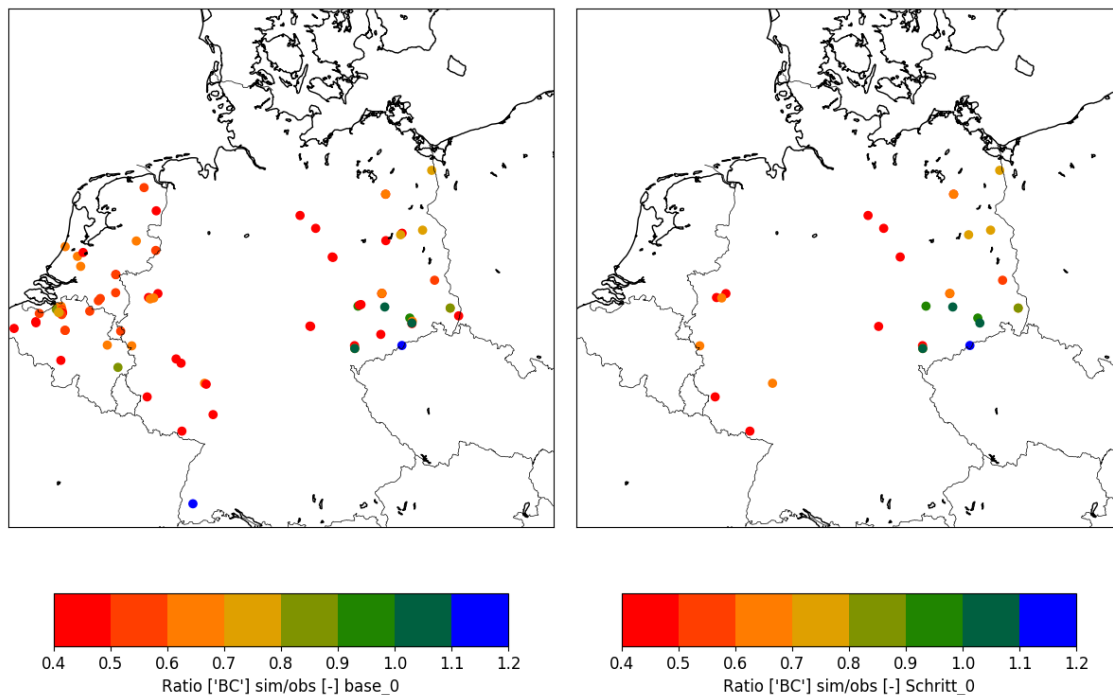
Abbildung 38 zeigt die modellierte durchschnittliche jährliche BC-Konzentration. Die Abbildung zeigt, dass BC starke Gradienten aufweist und dass der Beitrag zur Konzentration außerhalb der Emissionsbereiche deutlich abnimmt. Dies unterstützt unsere Annahme, dass es gerechtfertigt ist, die BC-Randbedingungen für D1 zu ignorieren. Für Deutschland sind die Konzentrationen niedriger als in den Nachbarländern, und die BC-Konzentrationen sind in Gebieten mit hohen Verkehrsemissionen am höchsten.

Abbildung 38 Jahressmittelwerte von BC Konzentration im Jahr 2017 für Grundlage



Quelle: TNO

Abbildung 39: Verhältnis simulierte/gemessene BC und EC Werte im Jahr 2017 Grundlage D2
(links: alle Stationen, rechts: nur deutsche Hintergrundstationen mit geeigneter Datenqualität)



Quelle: TNO

Abbildung 39 zeigt die Übereinstimmung zwischen Messungen und simulierten Werten. Gezeigt wird das Verhältnis modellierte/gemessene BC-Werte für alle vorhandenen Stationen im Jahr 2017. Es fällt auf, dass die Werte vom Modell meist niedriger sind (Verhältnis um 0,7 für nicht verkehrsbelastete Stationen). In Nord- und Mitteldeutschland werden die Werte deutlich stärker unterschätzt (Verhältnis um 0,4), mit Ausnahme von Melpitz. Die höheren Werte (Verhältnis über 1 in Sachsen) stammen alle aus Tagesmittelwerten von EC-Filtermessungen mit geringer zeitlicher Auflösung und relativ niedrigen Sommerwerten (z. B. Abbildung 37). Das hohe Verhältnis im Südwesten (Schauinsland) kann vom Modell nicht gut dargestellt werden, da die Station in großer Höhe liegt und das Modell die starken topographischen Gradienten und die Auswirkungen der Mischungsschicht nicht auflösen kann. Die Werte im Nordosten werden weniger unterschätzt. Für das Ruhrgebiet entsprechen die Werte denen in Belgien und den Niederlanden. Große Gebiete wie Bayern und Schleswig-Holstein sind überhaupt nicht von Messungen erfasst.

7.2 Bewertung der modellierten BC Konzentrationen mit höheren Emissionsfaktoren (Schritt 1)

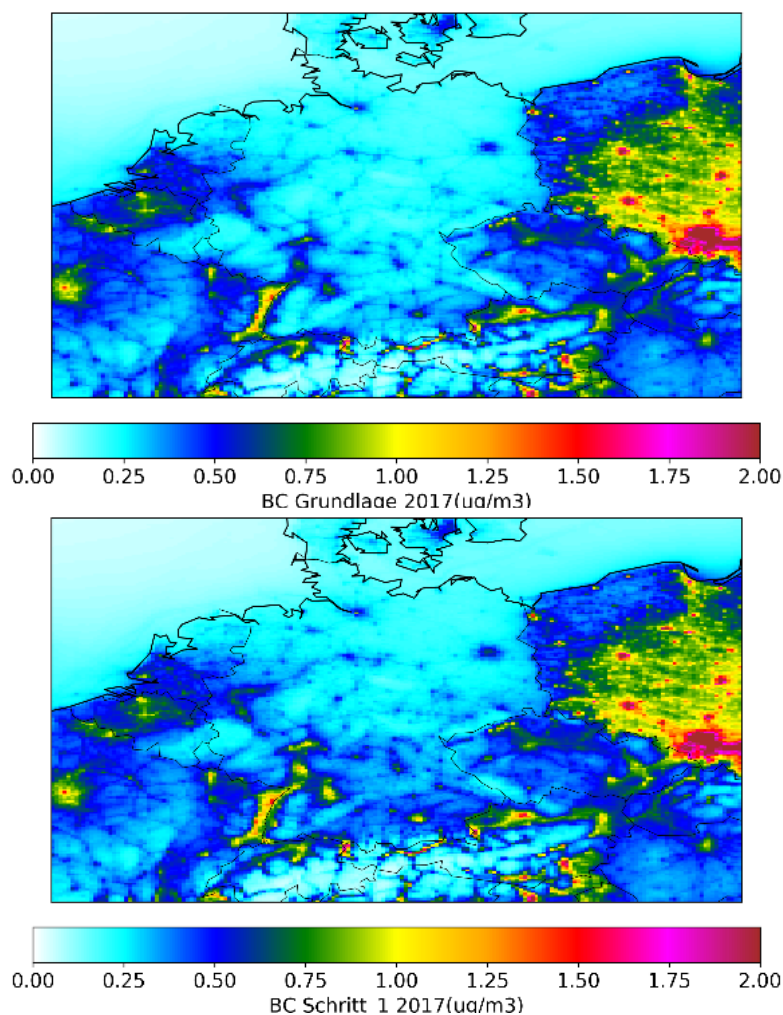
Schritt 1 ist die Modellierung von BC mit neuen Emissionsfaktoren, wie in Abschnitt 4.4 beschrieben. Hier zeigen wir die Auswirkungen dieses Schritts auf die Jahresmittelwerte der Konzentrationen und die relativen Beiträge der Sektoren, und bewerten die Modellläufe mit Messungen. Für diese Emissionen wurden die Jahre 2014-2018 modelliert, um die Variabilität zwischen den Jahren widerzuspiegeln und um eine Auswertung der Messungen aus mehreren

Jahren zu ermöglichen. Da die Qualität und Verfügbarkeit der Daten für 2014 und 2015 meist schlecht waren, werden die Modellläufe hauptsächlich für 2017 ausgewertet.

Der erste Vergleich betrifft das Jahr 2015. Die Jahresmittelwerte der Läufe D2_ECMWF_0 und D2_ECMWF_1 zeigen den Unterschied zwischen den Emissionsinventaren (Abbildung 40). Die Konzentrationen sind wie erwartet wesentlich höher, wenn die höheren Emissionen von Schritt 1 verwendet werden. Die Verschiebung zwischen den sektoralen Beiträgen ist signifikant (Abbildung 41): Hausbrand hat einen höheren absoluten Beitrag und einen mehr als verdoppelten relativen Beitrag in Schritt 1. Für den Straßenverkehr sind die Emissionen geringer. In Kombination mit den höheren Emissionen für Hausbrand wird der Beitrag des Straßenverkehrs zu den gesamten BC in Schritt 1 stark reduziert.

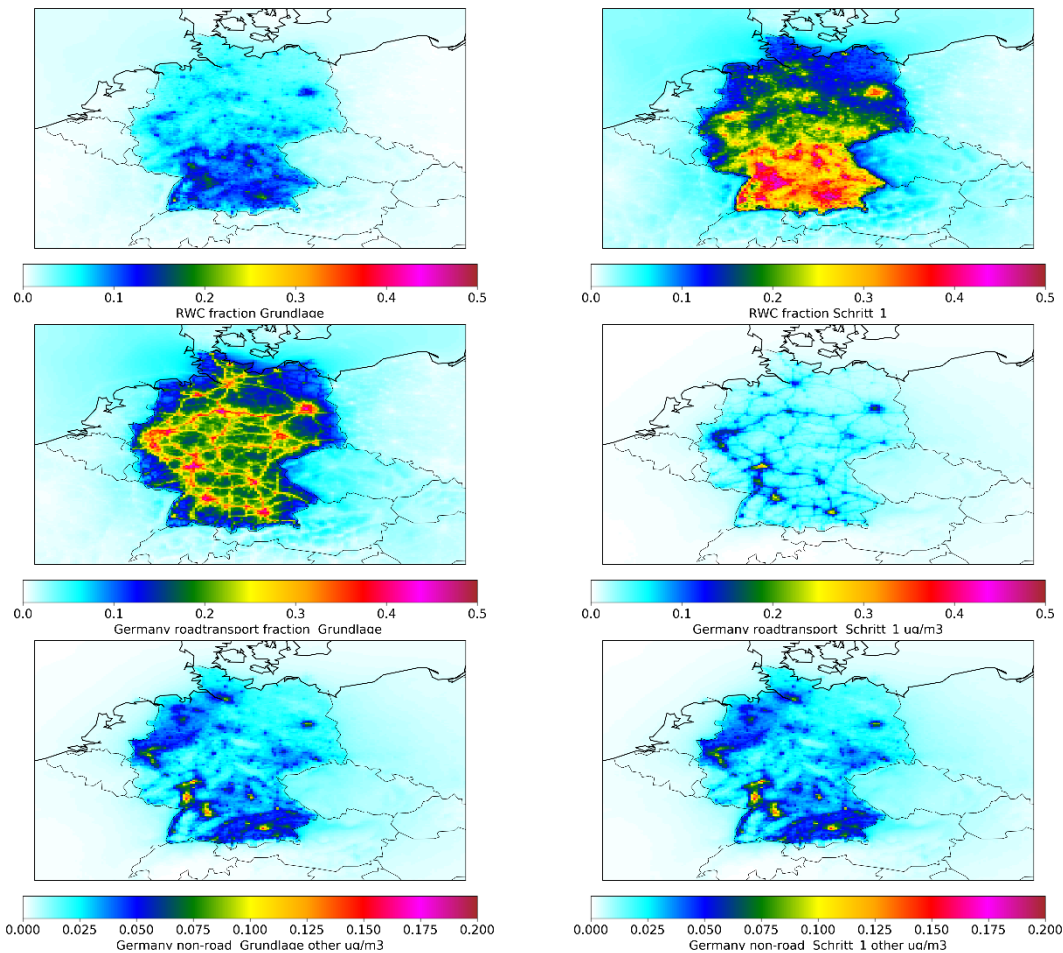
Im nicht straßengebundenen Verkehr stammen die Emissionen hauptsächlich aus dem Verkehr in der Land- und Forstwirtschaft. Die Verteilung dieser Emissionen, mit den höchsten Konzentrationen im Nordwesten, entspricht jedoch nicht der erwarteten Verteilung aufgrund der landwirtschaftlichen Fläche. Die aktuelle Verteilung basiert auf der Anzahl der in der Landwirtschaft tätigen Personen. Im nächsten Schritt wird eine bessere Verteilung der Emissionen vorgenommen, die die Fahrzeugnutzung besser berücksichtigt.

Abbildung 40: Jahresmittlere BC Konzentration im Jahr 2017 für Grundlage (oben) und Schritt 1 (unten)



Quelle: TNO

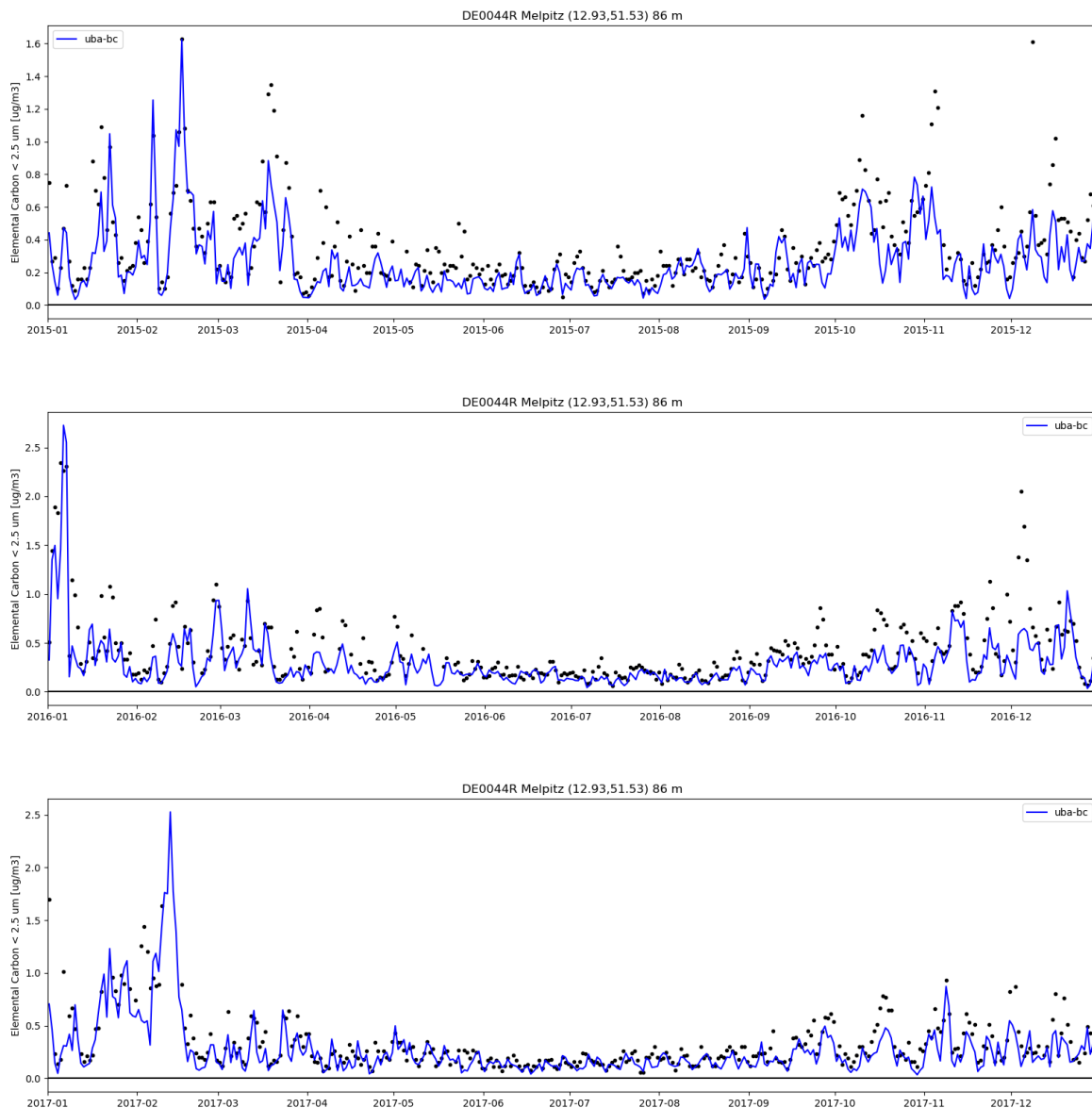
Abbildung 41: Relativer Betrag der deutschen Sektoren an Jahresmittelwerten von BC für 2017 mit Ausgangsemissionen (links) und erster Optimierung (Schritt 1, rechts). Ende der Skala=50% Beitrag.



Quelle: TNO

Die Ergebnisse von Schritt 1 werden mit Messungen der Station Melpitz verglichen, einer ländlichen Station, die Messungen im Rahmen des EMEP-Programms liefert und eine lange, konsistente Zeitreihe von Messungen höherer Qualität bereitstellt. Die Daten der Jahre 2015 bis 2017 sind in Abbildung 42 dargestellt. Die Messungen zeigen Werte von weniger als $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $2,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Maximalwerte werden im Winter und Herbst erreicht, niedrige Werte im Sommer. Die drei Jahre zeigen Unterschiede in der Anzahl und Intensität der Perioden, was auf die interannuelle Variabilität der Meteorologie zurückzuführen ist. Die Eigenschaften der Messungen werden vom Modell gut wiedergegeben, mit einer Unterschätzung der Maximalwerte in den Perioden, Frühling, Herbst und Winter. Eine lineare Regression ergibt den Modellwert $\approx 0,8 \cdot \text{Messung}$, die Korrelation R^2 beträgt etwa 0,7.

Abbildung 42: Vergleich zwischen Messungen und Modell (Schritt 1) für Melpitz für die Jahre 2015, 2016, 2017



Quelle: TNO

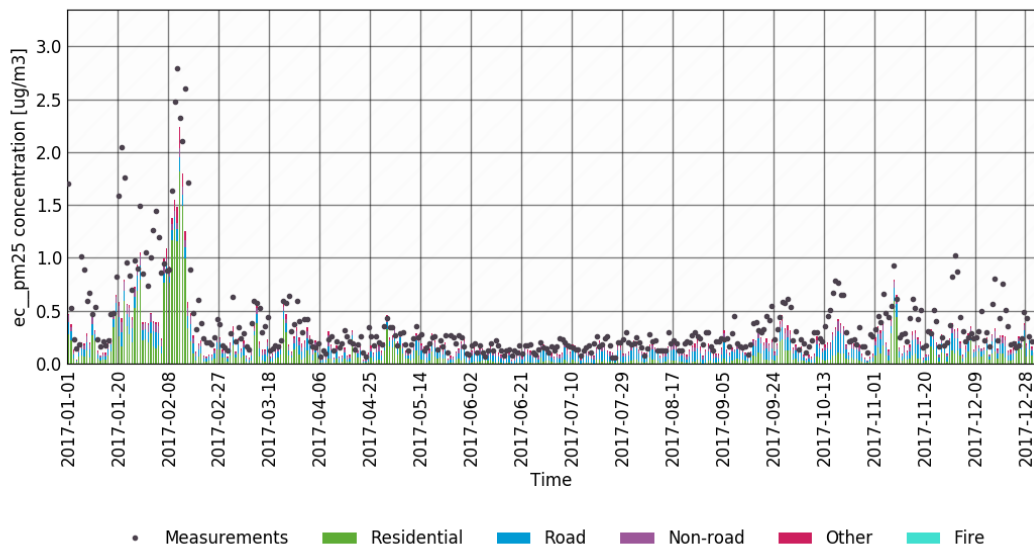
Für eine detaillierte Analyse des Jahres 2017 haben wir eine Station mit täglichen Messungen (Melpitz, PM_{2.5}) und zwei Stationen mit stündlichen PM_{2.5} Messungen (Mainz und Waldhof) verwendet. Diese Stationen sind von der Lage her sehr unterschiedlich und verfügen über Messdaten, deren Qualität akzeptabel ist. Das Jahr 2017 war durch hohe PM₁₀-Konzentrationen im Januar und Februar gekennzeichnet (UBA, 2018a).

Melpitz ist eine Hintergrundstation. Die täglichen Mess- und Modellwerte sind in Abbildung 42 dargestellt für 2015-2017. In Abbildung 43 sind die modellierten Sektor- und Länderbeiträge für 2017 gezeigt. Die modellierten Werte entsprechen dem Jahreszyklus und auch den Episoden, unterschätzen aber die absoluten Werte, insbesondere während der höchsten Konzentrationen. Es fällt auf, dass die Episode mit den höchsten Werten (Februar 2017), in der der Einfluss aus Polen groß ist, weniger unterschätzt wird als die vorangegangene Episode, in der der Beitrag der

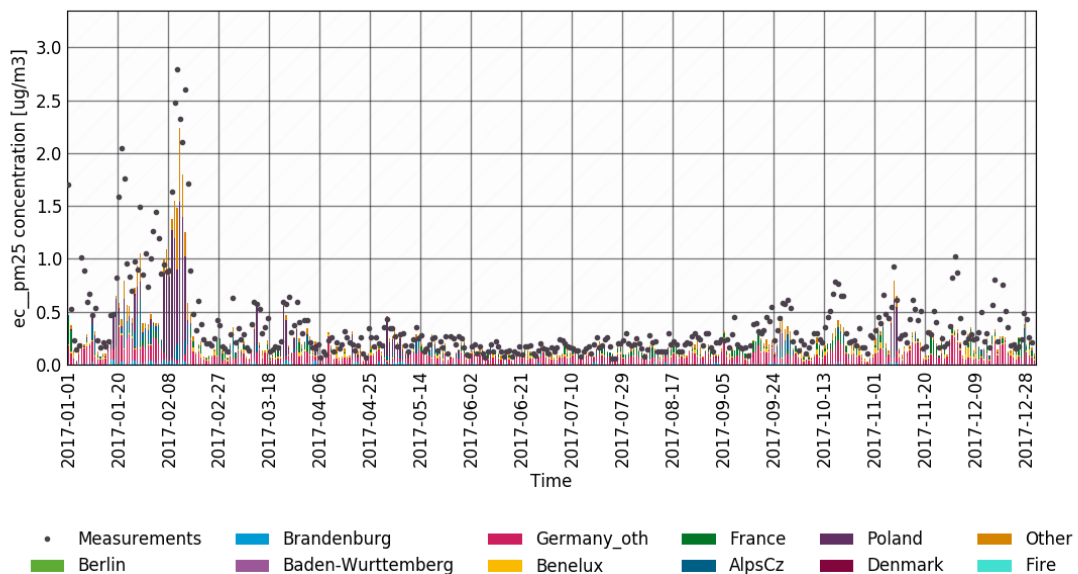
ausländischen Emissionen gering ist. Dies deutet darauf hin, dass die lokalen Emissionen unterschätzt werden. Abbildung 44 zeigt die monatlichen mittleren gemessenen und modellierten Konzentrationen mit Sektorbeiträgen für Grundlage und Schritt 1. Die Erhöhung der Emissionen in Schritt 1 bewirkt, dass die Monatsmittelwerte ein geringeren Bias aufweisen, insbesondere im Januar und Februar. Es ist auffällig, dass die Unterschätzung am Samstag stärker ist (Abbildung 45).

Abbildung 43: Tägliche gemessene und modellierte Werte mit Sektor- und Länderbeitrag, Grundlage

Melpitz; run: UBA-BC-base_0; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



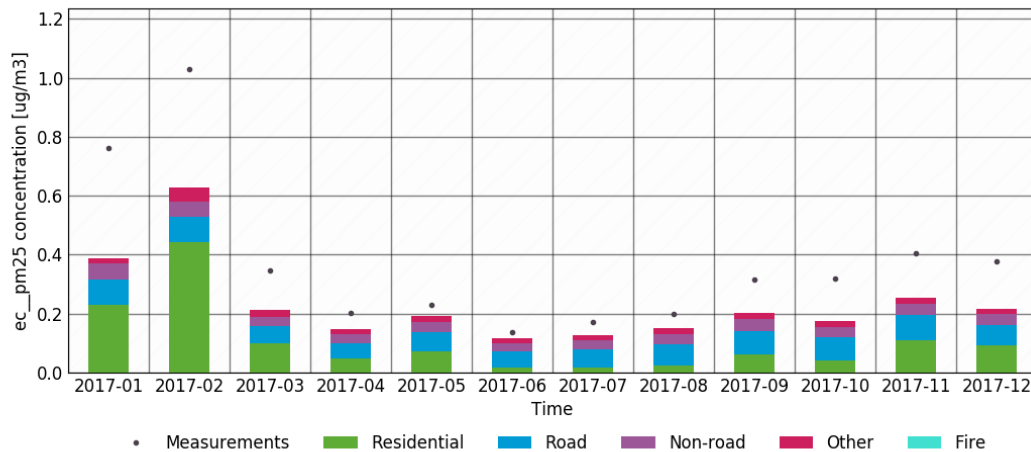
Melpitz; run: UBA-BC-base_0; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



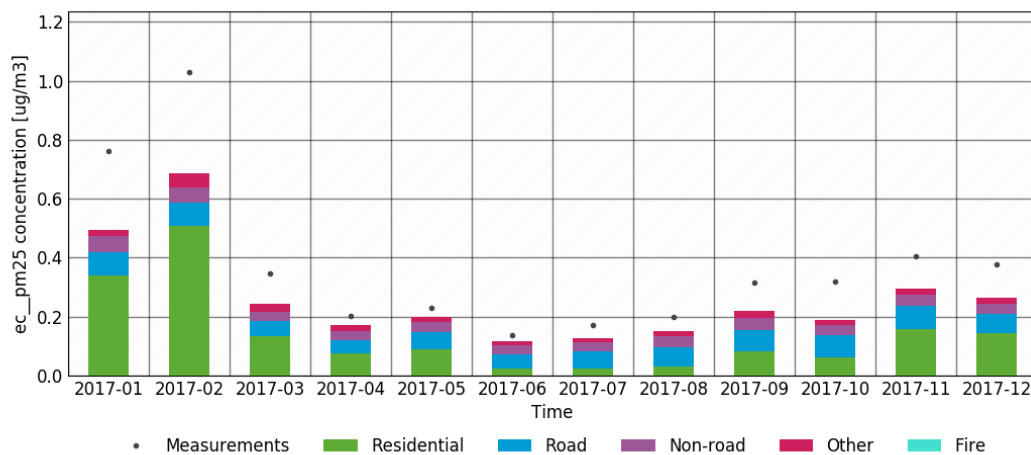
Quelle: TNO

Abbildung 44 Melpitz Monatliche mittlere gemessene und modellierte Konzentrationen mit Sektorbeiträgen für Grundlage (oben) und Schritt 1 (unten).

Melpitz; run: UBA-BC-base_0; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



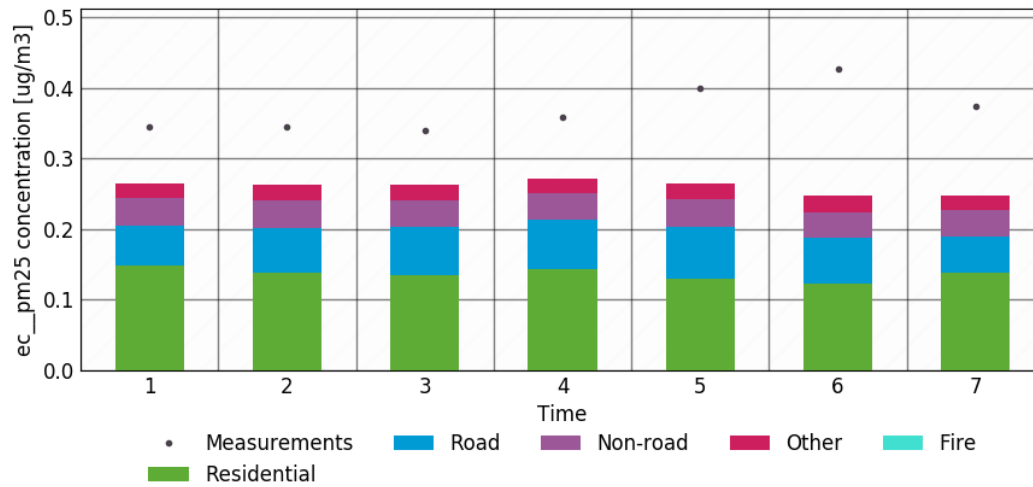
Melpitz; run: UBA-BC-adj; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



Quelle: TNO

Abbildung 45: Mittlere Konzentration pro Wochentag (1 Montag, 7 Sonntag), Schritt 1

Melpitz; run: UBA-BC-adj; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



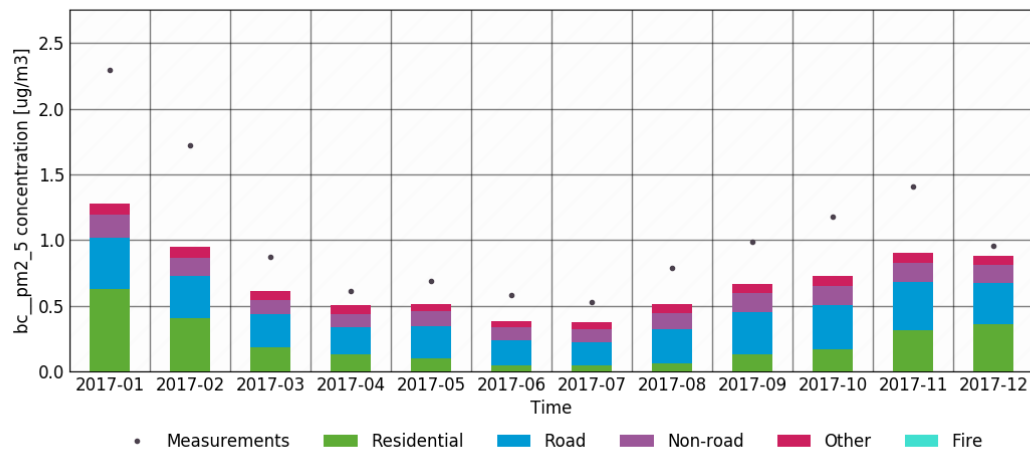
Quelle: TNO

Die Station Mainz ist eine städtische Hintergrundstation mit relativ geringer Unterschätzung der Konzentration durch das Modell (Abbildung 46). Die Emissionen aus Schritt 1 führen dazu, dass die Monatsmittelwerte insbesondere im Januar und Februar einen deutlich geringeren Bias aufweisen. Die BC-Werte in Mainz sind, wie von einer städtischen Station zu erwarten, deutlich höher als in Melpitz.

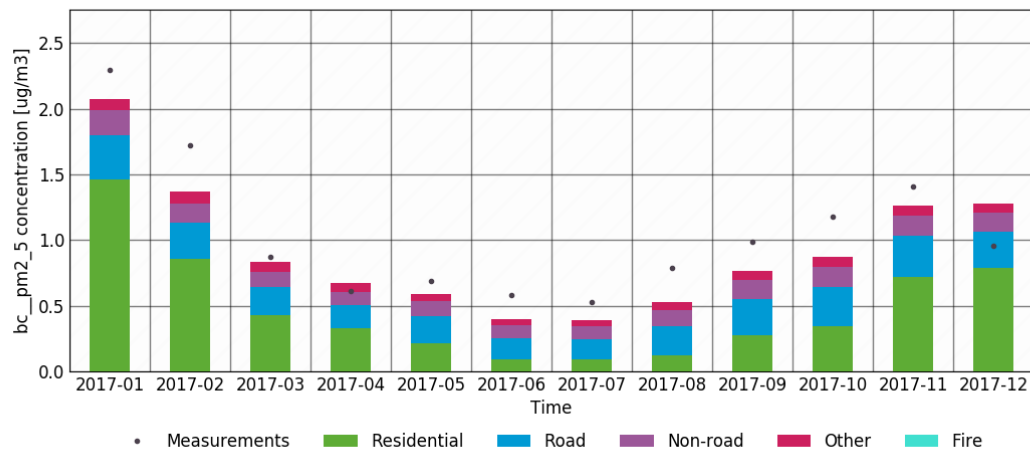
Für Mainz sind die Maximalwerte in Kälteepisoden leicht unterschätzt, ebenso ein Teil der Sommer- und Herbstwerte. Die Hintergrundwerte im Winter und Frühjahr stimmen gut überein. Das Tages- und Jahresprofil (Abbildung 47) wird vom Modell gut wiedergegeben, aber das Wochenprofil mit den höchsten Werten am Donnerstag und Freitag ist im Modell weniger stark ausgeprägt.

Abbildung 46: Mainz Mombach, Monatliche mittlere gemessene und modellierte Konzentrationen mit Sektorbeiträgen für Grundlage (oben) und Schritt 1 (unten)

Mainz-Mombach; run: UBA-BC-base_0; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



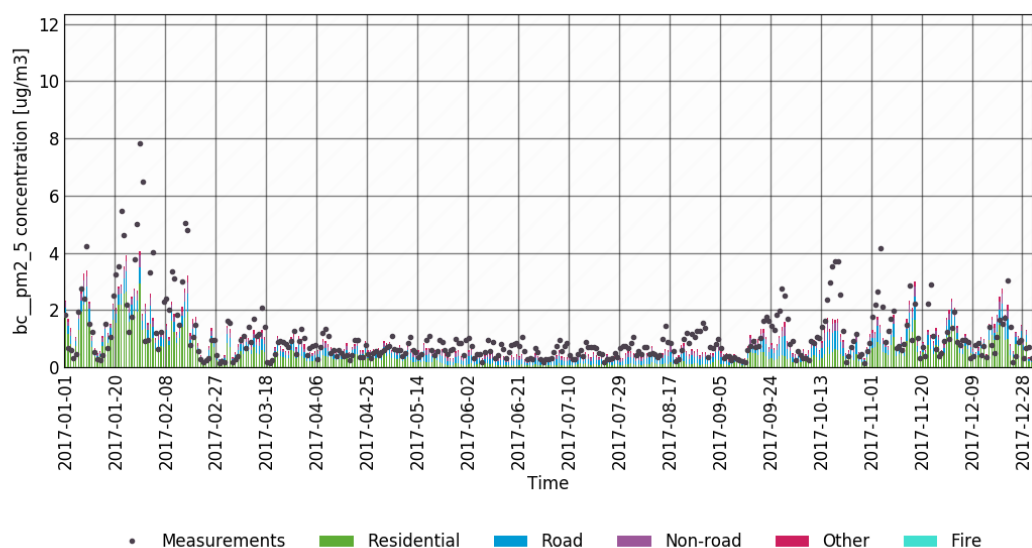
Mainz-Mombach; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



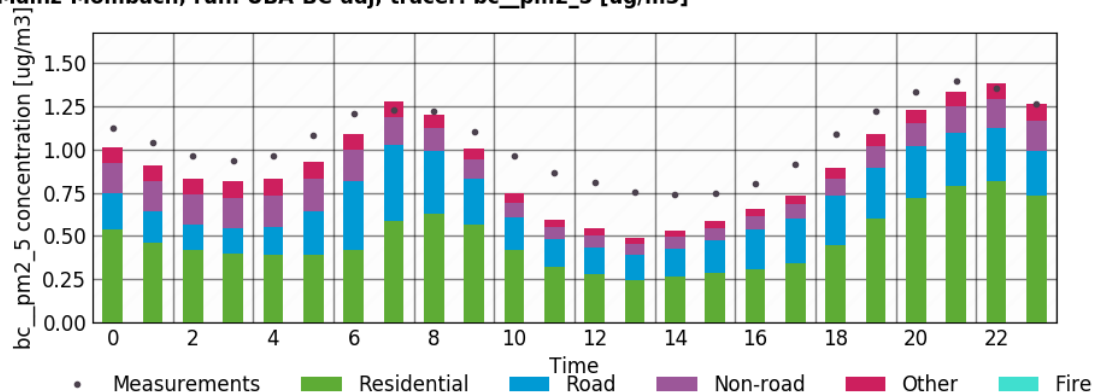
Quelle: TNO

Abbildung 47: Mainz Mombach Messungen und modellierte Werte Schritt 1. Zeitreihe (Tagesmittelwerte), Tagesprofil, Wochenprofil.

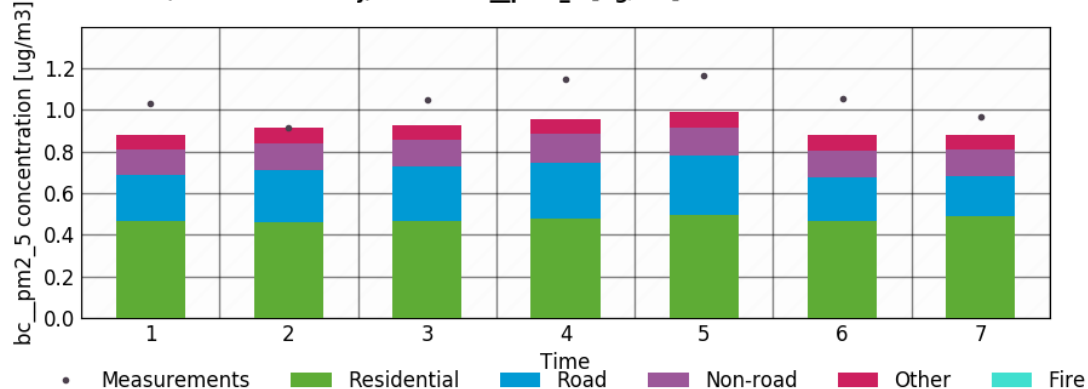
Mainz-Mombach; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Mainz-Mombach; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Mainz-Mombach; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]

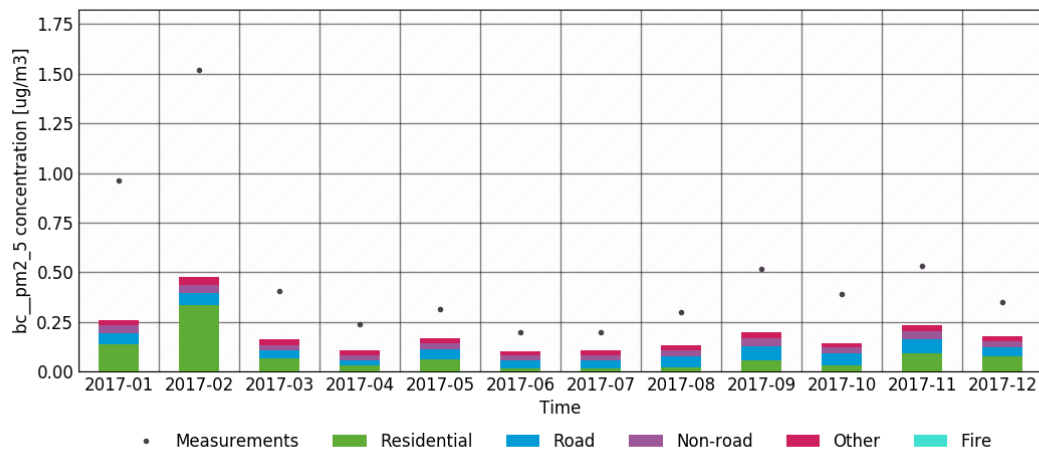


Quelle: TNO

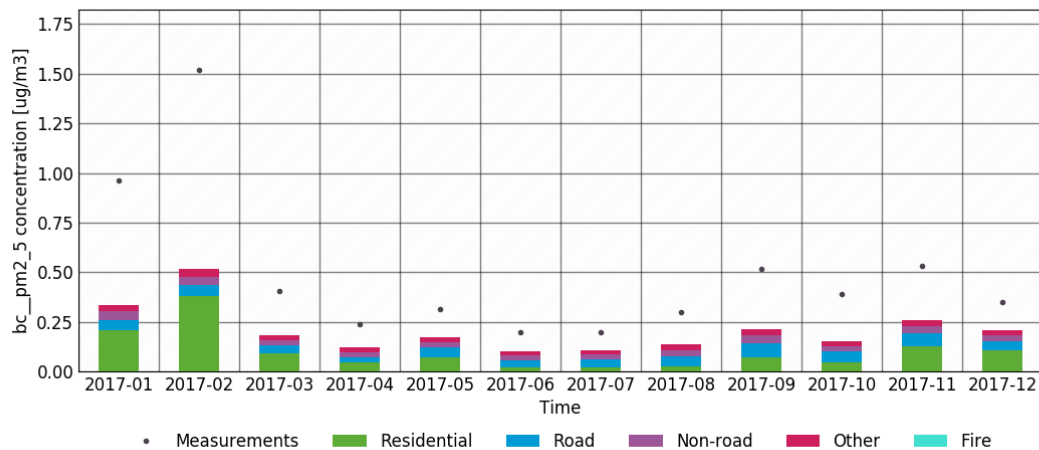
Waldhof ist eine ländliche Station mit starker Unterschätzung der modellierten Konzentration (Abbildung 48), besonders in der kalten Episode im Januar- Februar 2017. Tages- und Wochenprofil sind, wie erwartet von einer Hintergrundstation, relativ schwach (Abbildung 49). Dies wird auch vom Modell gut wiedergegeben. Der beobachtete Jahresverlauf wird vom Modell auch wiedergegeben allerdings aber mit großer Unterschätzung. Die absoluten Unterschätzungen an den drei Stationen sind nicht sehr unterschiedlich, mit Mittelwerten von 0.2-0.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Tagesgang, Wochentag), nur im Winter sind die Unterschätzungen stärker in Waldhof (0.5-1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). Relativ sind die Unterschätzungen am größten in Waldhof.

Abbildung 48: Waldhof, Monatliche mittlere gemessene und modellierte Konzentrationen mit Sektorbeiträgen für Schritt 0 (oben) und Schritt 1 (unten)

Waldhof; run: UBA-BC-base_0; tracer: bc_pm2_5 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



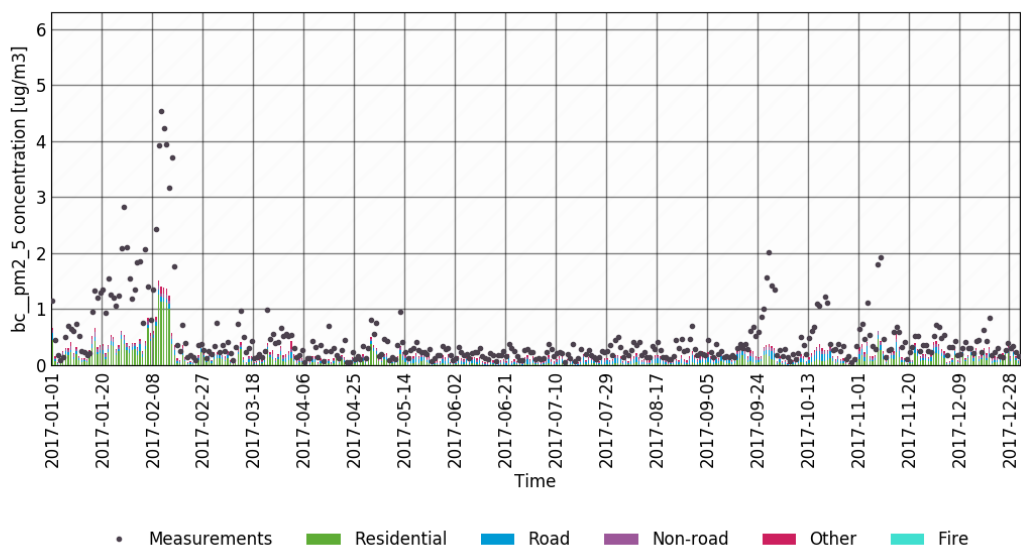
Waldhof; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



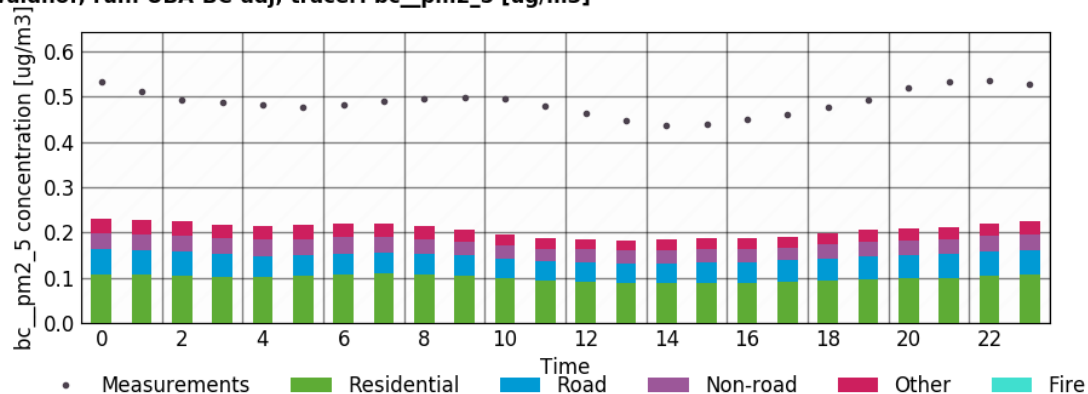
Quelle: TNO

Abbildung 49: Waldhof Messungen und modellierte Werte. Zeitreihe (Tagesmittelwerte), Tagesprofil, Wochenprofil, Jahresprofil.

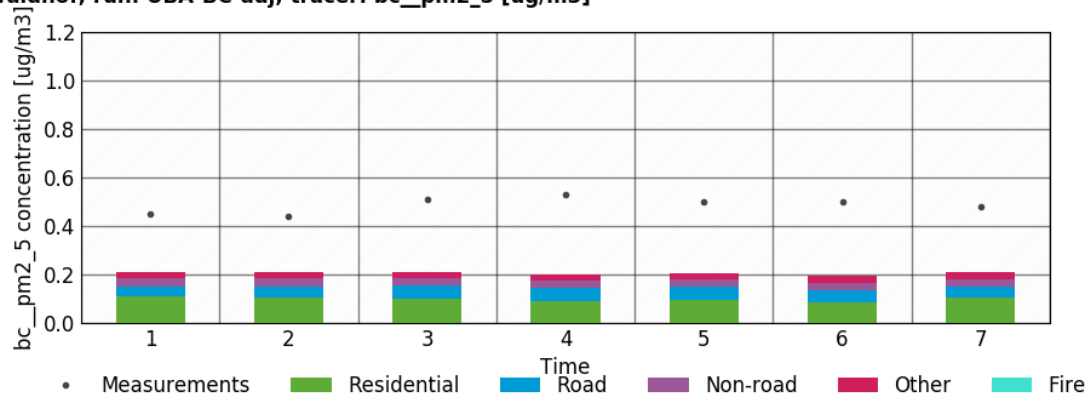
Waldhof; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Waldhof; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Waldhof; run: UBA-BC-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Quelle: TNO

Für alle Stationen gilt, dass Hausbrand und Straßenverkehr die wichtigsten Beiträge liefern. Der relative Anteil von Straßenverkehr ist größer für Mainz, wie erwartet für eine städtische Station.

Die erhöhten Emissionsfaktoren und BC-Anteile im Hausbrandsektor führen zu einer starken Verbesserung der modellierten Konzentrationen für die kalten Monate in Mainz, und etwas weniger in Melpitz. In Waldhof ist die Unterschätzung immer noch groß, was auf eine nicht optimale räumliche Verteilung der Hausbrandemissionen hinweisen könnte. Diese Emissionen sind stark im Süden konzentriert und in der Region um Waldhof relativ gering. Die geringeren BC-Anteile von Brems- und Reifenpartikeln führen zu etwas geringeren Verkehrsbeiträgen, insbesondere in Mainz. Bei der Analyse der räumlichen Verteilung zeigt sich weiterhin, dass die Emissionen aus dem landwirtschaftlichen Verkehr nicht auf landwirtschaftliche Flächen konzentriert sind. Dies könnte zur Unterschätzung der Konzentrationen in Waldhof und Melpitz beitragen, insbesondere im Frühjahr, Sommer und Herbst (Düngen, Säen, Ernten).

7.3 Erste Szenarios

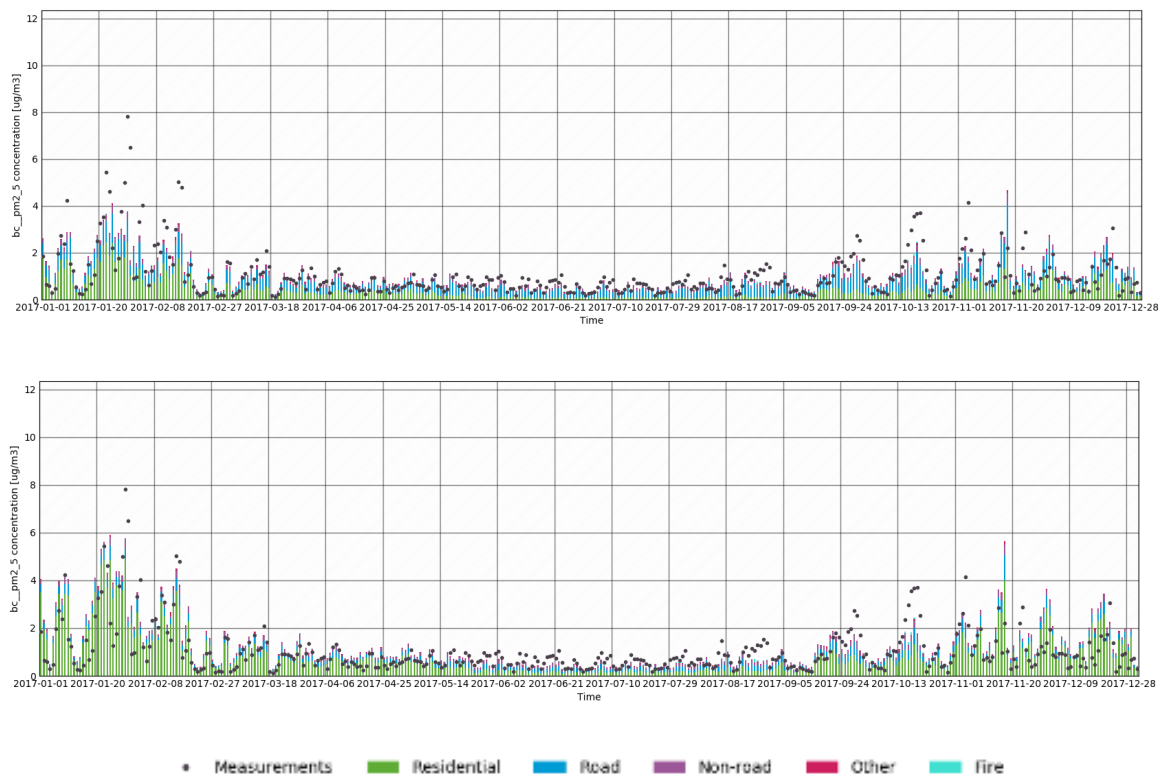
Das Muster in den Unterschieden Model-Messung könnte wichtige Hinweise auf die Quellgruppe geben, die die Unterschiede verursacht. Mit dem Labeling-Ansatz können einige Szenarien getestet werden. Diese sind:

1. Doppelte Emissionen vom Hausbrand
2. Doppelte Emissionen aus dem Straßenverkehr
3. Doppelte Emissionen aus Frankreich (alle Quellsektoren)
4. Doppelte Emissionen aus Polen (alle Quellsektoren)

Die Szenarien werden unter Verwendung der Emissionen aus Schritt 1 erstellt, um zu sehen, ob weitere Emissionsänderungen nötig sind. Die Ergebnisse sind für Mainz und Waldhof in Abbildung 50 bis Abbildung 53 dargestellt. Für diese Stationen sind auch Tagesgänge aus den Messungen erzeugt, was für Melpitz nicht möglich ist.

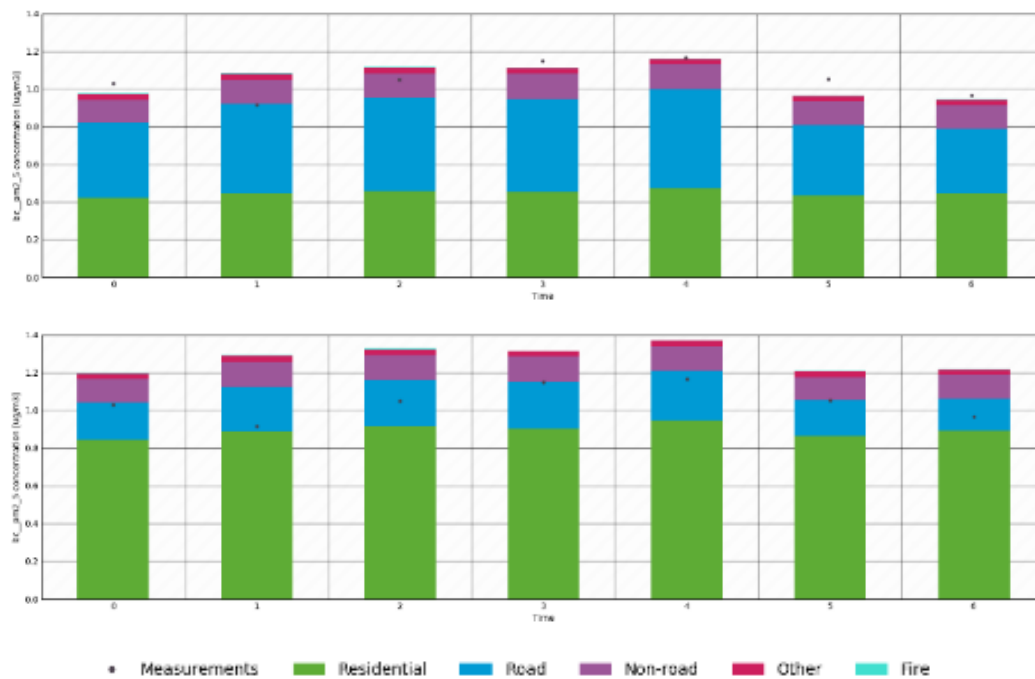
Es zeigt sich, dass für Mainz das Szenario mit verdoppelten Straßenverkehrsemissionen eine deutliche Verbesserung bringt: Die Unterschätzung wird auch im Sommer reduziert und das Wochenprofil wird besser wiedergegeben. Bei einer Verdopplung der Hausbrand-Emissionen werden die Werte im Modell im Winter oft überschätzt und auch das Wochenprofil wird etwas schlechter wiedergegeben. Für Waldhof bringt ein größerer Verkehrsbeitrag kaum eine Verbesserung, aber wenn die Hausbrandemissionen verdoppelt werden, verbessert dies die Wiedergabe der BC Konzentrationen in den Kälteepisoden und damit auch die Wiedergabe des Jahresprofils. Das Szenario mit doppelten Emissionen in Frankreich (3) bringt für die Station Pirmasens (nahe der französischen Grenze) keine signifikante Verbesserung und wird auch nicht weiterverfolgt. Das Szenario mit doppelten Emissionen aus Polen hat für Waldhof eine ähnliche Wirkung wie doppelte inländische Emissionen der Hausbrandsektor für die höchste Episode, während das Szenario mit doppelten inländischen Emissionen auch für andere Episoden eine Verbesserung bringt. Es ist daher nicht möglich, diese beiden Ursachen auf der Grundlage dieser Ergebnisse zu trennen, und es sind weitere Analysen erforderlich.

Abbildung 50: Zeitreihen und Wochenprofile der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand (unten), Mainz



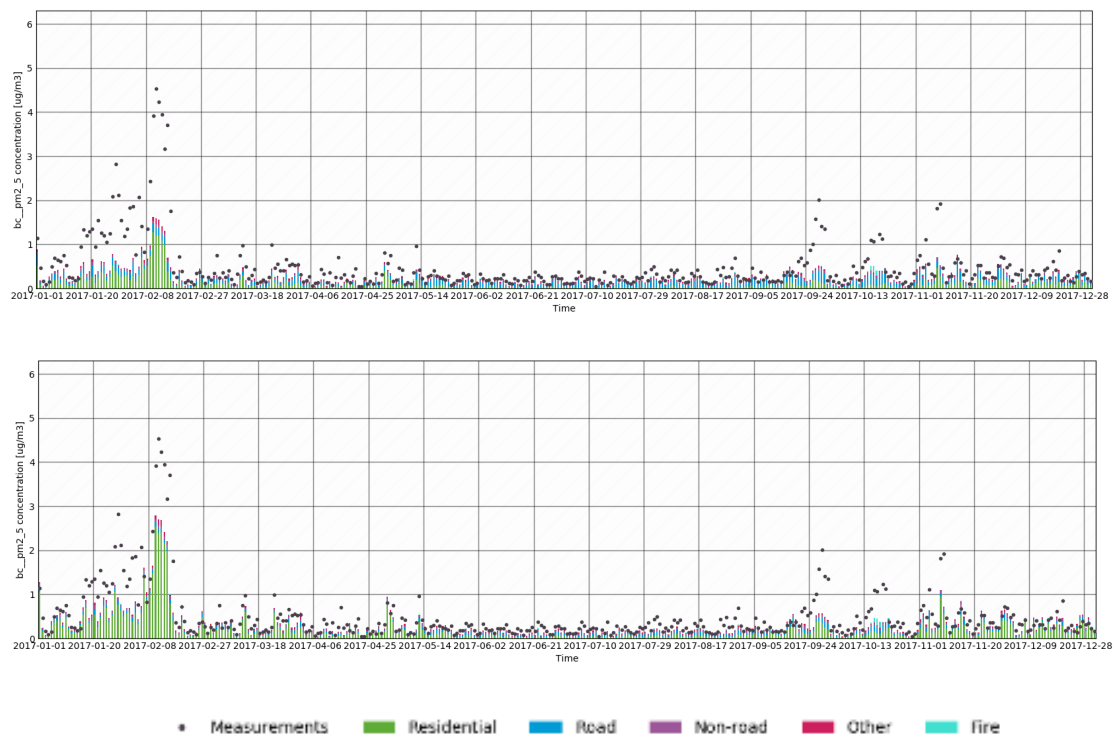
Quelle: TNO

Abbildung 51: Wochenprofile der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand, Mainz



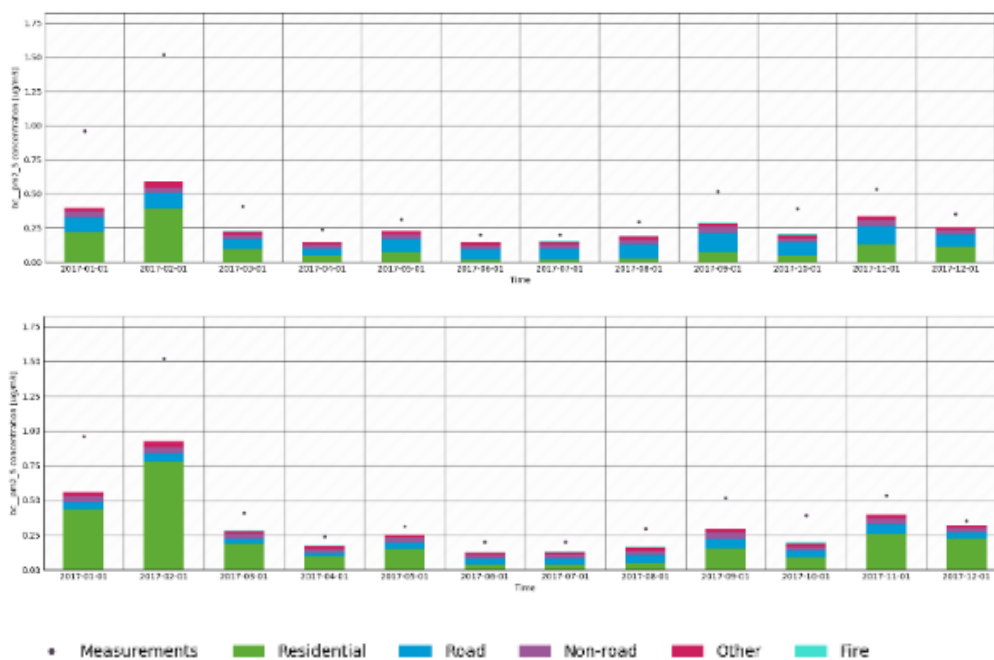
Quelle: TNO

Abbildung 52: Zeitreihen der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand (unten), Waldhof



Quelle: TNO

Abbildung 53: Jahresprofile der Szenarios 2x Verkehr (oben) und 2x Hausbrand (unten), Waldhof



Quelle: TNO

Für die Stationen in Nordrhein-Westfalen, den Niederlanden und Flandern (nicht gezeigt) ergibt das Szenario mit doppelten Verkehrsemissionen eine größere Verbesserung als das Hausbrand-Szenario. Es könnte sein, dass diese Stationen vom lokalen Verkehr beeinflusst werden, den das Modell bei der heutigen Auflösung nicht darstellen kann. Das bedeutet, dass nicht die Verkehrsemissionen per se erhöht werden sollten, sondern dass der Stationsstandort besser berücksichtigt werden sollte (oder die Modellauflösung erhöht werden sollte). Ein Indiz dafür ist die Station Pirmasens, eine Kleinstadt, in der der Tagesgang gut dargestellt wird, aber mit einer starken Unterschätzung des Modells. Lokale Emissionen beeinflussen die Messungen dort, aber die Emissionen werden vom Modell bei der aktuellen Auflösung stark verschmiert. Obwohl die Station als Hintergrund gekennzeichnet ist, unterschätzt das Modell die Werte in einem ähnlichen Ausmaß wie bei verkehrsbelasteten Stationen (nicht gezeigt). Außerdem werden derzeit die Auswirkungen der stärkeren Emissionen beim Starten des Fahrzeugs ("Kaltstart") nicht berücksichtigt. Dies motivierte dazu, die zeitliche Verteilung zu verbessern, insbesondere am Morgen, was die Konzentrationen und die tageszeitliche Variation beeinflussen würde. Außerdem werden diese Kaltstarts hauptsächlich in stark besiedelten Gebieten (Städten) auftreten, so dass eine bessere Modellierung dieses Effektes die räumliche Verteilung der Straßenverkehrsemissionen weiter optimieren könnte.

Andererseits sind es bei den östlichen Stationen die verdoppelten Hausbrandemissionen, die die Verbesserung bringen. Bei den Hausbrandemissionen der ländlichen Stationen spielt das Argument der Modellauflösung eine geringere Rolle. Im Projekt FKZ 3716 51 203 0 (Beitrag der polnischen grenzüberschreitenden Luftverschmutzung in Ostdeutschland) zeigte sich, dass die Verwendung des wissenschaftlichen Inventars mit neuen Emissionsfaktoren für EC und OC (TNO-RWC) für Stationen der PM-Ost-Messkampagne eine wesentliche Verbesserung brachte. Die heutigen Emissionen sind zwar höher als die der Grundlage, aber wesentlich niedriger als diese TNO-RWC-Emissionen. Dies ist ein Hinweis darauf, dass es möglicherweise regionale Unterschiede bei den Emissionsfaktoren für Hausheizungen gibt oder dass die Verteilparameter aus GRETA nicht optimal sind.

Es gibt jedoch Episoden bei denen beide Ansätze zu keiner Reduktion der Differenzen führen. Diese Differenzen müssen daher eine andere Ursache haben. Zum Beispiel ist das Verbrennen von organischem Material am Ende des Sommers/Herbstes in einigen Regionen üblich, wird aber nicht in den Emissionsinventaren erfasst. Diese werden nach der Analyse der Szenario-Läufe weiter erforscht.

8 Modellierung: Effekt von Szenarien für räumliche und zeitliche Verteilung der Emissionen

Die Auswertung von Schritt 0 und Schritt 1 hat zu Vorschlägen geführt, wie die Verteilung der Emissionen weiter verbessert werden kann. Diese Vorschläge werden hier in 5 Szenarien ausgearbeitet für September 2016-April 2017 (zum Vergleich mit PM₁₀ Messungen) und das ganze Jahr 2017 (zum Vergleich mit übrigen Messungen und Vergleich von Effekten auf den Jahresmittelwerten).

Zunächst werden die Szenarien erläutert und ihre Auswirkungen auf die Jahresmittelwerte der Konzentration dargestellt. Die Auswirkungen der Szenarien werden dann mit Messungen verglichen und analysiert. Die Szenarien sind so formuliert, dass sie die vorherigen Szenarien immer ergänzen, so dass Schritt für Schritt die beste Konfiguration gesucht werden kann. Der Labeling Ansatz ermöglicht es, den Beitrag von Änderungen nach Sektoren zu analysieren.

Einzelne Episoden erhöhter Konzentrationen können durch solche allgemeinen Szenarien nicht korrigiert werden. Der Grund dafür ist, dass bestimmte Emissionen in den offiziellen Emissionsdaten nicht erfasst werden oder nur schwer zeitlich aufzuteilen sind und deshalb nicht in das Modell eingehen. Dies sind z.B. Osterfeuer, das Verbrennen von landwirtschaftlichen Abfällen nach der Ernte oder das Verbrennen von Laub im Herbst. Selbst wenn dies in Deutschland nicht vorkommt, können Emissionen aus z.B. Polen und Tschechien zu Episoden zu erhöhten BC-Konzentration in Deutschland beitragen. Bei Episoden, die sich mit den Szenarien nicht verbessern, wird nach Hinweisen auf solche Quellen gesucht. Einzelne Episoden werden mit Rückwärts-Trajektorien (Backtrajectories) detailliert untersucht.

8.1 Szenario 1: Änderung der räumliche Verteilung Hausbrand und landwirtschaftlicher Verkehr

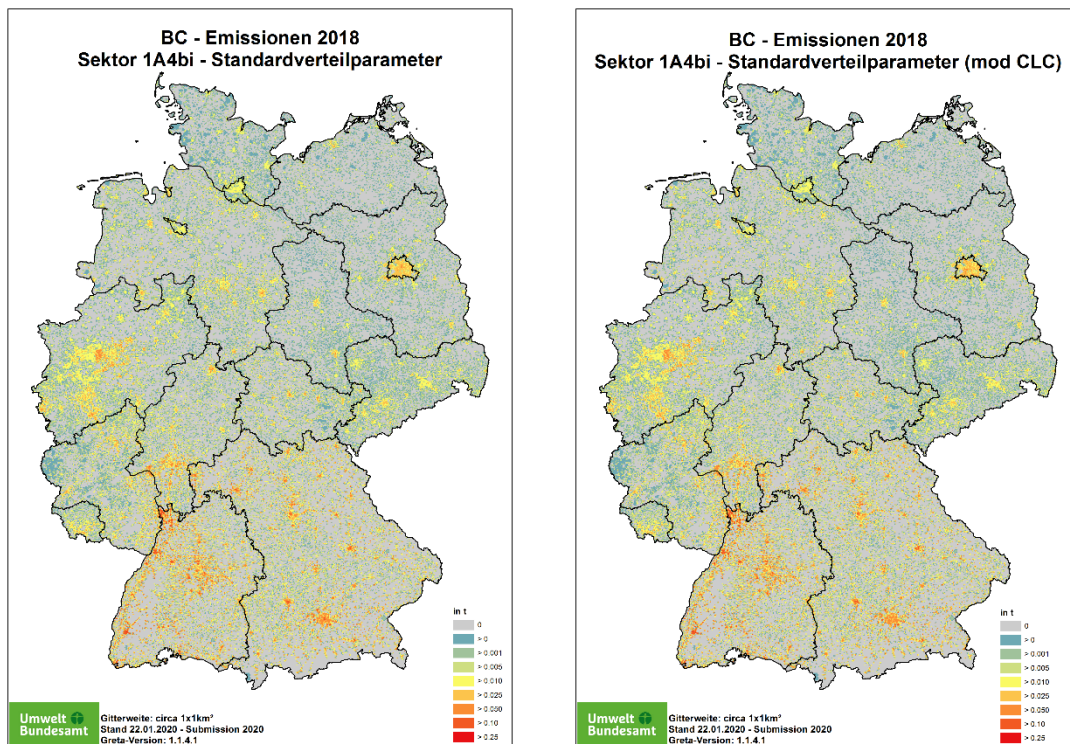
Es wurden Szenarien für den landwirtschaftlichen Verkehr und den Hausbrandsektor erstellt, die beide eine neue räumliche Verteilung der Emissionen umfassen. Diese beiden Sektoren werden in einem Szenario kombiniert, wobei der Labeling Ansatz sicherstellt, dass die Einflüsse separat bewertet werden können.

Es scheint, dass besonders in Ostdeutschland der Beitrag der Hausbrandemissionen noch unterschätzt wird. Die von GRETA und CAMS81-RWC verwendete Verteilung der Emissionen wurde in zwei Schritten verglichen. In GRETA ist die Verteilung auf Kreise für den Bereich Hausbrand am einflussreichsten mit weiteren Faktoren (Ortsgröße, Waldfläche im Bezirk, regionale Unterschiede im Holzverbrauch). Für CAMS werden die Bevölkerungsdichte und die Entfernung zum Wald verwendet. In beiden Fällen wird erwartet, dass weniger Haushalte in Großstädten mit Holz beheizt werden, aber die Gewichtung ist unterschiedlich. Obwohl der Ansatz auf Gemeindeebene die Größe der Orte berücksichtigt, bedeutet die Verteilung der Emissionen auf die Corine Landcover Classes, dass immer noch ein relativ großer Teil der Emissionen in dicht besiedelten Gebieten landet. Die relevanten Klassen (CLC2006) sind:

- CLC 111: continuous urban fabric
- CLC 112: discontinuous urban fabric
- CLC121: industrial and commercial units

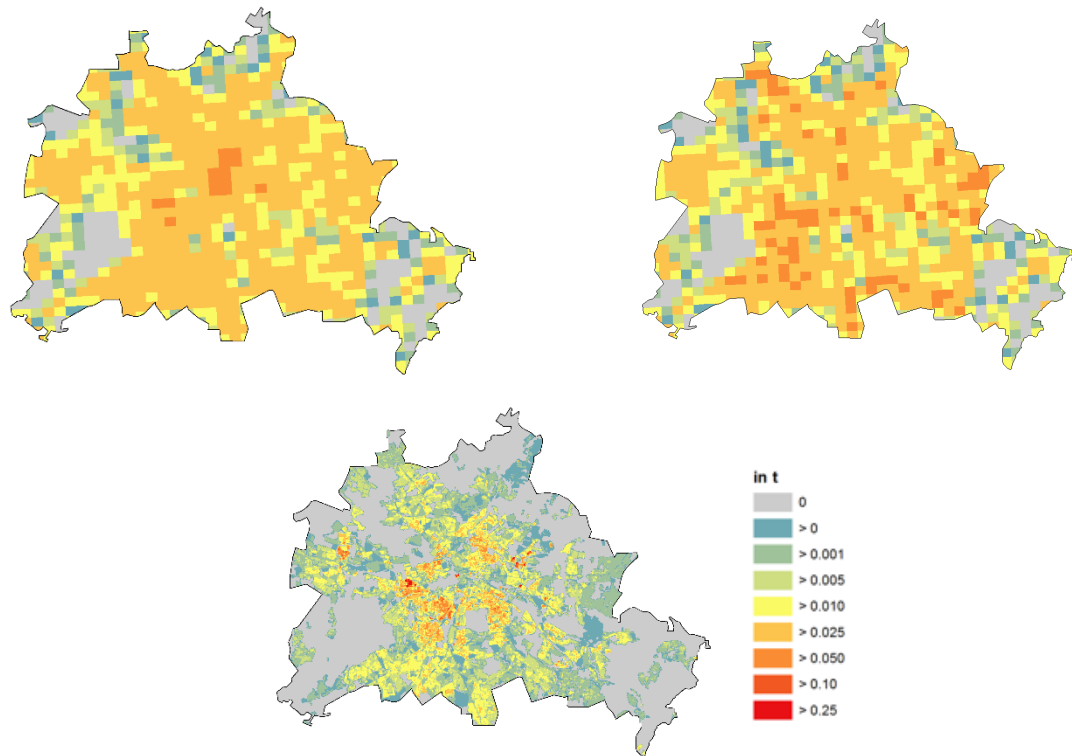
Im ersten Szenario ist die Verteilung innerhalb der Gemeinden nun doppelt gewichtet auf CLC 112. CLC111 wird nur mit einzelner Gewichtung berücksichtigt. Dies sollte dazu führen, dass sich die Emissionen weniger in den städtischen Zentren konzentrieren und mehr in dünner besiedelten Gebieten mit Gebäuden (z. B. Stadtrand), die überwiegend ihre eigene Feuerungsanlage besitzen. Für Deutschland und Berlin sind die Unterschiede in Abbildung 54 und Abbildung 55 dargestellt. Für Berlin stimmt die neue räumliche Verteilung eher mit der Verteilung des Berliner Senatsinventars überein (siehe auch Abbildung 63 und Abschnitt 8.5), wo die räumliche Verteilung detaillierte Katasterinformationen enthält.

Abbildung 54: Originale (links) und neue (rechts) Verteilung Emissionen Hausbrand



Quelle: UBA

Abbildung 55: BC Emissionen in Berlin Hausbrand Sektor, originale Verteilung (links) und neu gewichtete Verteilung (rechts), Ekataster Berlin (Unten)



Quelle: UBA

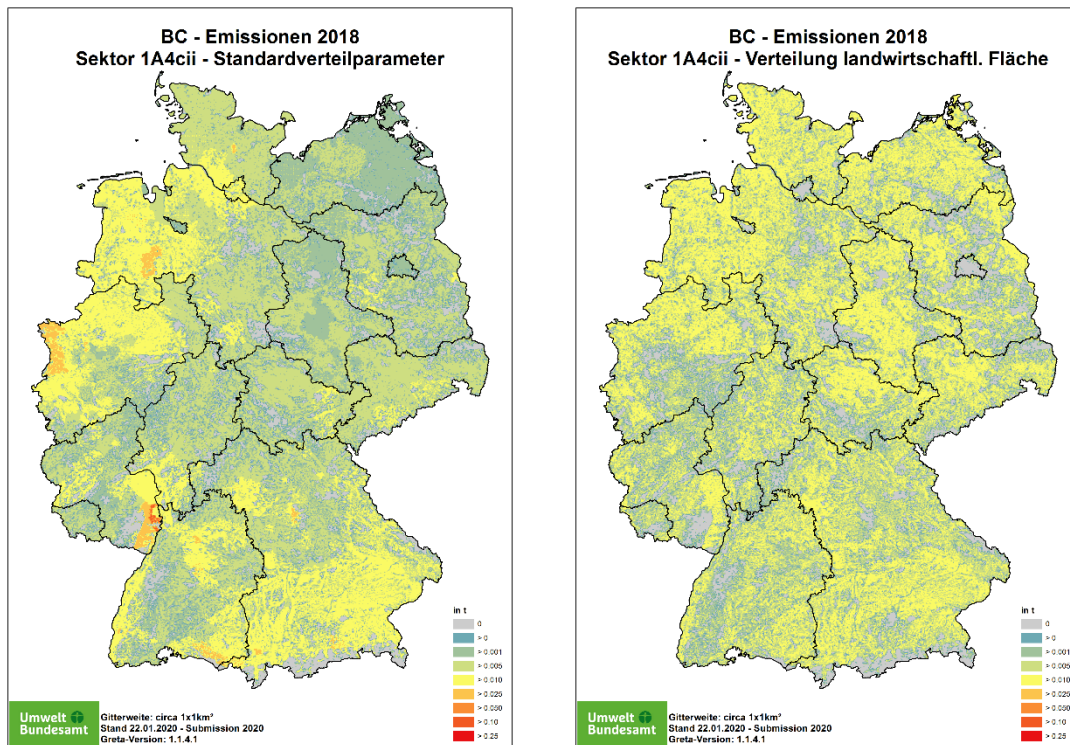
Der BC Emissionsanteil des landwirtschaftlichen Verkehrs ist viel höher als der des forstwirtschaftlichen Verkehrs und dominiert den Sektor 1a4cii. Die Emissionsverteilung des landwirtschaftlichen Verkehrs (Abbildung 41) entspricht nicht dem, was man aufgrund von Ackerbaugebieten erwarten würde. Die Emissionen sind in bestimmten Bezirken zu stark konzentriert. Die GRETA-Verteilung für den landwirtschaftlichen Verkehr basiert auf der Anzahl der in der Landwirtschaft beschäftigten Personen.

Nach dem neuen Ansatz wird 1A4cii nun ausschließlich auf die landwirtschaftlichen Flächen des CLC verteilt, d.h. jeder Kreis bekommt die Emissionen in Abhängigkeit von seiner landwirtschaftlichen Fläche zugeteilt. Innerhalb der Kreise wird sie entsprechend der Größe der Polygone zugewiesen. Die folgenden CLC-Klassen sind als landwirtschaftliche Flächen ausgewiesen:

- 12 Non-irrigated arable land
- 13 Permanently irrigated land
- 20 Complex cultivation patterns
- 21 Land principally occupied by agriculture, with significant areas of natural vegetation

Damit verschieben sich die Emissionen deutlich von den Regionen im Westen und Süden Deutschlands in die Mitte, den Osten und Norden. Das bedeutet, dass die Emissionen gleichmäßiger über Deutschland verteilt sind (Abbildung 56).

Abbildung 56: Ursprüngliche (links) und neue (rechts) Verteilung der BC Emissionen aus dem Sektor des landwirtschaftlichen Verkehrs

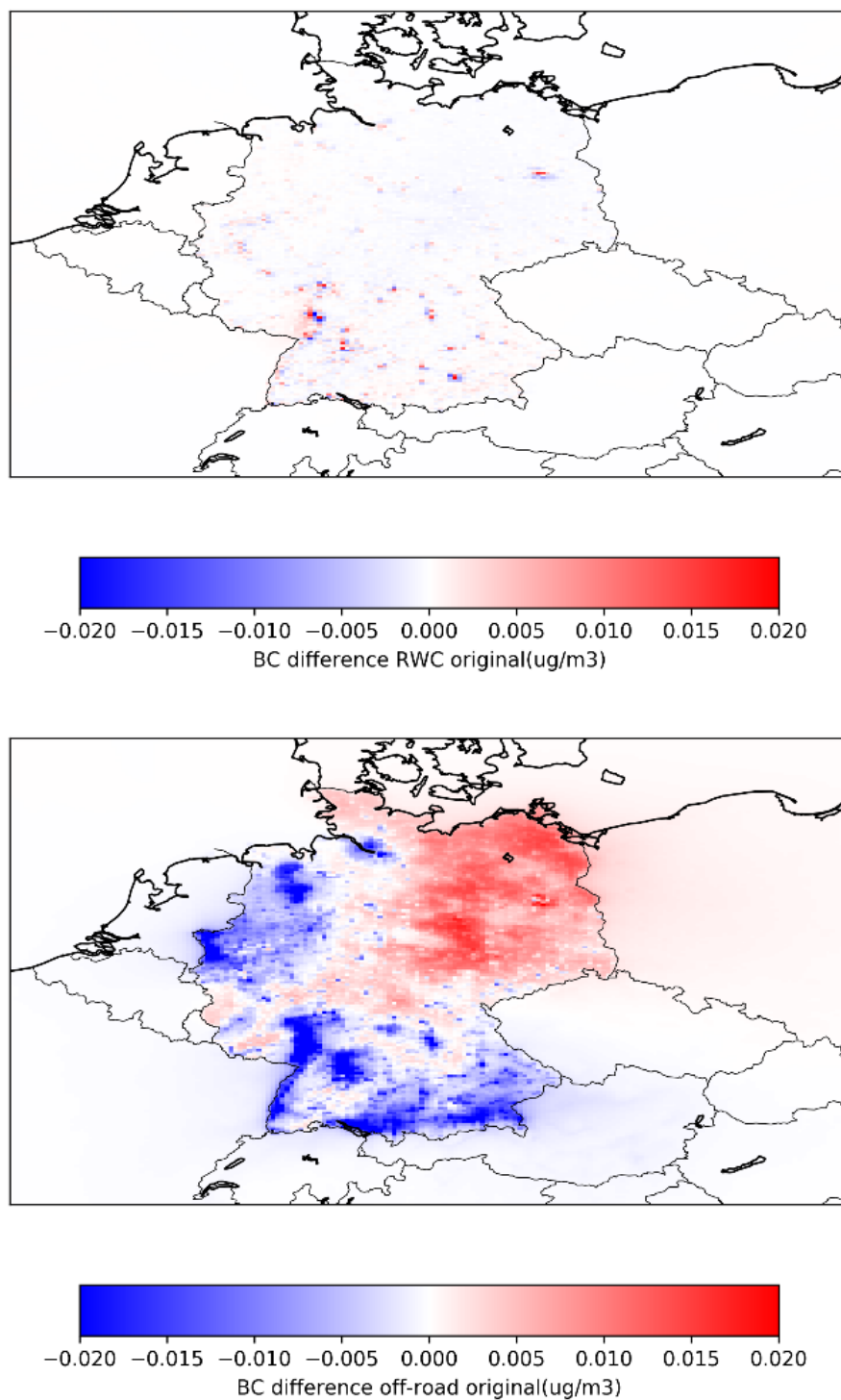


Quelle: UBA

Abbildung 57 zeigt den Effekt des Szenarios. Für die Veränderungen in der räumlichen Verteilung der Hausbrandemissionen ist der Effekt kleiner als $0,02 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Insbesondere in den Großstädten sanken die Jahresmittelwerte, in der unmittelbaren Umgebung der Städte stiegen sie an. Da die Kreise relativ groß sind, sind die Effekte auch bei einer Modellauflösung von 5 km noch sichtbar. Mit dieser neuen Verteilung kann die Unterschätzung bei ländlichen Stationen jedoch nur sehr limitiert verbessert werden, da diese Stationen außerhalb der bevölkerungsreichen Kreise liegen.

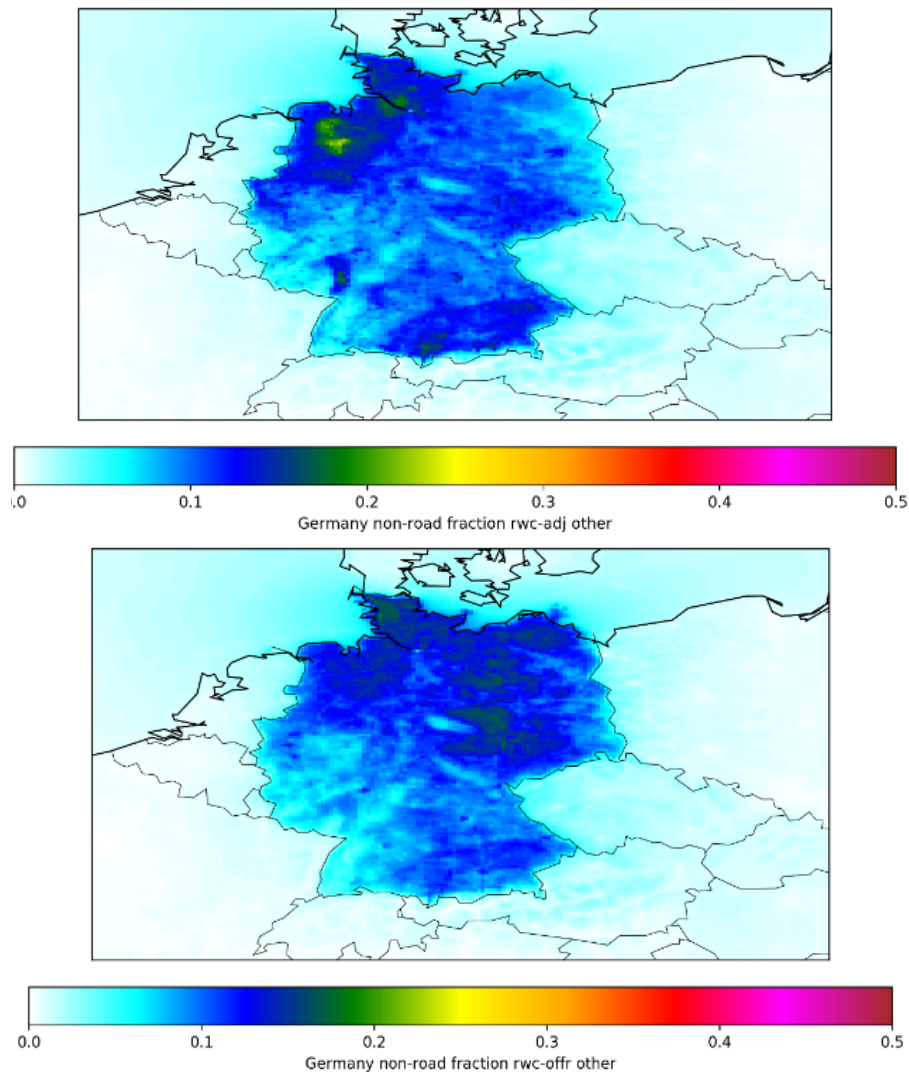
Mit der neuen Emissionsverteilung des landwirtschaftlichen Verkehrs ändern sich die Jahresmittelwerte der Konzentrationen auf nur $0,02 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was bei einem Jahresmittelwert von typischerweise $0,5\text{-}1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ eine Änderung von 2-5 % bedeutet. Der relative Beitrag des Sektors hat sich allerdings stärker verändert. In den landwirtschaftlich geprägten Gebieten Mitteldeutschlands, in denen die BC-Konzentrationen relativ gering sind, verdoppelte sich der relative Beitrag des Sektors (Abbildung 58), in den Gebieten mit ursprünglich hoher Konzentration halbierte er sich.

Abbildung 57: Differenz modellierter Beiträge zum BC Jahresmittlwert aus dem Hausbrandsektor (oben) und dem landwirtschaftlichen Verkehr (unten)



Quelle: TNO

Abbildung 58 Modellierte Beiträge des landwirtschaftlichen Verkehrs zum BC Jahresmittelwert für Schritt 1 (oben) und Szenario 1 (unten)



Quelle: TNO

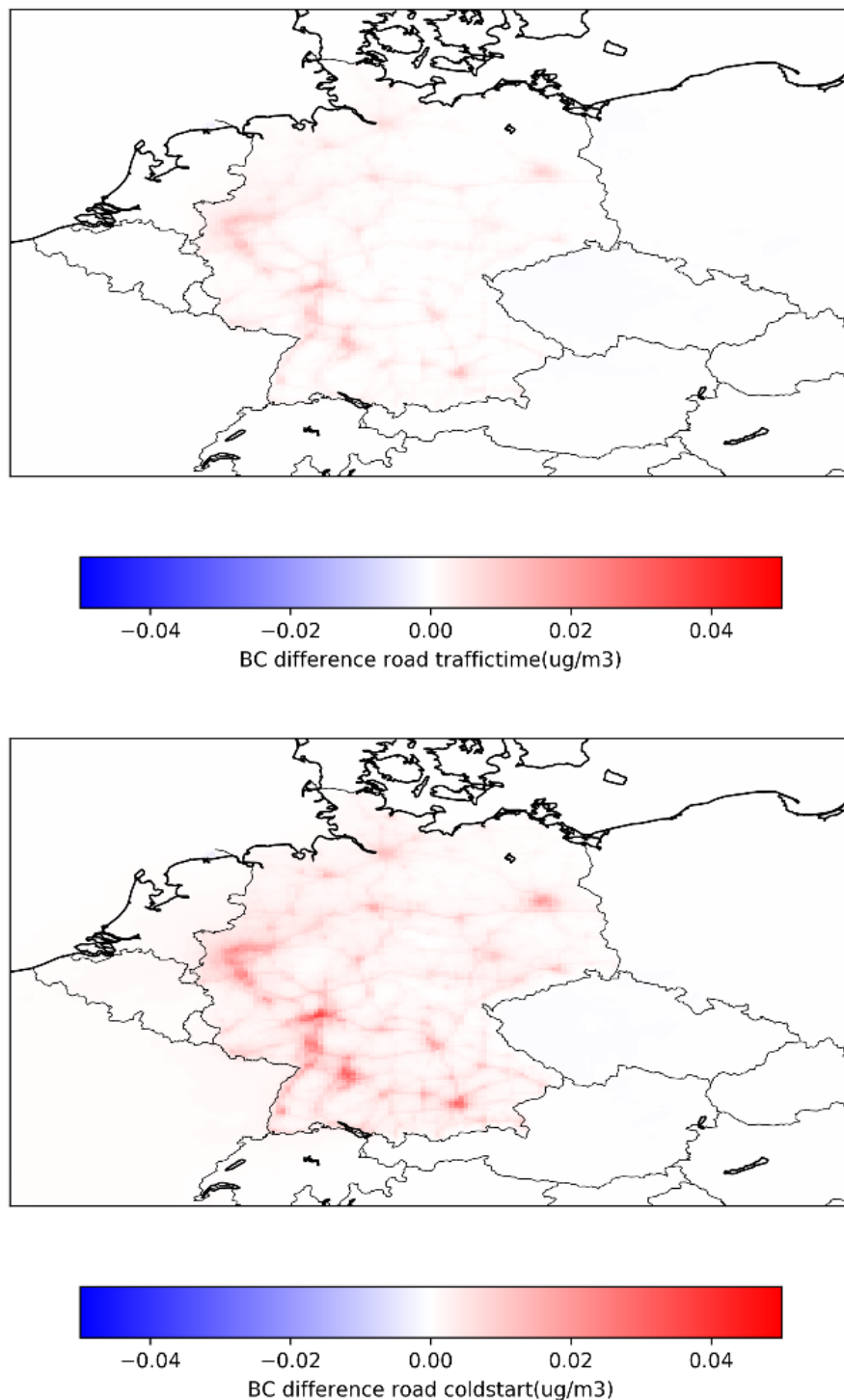
8.2 Szenario 2: + Zeitprofile Verkehr

Die Zeitprofile der Modellläufe der Grundlage und Schritt 1 wurden aus niederländischen Verkehrsdaten abgeleitet. Für Deutschland wurden weitere Profile für LKW, PKW, Stadtverkehr und Autobahnen abgeleitet (Mues et al., 2014). Diese werden im Szenario 2 zusätzlich zu den räumlichen Änderungen von Szenario 1 angewendet. Für den Straßenverkehr wird die Verteilung der Treibstoffe (Autogas/Diesel/Benzin) im aktuellen Modellauf nicht weiterverfolgt. Die Verteilung in Raum und Zeit könnte durch die Berücksichtigung des Treibstoffes verbessert werden, wobei Diesel am meisten zu BC beiträgt. Jedoch sollte der Effekt, relativ zu den heutigen Unsicherheiten, klein sein.

Der Effekt der neuen Zeitprofile verursacht einen höheren Jahresmittelwert der BC-Konzentration (Abbildung 59) von bis zu $0,02 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Der Effekt ist in Städten und dicht besiedelten Gebieten, wie dem Ruhrgebiet, am größten. In diesen Gebieten ergibt sich ein modellierter Beitrag von $0,2\text{-}0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (z.B. Mainz), was einer Zunahme von 5-10% entspricht.

Die Jahressumme der Emissionen hat sich nicht verändert, d.h. Emissionen treten eher unter Bedingungen auf, bei denen die Verdünnung geringer ist, was zu einem Nettoanstieg der Konzentrationen führt.

Abbildung 59: Differenz modellierter Beiträge zum BC Jahresmittlwert: Effekt der deutschland-spezifischen Verkehrszeitprofile, Szenario 2 -Schritt 1 (oben) und Gesamteffekt der Zeitprofile und Kaltstart Zeitprofile (Szenario 3-Schritt 1, unten).



Quelle: TNO

8.3 Szenario 3: + Kalter start PKW

Bei der Ermittlung der Jahressummen der Emissionen des Straßenverkehrs durch das UBA wird berücksichtigt, dass die Emissionen bei kaltem Motor höher sind und bei warmem Motor abnehmen. Die im Modell verwendeten Zeitprofile (Basis und Szenario 2) basieren auf Verkehrszählungen und stellen somit nur Aktivitäten dar. In Szenario 3 wird dies verbessert, indem auch die Emissionen aus dem Kaltstart von PKWs und leichten Nutzfahrzeugen (Lieferwagen) explizit berücksichtigt werden. Dies führt zu höheren Emissionen am Morgen, insbesondere im Winter. Die Kaltstartprofile sind nicht relevant für LKWs, die ein ganz anderes Aktivitätsmuster haben. Zur Ermittlung der zeitlichen Umverteilung wird hier die Beschreibung der Emissionen aus dem EMEP/EEA Air Pollutant Emission Inventory Manual verwendet (EMEP/EEA 2018).

$$E_{total} = E_{hot} + E_{cold}$$

$$E_{cold} = N * M * e_h * \beta * \left(\frac{e_c}{e_h} - 1 \right)$$

$$E_{hot} = N * M * e_h$$

| | | |
|--------------------|---|---|
| E_{cold} | = | Kaltstart Emissionen |
| β | = | Verhältnis der Strecke, die mit kaltem Motor gefahren ist |
| N | = | Anzahl der Fahrzeuge |
| M | = | Totale Strecke des Fahrzeugtyps, |
| e_{hot} | = | hot emission factor pro Fahrzeugtyp und Schadstoff, |
| e_{cold}/e_{hot} | = | cold/hot emission Quotient pro Fahrzeugtyp und Schadstoff. Für PM ist $e_{cold}/e_{hot}=3.1-0.1 t_a$ mit t_a Außentemperatur in Grad Celsius. |

Der Parameter β und der Quotient e_{cold}/e_{hot} sind temperaturabhängig und werden zur Umverteilung der Emissionen über die Zeit verwendet. Im aktuellen Ansatz werden die Gesamtemissionen von Diesel-Pkw und leichten Nutzfahrzeugen auf Basis von Zeitprofilen verteilt. Streng genommen sollten die Emissionen vor allem Wohngebieten zugeordnet werden und weniger den Autobahnen, wo der Motor meist schon warm ist. Die räumliche Verteilung von GRETA berücksichtigt die Straßenklassifizierungen und die Verkehrsaktivität, so dass der Großteil der Emissionen in städtischen Gebieten liegt. Durch die reine Arbeit mit Zeitprofilen in unserem Ansatz wird ein kleiner Teil der Kaltstart-Emissionen fälschlicherweise den Autobahnen zugeordnet. Der hier gemachte Fehler sollte, im Verhältnis zu der Nettoverbesserung durch Einbeziehung des Kaltstarts, gering sein.

Diese Aufteilung wird auf PKW 1A3bi und leichte Nutzfahrzeuge (LDV, 1A3bii) angewendet. Es wird angenommen, dass im Durchschnitt EURO 3 und ein Hubraum von 1,4 Litern gelten und dass LDVs die gleichen Zeitprofile wie PKWs haben. Der Beitrag wird für Straßen, die als städtisch und ländlich klassifiziert sind, getrennt berechnet.

Die Folge ist ein weiterer Anstieg der Jahresmittelwerte der BC-Konzentration (Abbildung 59). Der Anstieg ist stärker als bei den Verkehrsprofilen von Szenario 2. Der Gesamteffekt beträgt bis zu 0,05 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ auf Jahresbasis, für Kälteperioden steigen die Beiträge stärker an.

Die Summe der Emissionen hat sich nicht verändert, d.h. die Emissionen wurden lediglich zeitlich umverteilt und sind damit höher unter kalten Bedingungen mit geringerer Verdünnung und die BC Konzentrationen steigen.

8.4 Szenario 4: + Zeitliche Verteilung landwirtschaftlicher Verkehr

Die Verteilung der Emissionen über die Zeit kann weiter runtergebrochen werden, wenn die landwirtschaftlichen Praktiken besser parametrisiert sind. Zum Beispiel wurde eine Emissionsverteilung für Ammoniak für Flandern erstellt, die auf Temperatur, Schnee und Bodenfeuchtigkeit sowie der Tatsache basiert, dass der Sonntag ein Ruhetag ist (Hendriks et al., 2016). Dadurch wurden die Emissionen zeitlich stärker konzentriert, was zu einer besseren Darstellung der Episoden führte.

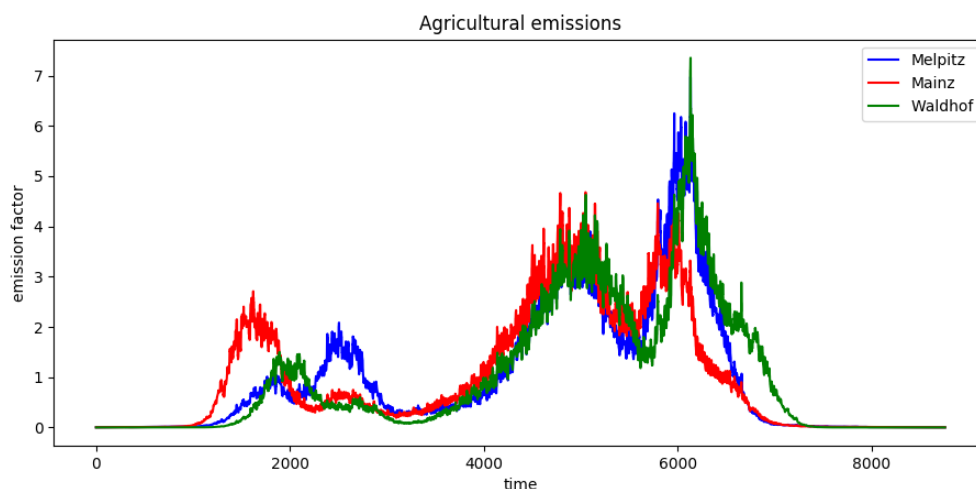
Für Deutschland wird vorgeschlagen Temperatursummen zu verwenden, um Zeiten der Landbearbeitung besser zu berücksichtigen. Der Zeitpunkt der Emissionen variiert von Jahr zu Jahr und hängt auch von der genauen Kulturart ab. Bodenbearbeitung, Düngung und Aussaat beginnen im Frühjahr, wenn eine kulturspezifische Temperatur erreicht ist und der Boden aufgetaut sein muss.

Der Ansatz ist das Bodenbearbeitung in engem zeitlichem Zusammenhang mit der Düngung steht und auch die Erntesaison nach einer pflanzenartenspezifischen Zeit nach der Düngung und Aussaat beginnt. Basierend auf einer detaillierten Karte für Deutschland werden unter Berücksichtigung von Kulturart und Temperatursumme jahresspezifische Zeitprofile erstellt. Der Ansatz ähnelt dem Ansatz für Ammoniak (Hendriks et al., 2016), wobei es in Deutschland keinen solchen Ruhetag gibt und die Gewichtung unterschiedlich ist, mit weniger konzentrierten Emissionen im Frühjahr und mehr Emissionen in der Erntezeit als für Ammoniak, das stärker mit Düngung zusammenhält

Die Emissionen sind in den Gitterzellen der Messstationen für Melpitz, Waldhof und Mainz dargestellt (Abbildung 60). Es gibt deutliche Unterschiede zwischen den Standorten und eine starke zeitliche Variabilität bei der Verarbeitung und Ernte.

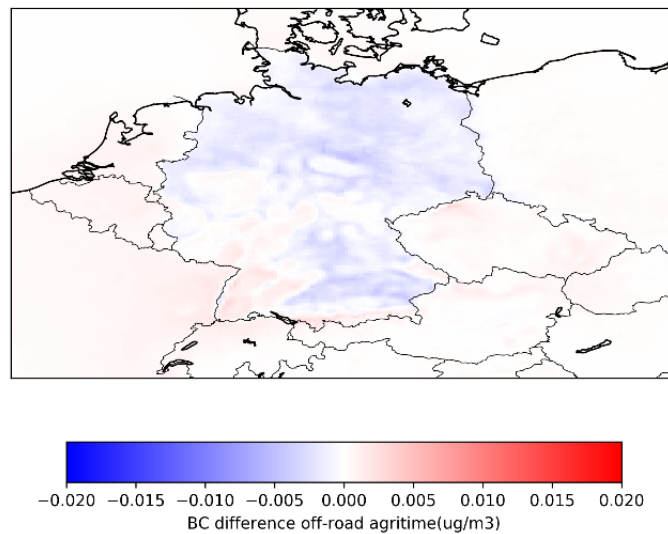
Der Einfluss auf die Jahresmittelwerte ist relativ gering ($0,01 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Abbildung 61). Die Jahresmittelwerte haben sich mit diesen Zeitprofilen verringert, obwohl sich die Jahressummen nicht verändert haben. Die Emissionen treten nun mehr im Frühjahr und Sommer auf als in kalten und stabilen Winterperioden, bei denen die Verdünnung geringer ist. Die stärkeren Emissionen im Sommer führen jedoch dazu, dass ein Teil der Unterschätzung des Modells beseitigt wird, was z. B. für Melpitz deutlich sichtbar ist (Abbildung 71).

Abbildung 60: Emissionszeitprofile für landwirtschaftlichen Verkehr



Quelle: TNO

Abbildung 61: Differenz modellierter Beiträge zum BC Jahresmittlwert Szenario 4-Szenario2



Quelle: TNO

8.5 Szenario 5: + Hausbrandemissionen wie in CAMS-RWC

Es gibt zwei Gründe dafür, der räumlichen Verteilung der Hausbrandemissionen ein zweites Szenario zu widmen. Als alternative Verteilung der Hausbrandemissionen steht die Methode CAMS81_RWC zur Verfügung.

Zunächst zeigten die Analysen von Grundlage und Schritt 1, dass die BC Werte im Hausbrandsektor in Ostdeutschland deutlich unterschätzt werden, während hingegen die Hausbrandemissionen in Rheinland-Pfalz nur gering unterschätzt werden. Szenario 1 führt zu einer neuen Verteilung der Hausbrandemissionen, wobei Gebiete mit nicht durchgängiger Bebauung stärker gewichtet werden. Dies reduzierte aber die Unterschätzung für ländliche Gebiete nicht wesentlich, da die Landkreisinformationen immer noch die nationale Verteilung dominieren.

Zweitens liegt ein Bottom-up-Emissionsinventar für Berlin vor (Berliner Emissionskataster, Abschlussbericht 2016). Darin beträgt die Summe für die Hausheizung 44029,8 kg. Diese Emissionen sind deutlich geringer als die Emissionen, die Berlin in GRETA zugeordnet werden. Für dieses Inventar wurden Gebäudecharakteristika, wie der Wärmebedarf (aus dem Kataster), Daten von Schornsteinfegern und die Nutzung von Fernwärme in bestimmten Stadtvierteln als Datensätze genommen. Die Emissionen aus diesem Inventar werden mit den GRETA-Emissionen für Berlin und den CAMS81_RWC-Emissionen für Berlin verglichen. Es ist zu beachten, dass für Berlin auch die Kohleverbrennung zum EC beiträgt. Der Anteil der Holzverbrennung (nicht Pellets) beträgt 26000 kg/Jahr. Um die Emissionen vergleichbar zu machen, werden auch die Emissionsfaktoren für die Holzverbrennung gegenübergestellt. Die PM_{2,5}-Emissionsfaktoren sind mit 99 g/GJ vergleichbar mit dem Emissionsfaktor aus Schritt 1. Die in dem Berliner Kataster verwendeten EC-Faktoren (17,0 %) sind niedriger als im Schritt 1 für GRETA angenommen (30 %). Daher wird eine zusätzliche Schätzung vorgenommen, um dies auszugleichen.

Die Emissionen für Berlin (Tabelle 17) sind aufgrund der GRETA-Verteilung fast doppelt so hoch (Faktor 1,76) wie die Berliner Bottom-up-Emissionen. Wenn die CAMS81_RWC-Verteilung angenommen wird, sind die Emissionen viel niedriger als die Bottom-up-Emissionen (Faktor 0,6) sowie als auch für GRETA (Faktor 0,35).

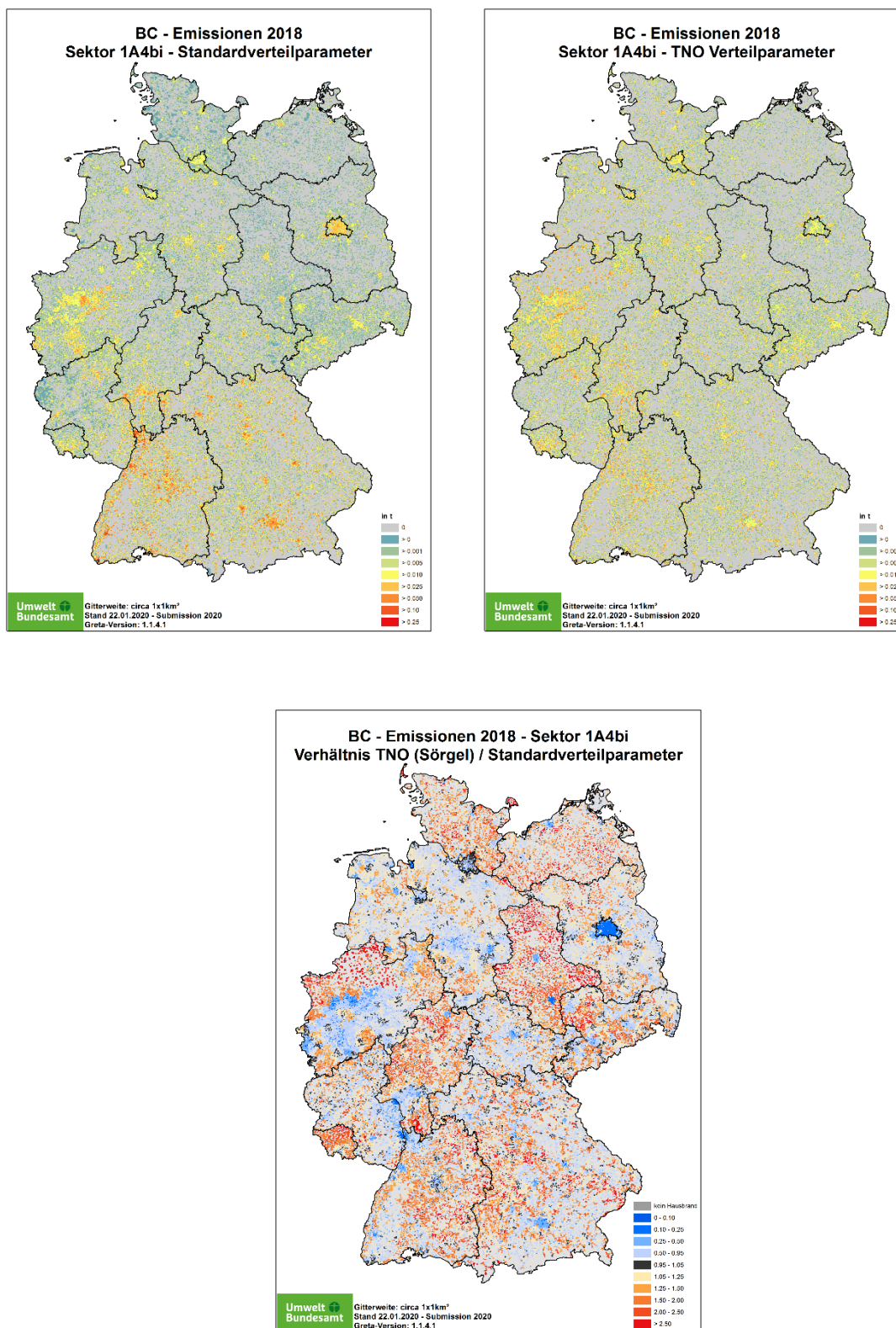
Tabelle 17: Vergleich der Emissionen für Berlin aus dem Berliner Emissionskataster, dem UBA-Inventar mit GRETA-Verteilung und dem UBA-Inventar mit CAMS81_RWC-Verteilung.

| Quelle | Kg BC/Jahr |
|---|------------|
| Senat Berlin original (Hausbrand total) | 44000 |
| Holz | 26000 |
| Senat Berlin 30% EC factor | 57239 |
| Nur Holz | 46000 |
| Greta Berlin | 25908 |
| Greta Berlin Schritt 1 | 100940 |
| Greta Berlin genauer Ausschnitt Schritt 1+CAMS81_RWC Verteilung | 35427 |

In Abbildung 62 und Abbildung 63 sind die räumliche Verteilung mit CAMS81_RWC und der Unterschied zur GRETA abgebildet. Diese Abbildung 62 kann verglichen werden zu Abbildung 54. Die Unterschiede zwischen den räumlichen Verteilungen mit CAMS81_RWC und GRETA zeigen sich am stärksten in den Großstädten (z.B. Berlin, München, Frankfurt), wo die CAMS81_RWC Gitter zu niedrigeren Emissionen führt, wobei die kleinen Siedlungen in CAMS81_RWC höhere Emissionen haben. Auch sind in den GRETA Emissionen die Werte in den südlichen Bundesländern Baden-Württemberg und Bayern höher als in den CAMS Emissionen.

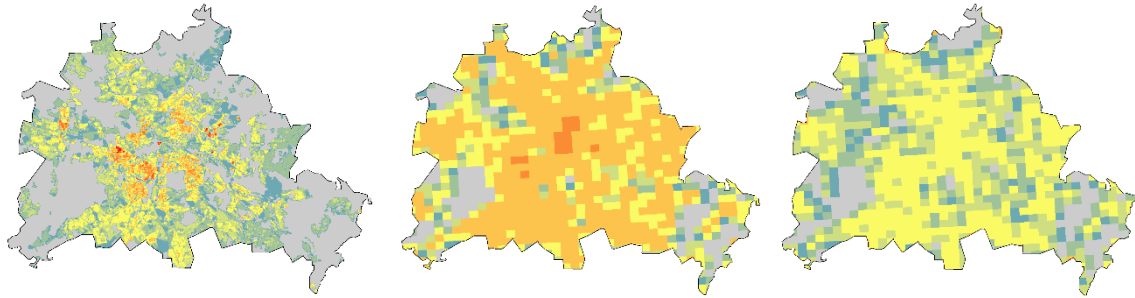
Auch ist die räumliche Variabilität in Berlin mit CAMS81-RWC geringer (Abbildung 63), wobei die Emissionen außerhalb Berlins größer sind als innerhalb Berlins, mit unrealistischen Gradienten an den Stadtgrenzen.

Abbildung 62: Verteilung Hausbrandemissionen mit ursprünglich (links oben) und mit CAMS_RWC Parameter (rechts oben) Unten: Verhältnis der beiden Verteilparameter



Quelle: UBA

Abbildung 63: Verteilung der bottom-up Emissionen für 2016 in Berlin: Berliner Emissionskataster 100m (links), GRETA Standard (mitte) und CAMS_RWC (rechts). Siehe auch Abbildung 29



Quelle: UBA

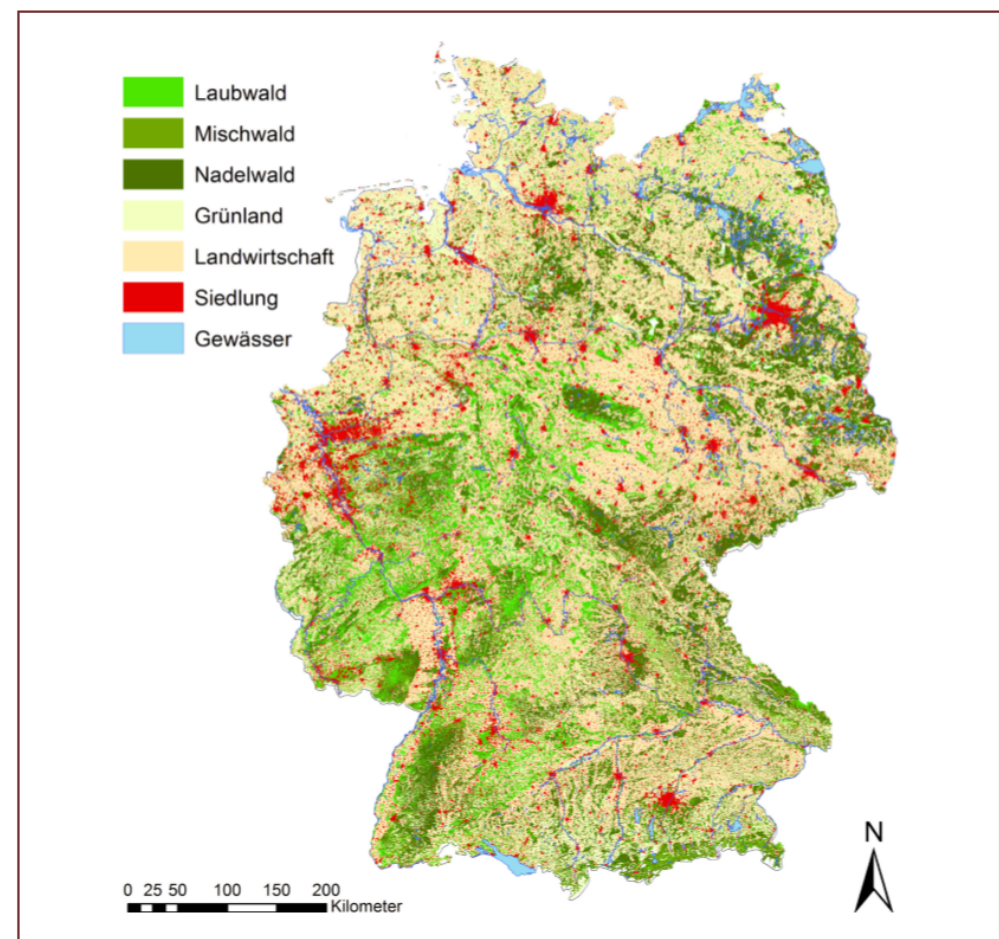
Beide Verteilungen, CAMS81_RWC und GRETA (Tabelle 18), haben starke Einschränkungen. Die Aufteilung mit der Waldfläche auf Kreisebene führt dazu, dass für Berlin und Brandenburg eine Waldfläche von 0,365 angenommen wird, was für die Stadt Berlin zu hoch erscheint und die Diskrepanz zur Bottom-up-Inventar teilweise erklären kann. Die Verwendung der Regionen nach Mantau und Sörgel (2006) führt zu einer stärkeren Gewichtung von Bayern und Baden-Württemberg. Diese Gewichtung zeigt deutlich eine starke Abgrenzung zwischen den Bundesländern, die vermutlich nicht realistisch ist. Andererseits erlaubt dieser Ansatz die Berücksichtigung von regionalen Unterschieden, die auf andere Weise nicht dargestellt werden können. In der CAMS81_RWC Verteilung gibt es keinen solchen regionalen Unterschied. Die CAMS81_RWC Verteilung hat einen stärkeren Einfluss von Waldfläche und Bevölkerungsdichte pro Gitterzelle, was zu relativ geringen Emissionen in Berlin führt. Wo der Kreisansatz zu einer Überschätzung führt, führt der lokale Ansatz zu einer Unterschätzung der Emissionen. Es könnte sein, dass auch der Waldtyp relevant ist. Die Verteilung der Waldfläche in Deutschland mit der Unterscheidung zwischen Laubwald, Nadelwald und Mischwald ist in Abbildung 64 dargestellt. Es könnte sein, dass Nadelwälder aufgrund ihrer geringeren Holzqualität und ihres schnelleren Wachstums mehr zum Heizen genutzt werden als Laubwälder. Der Unterschied ist in den Regionalfaktoren von Mantau und Sörgel (2006) impliziert, nicht aber im Faktor Waldfläche pro Bezirk oder Waldfläche pro Gitterzelle.

Der Effekt des Szenarios auf die Jahresmittelkonzentrationen (Abbildung 65) ist mit bis zu 0,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ relativ groß. Die Konzentrationen sind im Süden niedriger und im Norden höher und sind in den großen Städten, wie Berlin und München, aber auch in den kleineren Städten im Norden Deutschlands stark gesunken.

Tabelle 18 Vergleich der räumlichen Verteilparameter in CAMS81_RWC und GRETA

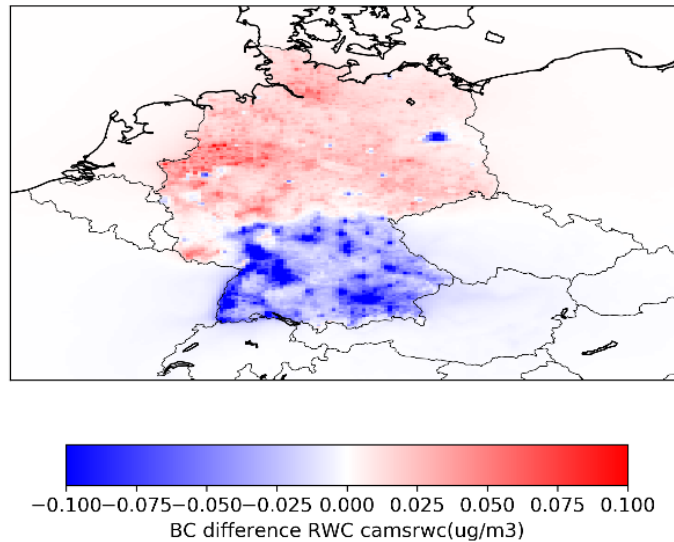
| | CAMS | Greta |
|--------------------------|--|---|
| Bevölkerung | Gewichtung Bevölkerungsdichte, Rural/Urban. In ruralen Gebieten 2-mal so viel Feuerungslagen | Anzahl der Einwohner, Anzahl der Haushalte, Anzahl der Feuerungsanlagen und Holzbedarf auf Gemeinde-Ebene mit Faktoren abhängig von Einwohnerzahl pro Gemeinde. |
| Waldfläche | Gewichtung Bevölkerungsdichte mit Waldfläche pro Gitterzelle | Gewichtung mit Waldfläche auf Kreis-Ebene |
| Regionale Differenzen | Keine | Gewichtung 5 Regionen |

Abbildung 64 Verteilung von Waldtypen in Deutschland



Quelle: https://www.nees.uni-bonn.de/pdf/mutke_quandt_2018_forschungundlehre_deutschewald

Abbildung 65: Differenz der modellierten BC Konzentrationen im Jahresmittel (Szenario 5 - Szenario1)

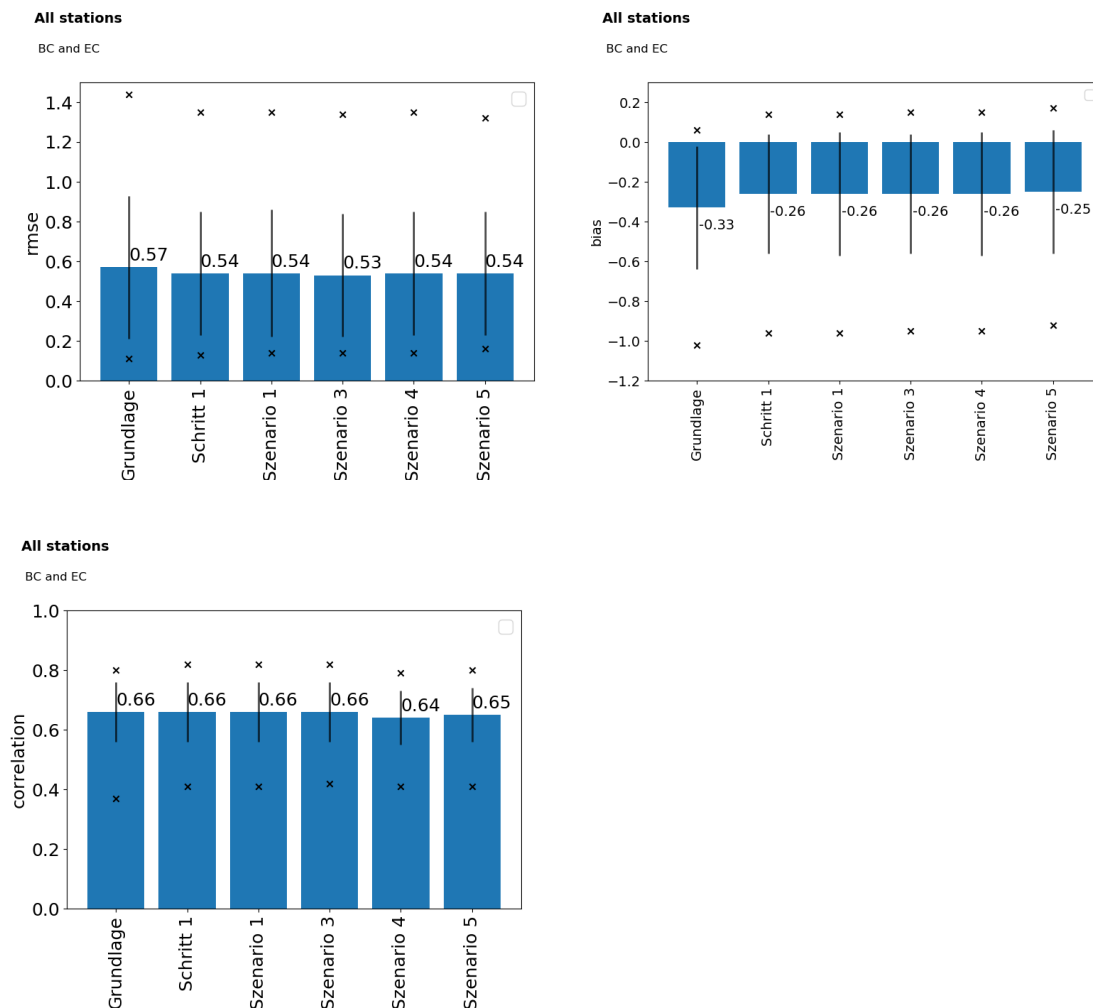


Quelle: TNO

8.6 Zusammenfassung der Szenarien

Alle Szenarien werden mit Messungen verglichen für September 2016-April 2017 (PM₁₀) und das ganze Jahre 2017 (MAAP and Aethalometermessungen und EC Melpitz, siehe Anhang A und Abschnitt 6.5). Die Auswertungen sind pro Szenario für jede Station in Anhang B aufgelistet. Ein Vergleich der Mittelwerte ist in Abbildung 66 dargestellt. Minimum und Maximum werden als Kreuze dargestellt, die Standardabweichung wird als Linie angezeigt. Die Abbildung zeigt, dass sich die Qualität des Modells hinsichtlich Bias, RMSE und Korrelation mit jedem Schritt verbessert. Obwohl sich die Mittelwerte von Schritt zu Schritt nur geringfügig ändern (mit Ausnahme der relativ große Abnahme des Bias von Schritt 0 zu Schritt 1), wird die Variabilität kleiner und vor allem die Stationen, die am schlechtesten modelliert sind, zeigen eine höhere Korrelation und einen geringeren Bias. Für einige Stationen waren die Mittelwerte einiger Modellläufe höher als die Mittelwerte der Messungen. Bei der Interpretation ist zu beachten, dass die Messungen mit unterschiedlichen Geräten durchgeführt wurden, so dass regionale Unterschiede teilweise darauf zurückzuführen sind.

Abbildung 66: Mittelwerte der Statistik für alle nicht-Straßenstationen im Jahr 2017 und September 2016-April 2017. Standardabweichung als schwarze Linien, Minimum und Maximum sind mit Kreuz gekennzeichnet.



Quelle: TNO

Für Aethalometerdaten werden üblicherweise Standardfaktoren verwendet, um von der gemessenen Extinktion zur BC-Masse zu gelangen. Dieses Verfahren wird in Kapitel 5 näher erläutert. Für die Berliner Messungen wurde eine Reduktion des BC um etwa einen Faktor 2 festgestellt, wenn anstelle von Standardfaktoren optimierte Umrechnungsfaktoren verwendet werden, die auf EC-Filtermessungen beruhen, die gleichzeitig mit BC-Messungen am gleichen Standort durchgeführt wurden. Die Umrechnungsfaktoren sind abhängig von der Zusammensetzung des Aerosols (direkt nach dem Auspuff oder nach Wechselwirkung in der Atmosphäre). Petzold et al. (2013) beschreiben, dass Vergleiche von chemischen und optischen Methoden für BC-Konzentrationen bis zu einem Faktor 7 Unterschied zeigen, obwohl die Korrelation gut ist. Bond et al. (2013) beschreiben in ihrem Review MAC-Werte im Bereich von $2\text{--}20 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ (Standardwert $7,77 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$). Der Absorptionskoeffizient enthält auch eine Abhängigkeit für die Aerosolzusammensetzung und -größe, die bei der Anwendung von Standardwerten nicht berücksichtigt wird. Bei Aethalometern werden oft 10-20% höhere Werte als bei MAAP-Geräten gefunden. Petzold et al. (2013) empfehlen, die verwendeten MAC-Werte zusätzlich zu erwähnen, wenn BC-Werte aus Absorptionsmessungen berichtet werden.

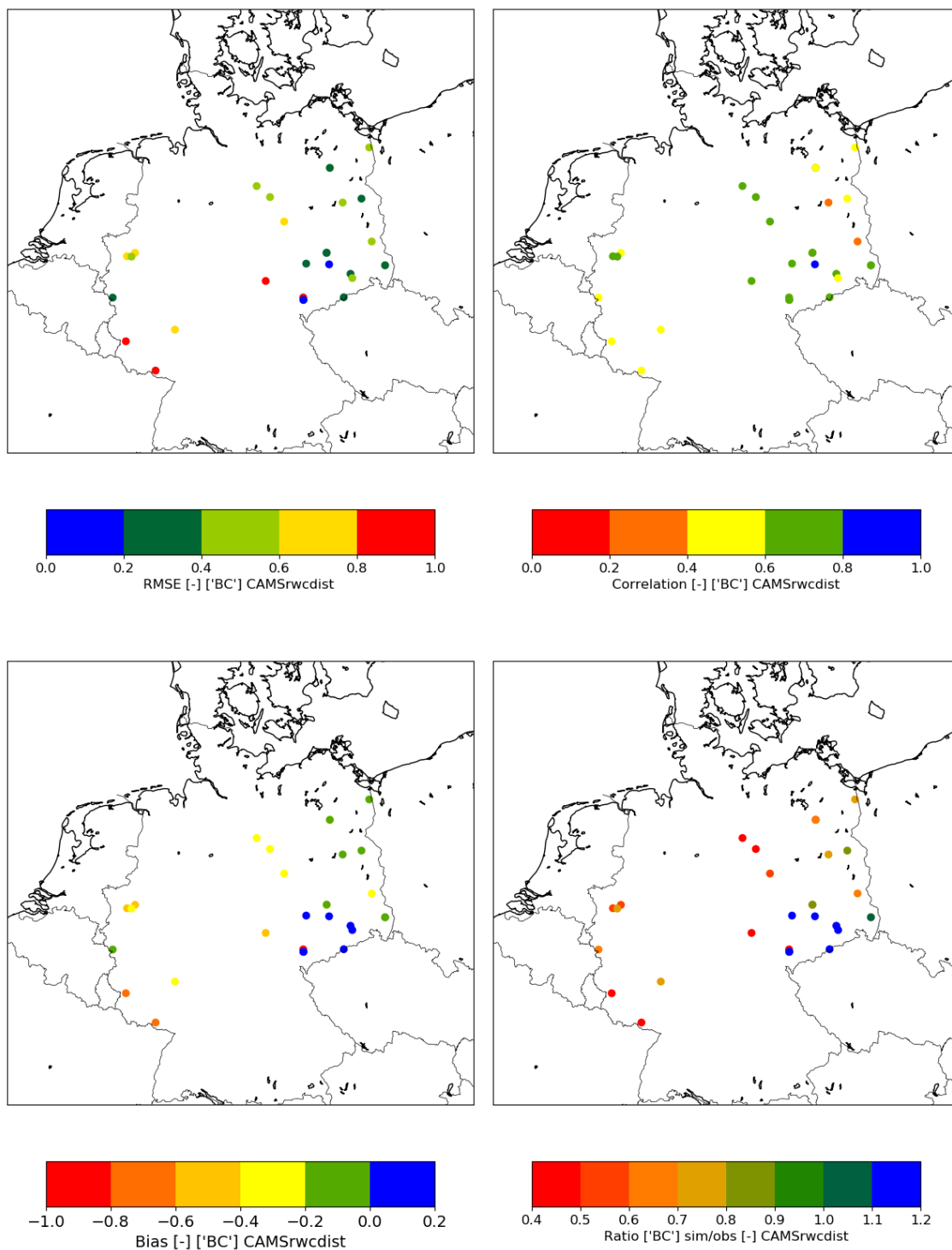
Das bedeutet, dass ein Teil der Diskrepanz zwischen Modell und Messungen durch eine Überschätzung des BC von Aethalometern (und vielleicht im geringeren Ausmaß für MAAP) verursacht werden könnte, wenn Standardfaktoren verwendet werden. Der Vergleich von Modellrechnungen mit Messungen zeigt ebenfalls Biases, die für die Messnetze unterschiedlich und für die aus Aethalometern bestehenden Messnetze (Nordrhein-Westfalen, Sachsen-Anhalt) stärker sind.

Als Sensitivitätsexperiment bezüglich der Messungen werden die modellierten Werte mit skalierten BC-Konzentrationen von Aethalometern verglichen, bei denen die gemessene Konzentration halbiert wird (Abbildung 68 und Abbildung 69). Die Korrelation ändert sich nicht, aber der Bias und der RMSE ändern sich deutlich. Das Ergebnis ist, dass der Bias an diesen Stationen stark reduziert wird, ebenso wie der RMSE. Die Werte stimmen jetzt viel besser mit den Werten der EC-Messungen überein.

Für MAAP ist eine Halbierung nicht vertretbar, aber es ist auch bei diesen Messungen durchaus möglich, dass die angegebenen BC-Werte etwas zu hoch sind. Für diese Messungen wurde auch ein neuer Vergleich ausgewertet, bei dem die MAAP-Konzentrationswerte um 30 % reduziert wurden.

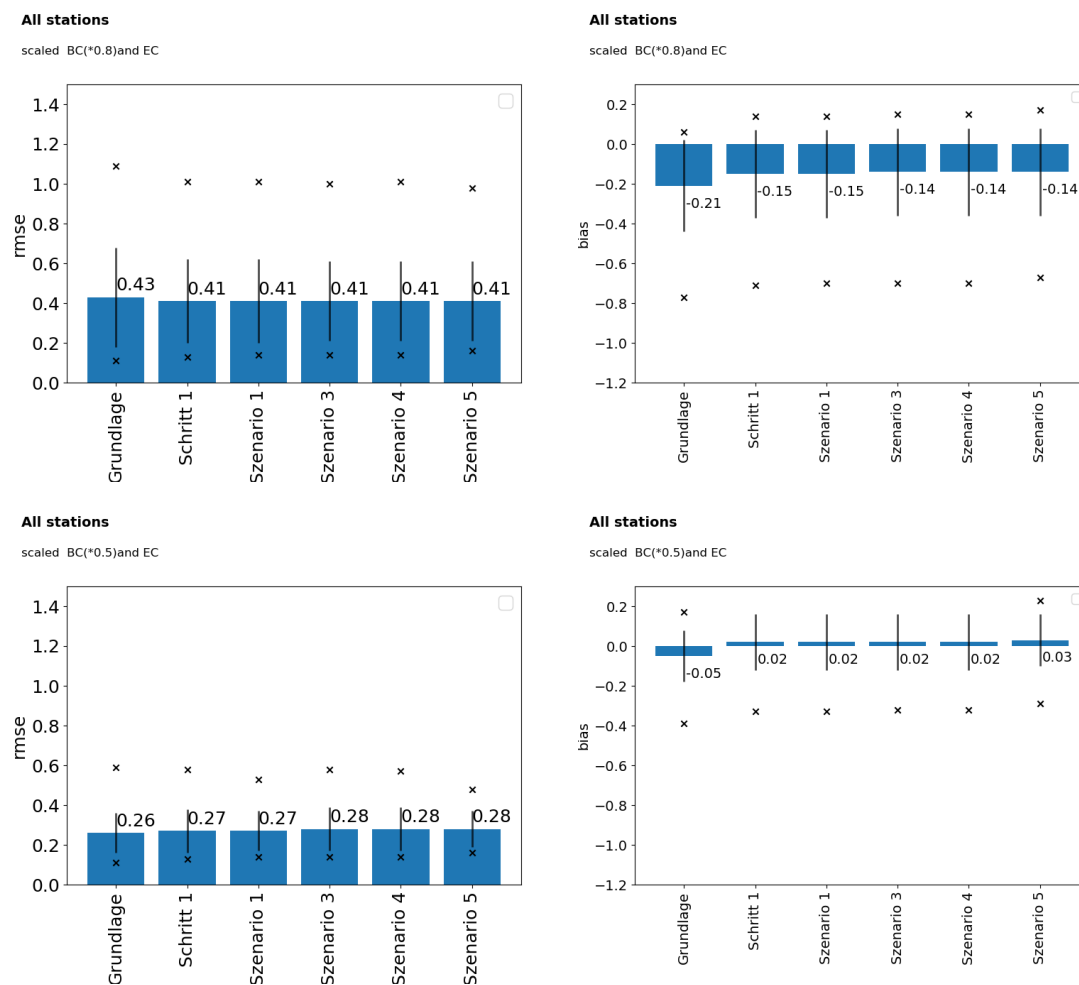
Es ist nicht möglich, MAAP- und AE33-Daten ohne weitere Untersuchungen zu skalieren. Wir zeigen hier nur, dass die Diskrepanz zwischen Messnetzen (MAAP-, AE-, EC-Filter) im Vergleich zu Modellrechnungen für ganz Deutschland deutlich abnimmt, wenn wir davon ausgehen, dass insbesondere die AE33-Messungen und im geringeren Maße die MAAP-Messungen eine Überschätzung der BC im Vergleich zu EC-Messungen mit dem TOT-Protokoll zeigen.

Abbildung 67: Statistische Parameter für Szenario 5, direkter Vergleich zu Messungen



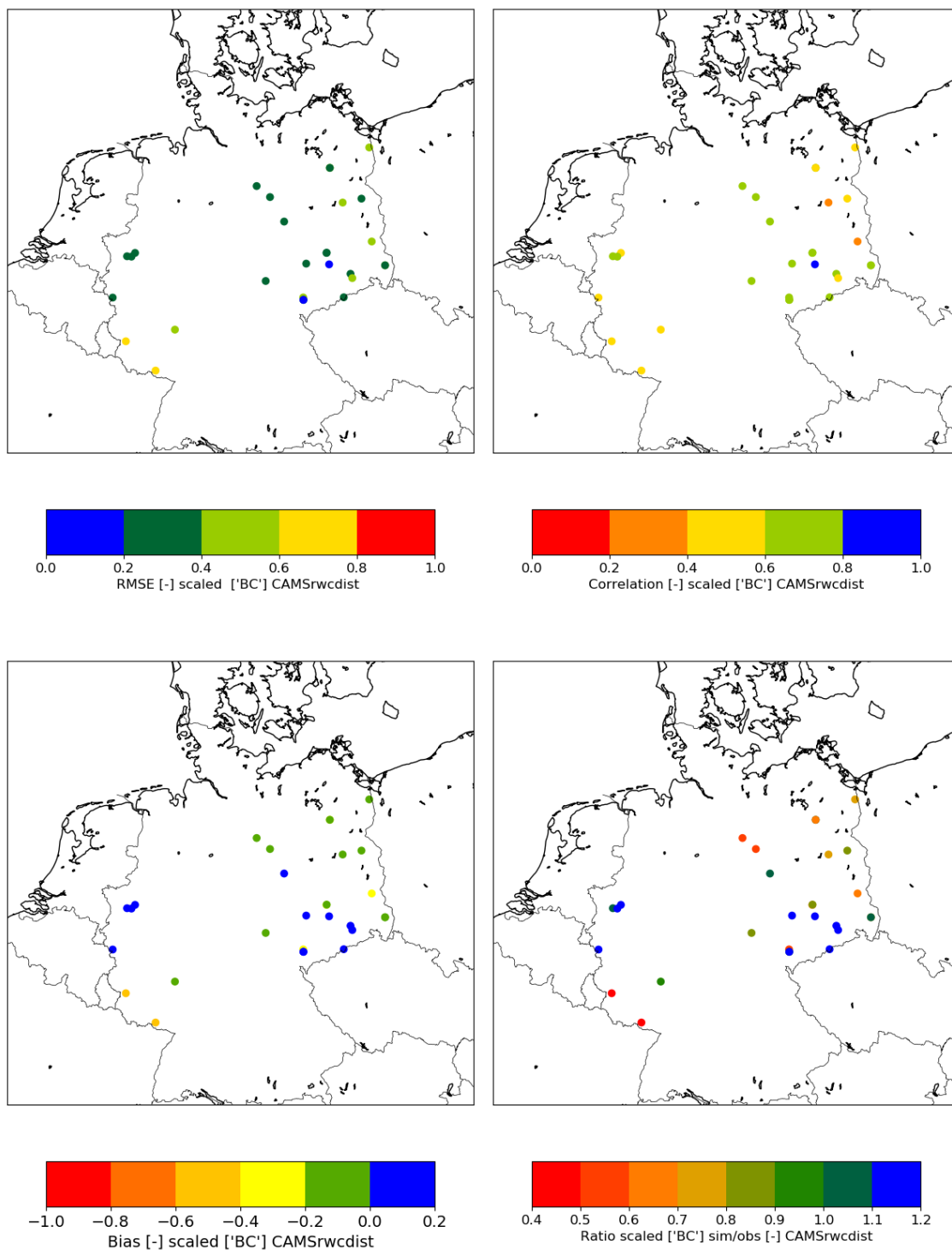
Quelle: TNO

Abbildung 68: Mittelwert RMSE und Bias für skalierte PM2.5 und PM10 stündliche Werte



Quelle: TNO

Abbildung 69: Statistische Parameter für skalierte Messungen: MAAP*0.8 und AE*0.5



Quelle: TNO

8.7 Gesamtanalyse der Szenarioläufe pro Messstation

Um die Auswirkungen der Szenarien in verschiedenen Regionen besser zu verstehen und um saisonale Effekte zu sehen, werden einige Stationen genauer untersucht. Die Gesamtanalyse der Szenarien ist komplex, da verschiedene Sektoren ihren größten Beitrag zu verschiedenen Zeiten des Jahres leisten. Zum Beispiel führt die Umverteilung des landwirtschaftlichen Verkehrs im Winter zu höheren Jahresmittelkonzentrationen in Ostdeutschland, aber wenn die verbesserten Emissionszeitprofile für diesen Sektor berücksichtigt werden, verlagern sich die Emissionen in den Sommer, wenn mehr vertikale Verdünnung stattfindet, so dass die Jahresmittelkonzentrationen abnehmen. Die Korrelation kann abnehmen, weil ursprünglich der überschätzte Beitrag des landwirtschaftlichen Verkehrs im Winter den unterschätzten Beitrag von Hausbrand teilweise kompensiert hat. Hier werden die Ergebnisse für drei Stationen mit der höchsten Datenqualität in verschiedenen Regionen vorgestellt. Tabellen mit Statistiken für alle im Jahr 2017 verfügbaren Stationen finden Sie in Anhang B. Szenario 2 wird hier nicht explizit gezeigt, aber zusammen mit Szenario 3 betrachtet. Der Vorteil der Betrachtung einzelner Stationen ist auch, dass die Auswirkungen von Unsicherheiten in den MAC-Werten dann eine andere Rolle spielen.

8.7.1 Melpitz

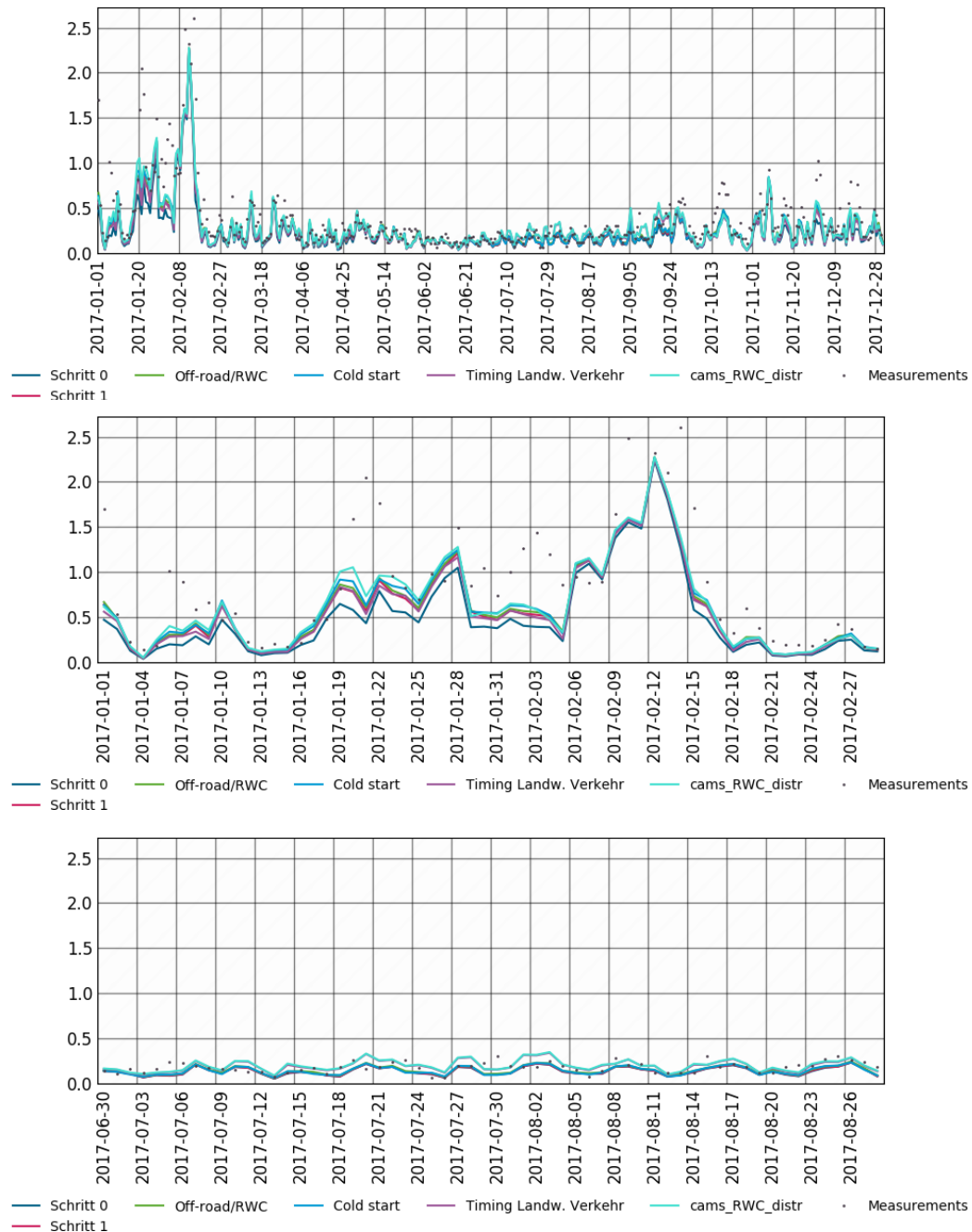
Abbildung 70 bis Abbildung 72 zeigen die Ergebnisse der Läufe für Melpitz. Für Melpitz wird EC direkt mit der EUSAAR-Referenzmethode anstelle von BC gemessen, so dass die Unsicherheit in MAC keine Rolle spielt.

Die Konzentrationen steigen in der ersten Winterepisode mit Schritt 1 und Szenario 5 an, aber nicht für die zweite Winterepisode. Für die zweite Episode zeigt die Label-Analyse (Abbildung 43), dass die Beiträge aus Polen dominieren, so dass die Anpassungen für Deutschland nur einen begrenzten Effekt haben.

- ▶ Szenario 1 führt zu höheren Jahresmittelwerten, was auf einen größeren Beitrag des landwirtschaftlichen Verkehrs zurückzuführen ist.
- ▶ Die Szenarien 2 und 3 haben an dieser Station nur geringe Auswirkungen.
- ▶ In Szenario 4 nehmen die Konzentrationen im Winter ab und im Sommer zu, was auf eine Verschiebung des Beitrags des landwirtschaftlichen Verkehrs zurückzuführen ist.
- ▶ Anstieg der Konzentrationen im Winter mit Szenario 5
- ▶ Die Jahresmittelkonzentrationen werden in den Szenariosimulationen weniger unterschätzt, wobei die größte Änderung von Schritt 0 zu Schritt 1 und die geringste Unterschätzung in Szenario 5 zu verzeichnen ist.
- ▶ Beste Korrelation mit Szenario 1 und 3, geringster Bias mit Szenario 5, geringster RMSE mit Szenario 5.

- Episode 15-16 Oktober nicht vom Modell dargestellt, Episode Ende September unterschätzt vom Modell.
- Dezember-Episode unterschätzt vom Modell.

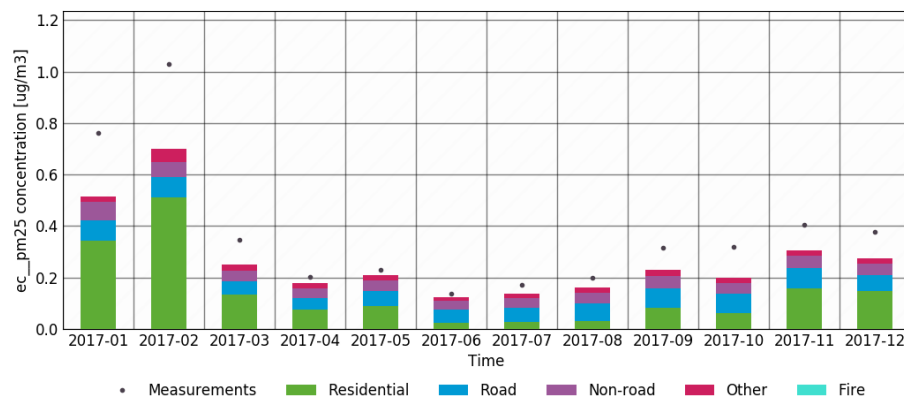
Abbildung 70: Melpitz, Tagesmittelwerte für Messungen und Modell für Melpitz. Ganzes Jahr(oben), Wintermonate (Mitte) und Sommermonate (unten)



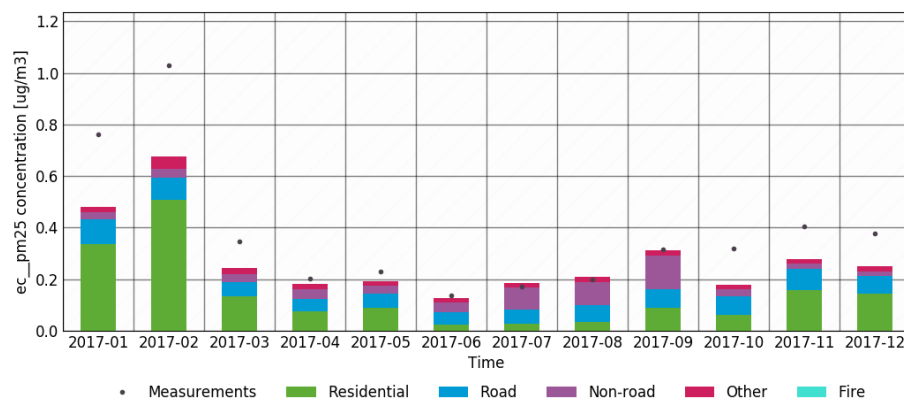
Quelle: TNO

Abbildung 71: Melpitz, Monatsmittelwerte der Sektorbeiträge für Szenarioläufe, Szenario 1 (Oben), Szenario 4 (Mitte) und Szenario 5 (Unten)

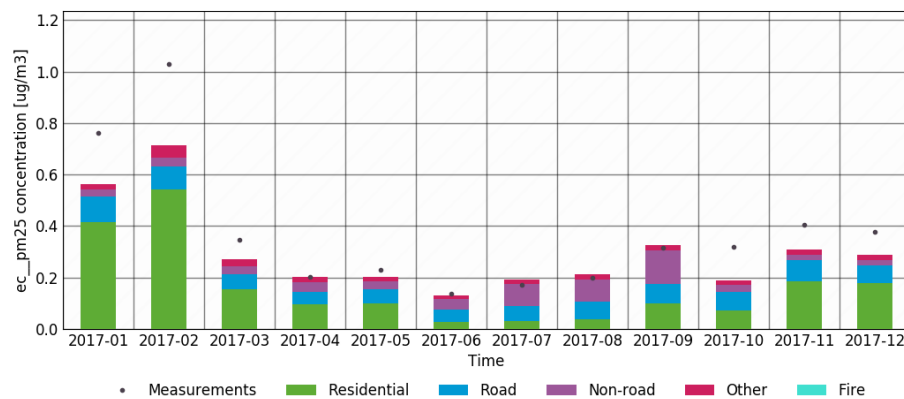
Melpitz; run: UBA-BC-offr-adj; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



Melpitz; run: UBA-BC-agritime; tracer: ec_pm25 [ug/m3]

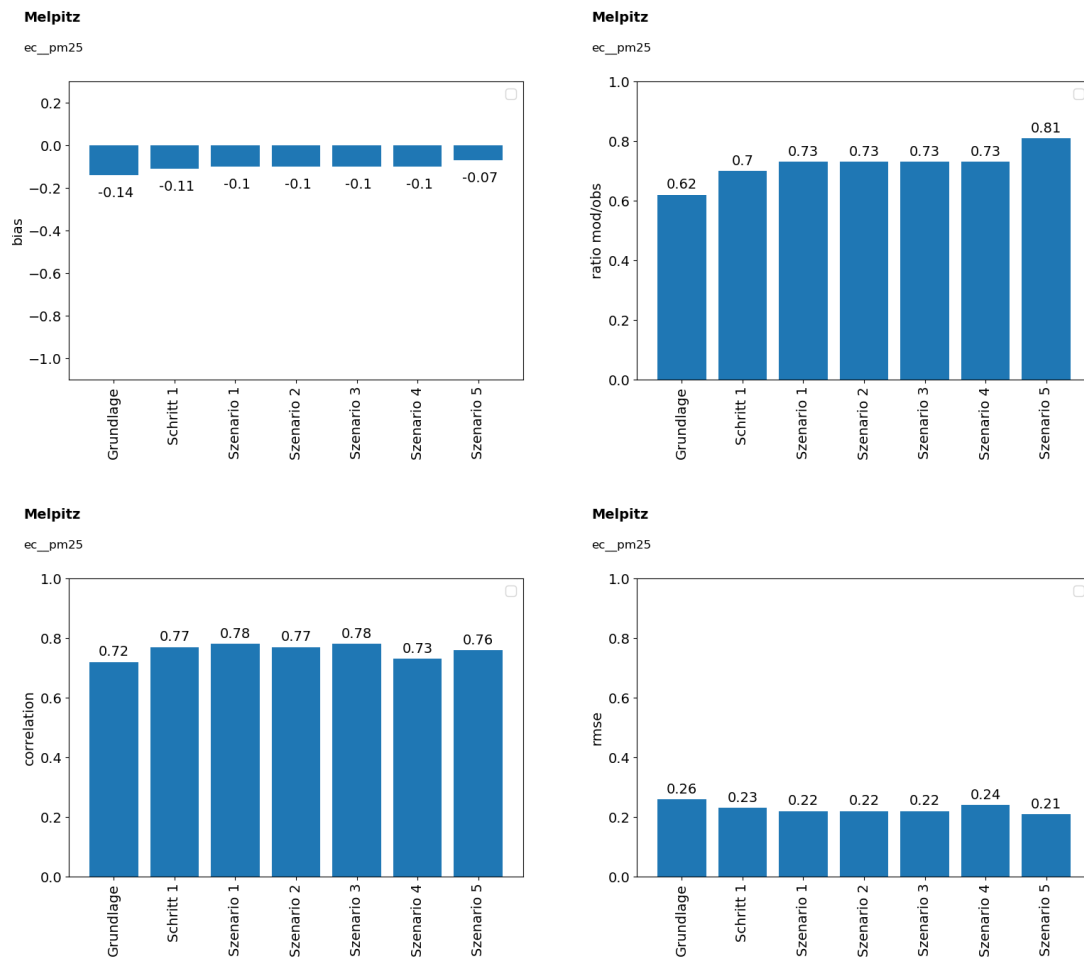


Melpitz; run: UBA-BC-CAMSRwcdist; tracer: ec_pm25 [ug/m3]



Quelle: TNO

Abbildung 72: Melpitz, Statistische Analyse der Szenarioläufe



Quelle: TNO

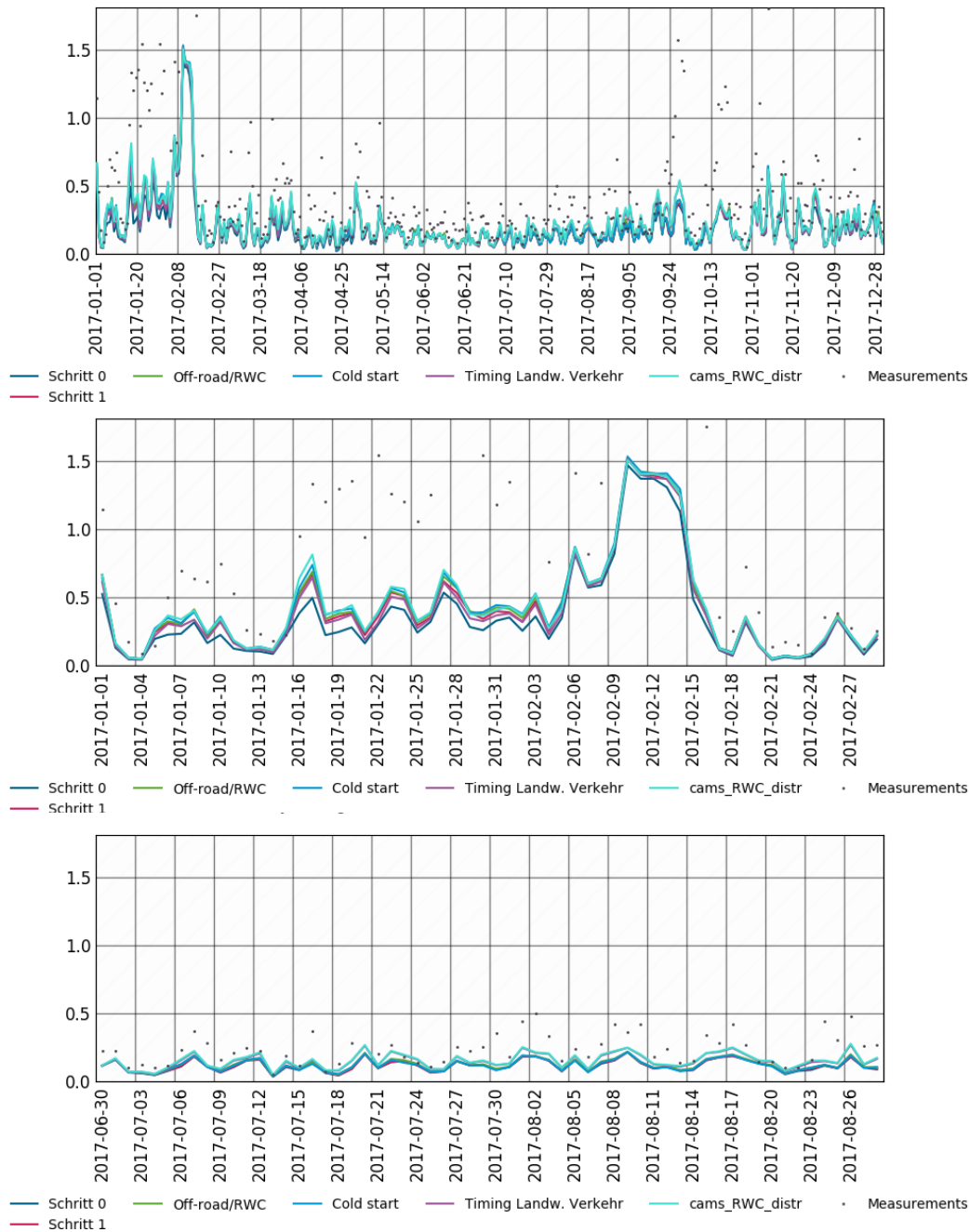
8.7.2 Waldhof

Abbildung 73 bis Abbildung 75 zeigen die Ergebnisse der Läufe für Waldhof.

Waldhof ist die Station mit einer der niedrigsten beobachteten Konzentrationen und niedrigen modellierten Konzentrationen, aber immer noch relativ starken absoluten und relativen Modellunterschätzungen in allen Jahreszeiten. Dies kann teilweise durch die Verwendung eines Standard-MAC-Wertes (MAAP-Instrument für PM_{2,5}), aber auch durch eine Unterschätzung der (lokalen) Emissionen verursacht werden. Die Korrelation ist ähnlich wie die von Melpitz, aber RMSE und Bias sind viel höher, was auf den ersteren Effekt hinweisen könnte.

- ▶ Größte Reduzierung des Biases für Schritt 1, geringe Reduzierung der Bias in den nachfolgenden Szenarien.
- ▶ Geringer Anstieg der Konzentrationen im Sommer durch die Szenarien 1 und 4. Geringerer Bias im Sommer, aber größerer Bias im Winter.
- ▶ Die Korrelation steigt für Schritt 1 und die Szenarien 1, 2 und 3, sinkt aber für die Szenarien 4 und 5, wahrscheinlich aufgrund von Kompensationsfehlern
- ▶ Abnehmender RMSE für aufeinanderfolgende Szenarien.
- ▶ Episoden Ende September, Mitte Oktober-Anfang November werden vom Modell nicht dargestellt. Unterschätzung stärker als bei Melpitz für diese Episoden.

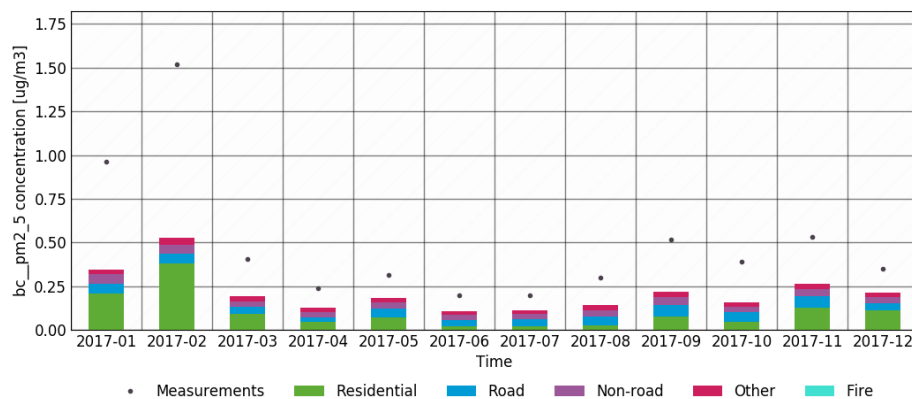
Abbildung 73: Waldhof, Tagesmittelwerte für Messungen und Modell für Melpitz. Ganzes Jahr (oben), Wintermonate (Mitte) und Sommermonate (unten)



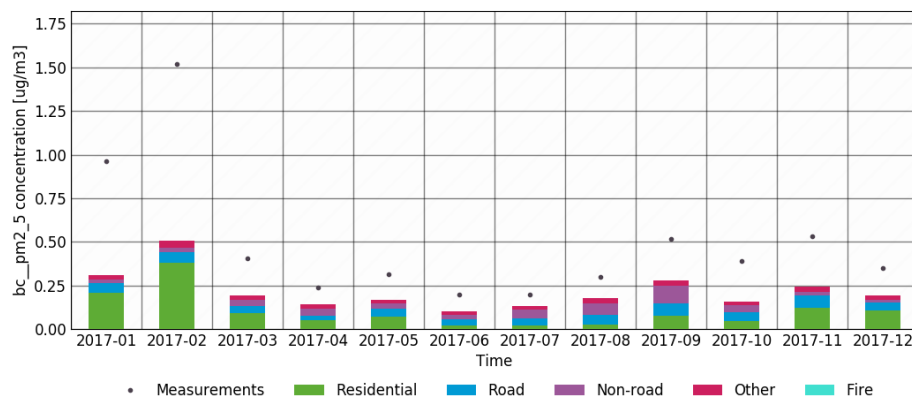
Quelle: TNO

Abbildung 74: Waldhof, Monatsmittelwerte der Sektorbeiträge für Szenarioläufe, Szenario 1 (Oben) Szenario 4 (Mitte) und Szenario 5 (Unten)

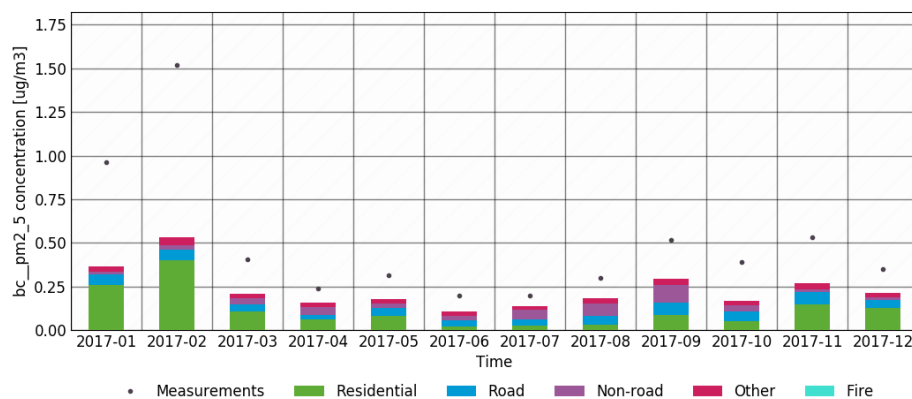
Waldhof; run: UBA-BC-offr-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Waldhof; run: UBA-BC-agritime; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]

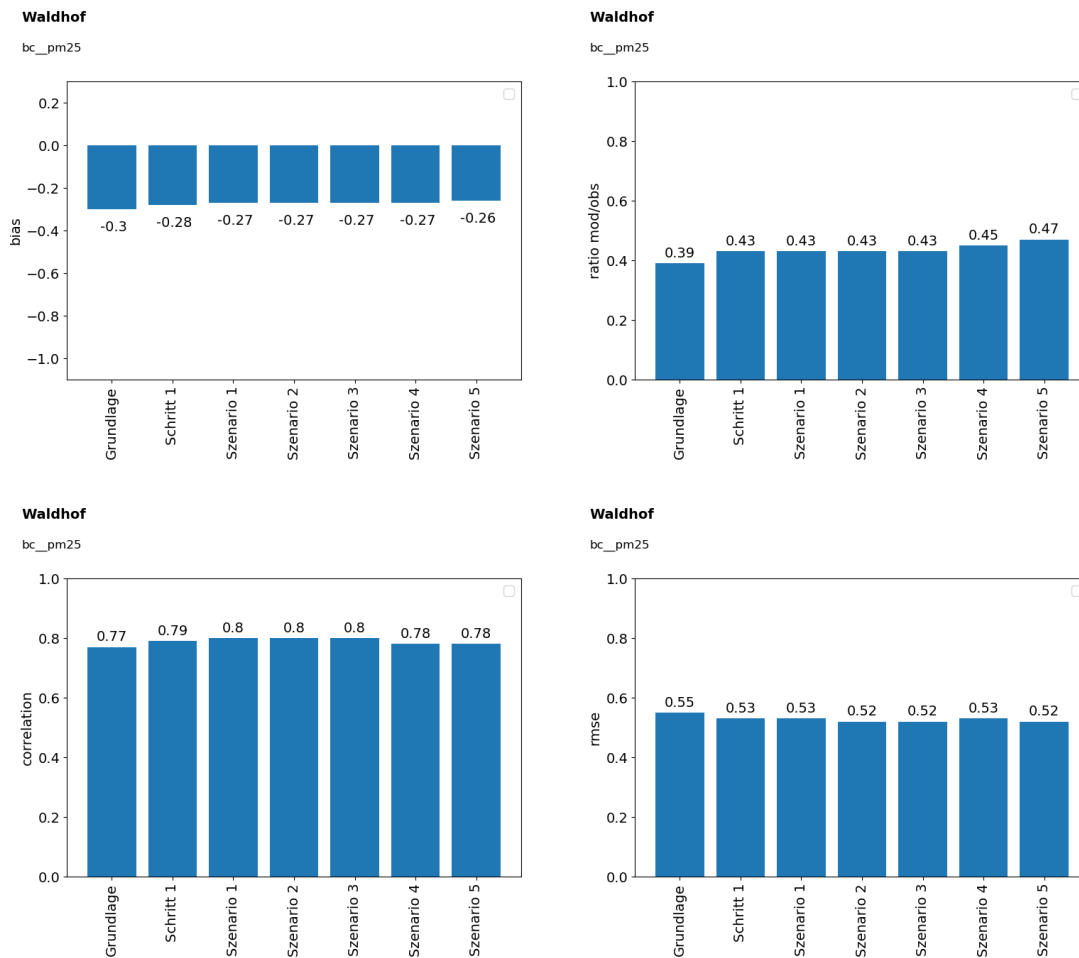


Waldhof; run: UBA-BC-CAMSRwcdist; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Quelle: TNO

Abbildung 75: Waldhof, statistische Analyse der Szenarioläufe



Quelle: TNO

8.7.3 Mainz Mombach

Abbildung 76 bis Abbildung 78 zeigen die Ergebnisse der Läufe für Mainz.

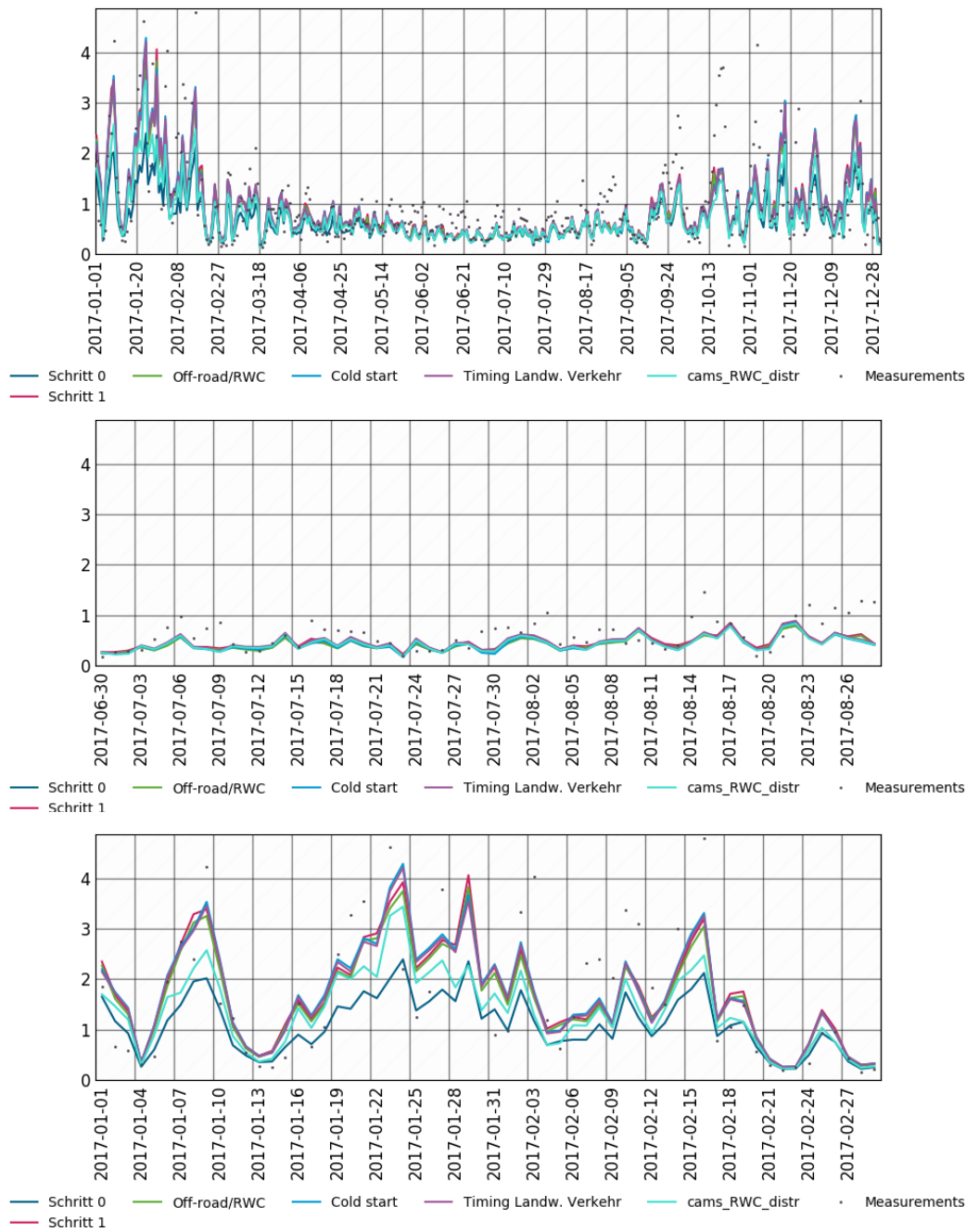
An dieser städtischen Hintergrundstation sind die modellierten und gemessenen BC-Werte höher als bei Melpitz und Waldhof. In diesem Gebiet sind sowohl Verkehrsemissionen als auch Holzverbrennung wichtige Quellen. Für diese Station wurde BC in PM_{2,5} mit einem MAAP-Gerät gemessen. Modellunterschätzungen können mit Messunsicherheiten zusammenhängen, aber auch die relativ geringe Modellauflösung in einem Gebiet mit stärkeren Quellen kann dazu beitragen.

Der Effekt von Schritt 1 wird in den Winterperioden deutlich. Die beobachteten hohen Werte werden nun vom Modell erreicht, während die niedrigeren Werte im Winter überschätzt werden. Schritt 1 führt zu einer besseren Darstellung der Winterperioden. Für den Sommer sind die Ergebnisse aller Simulationen nahezu identisch.

- Szenario 1 führt zu geringeren Emissionen aus dem landwirtschaftlichen Verkehr in dieser Region, wodurch die Konzentrationen sinken und der Bias steigt.

- ▶ Die Szenarien 2 und 3 erhöhen den Beitrag des Verkehrs, insbesondere in der kalten Periode, was zu einem geringeren Bias, aber auch zu einer etwas geringeren Korrelation führt.
- ▶ Szenario 4 hat nur geringe Auswirkungen auf dieser urbanen Station.
- ▶ Szenario 5 verlagert die Emissionen für diese Region in andere Teile des Landes, was zu einem stärkeren Bias, einer niedrigeren Korrelation und einem höheren RMSE führt. Der Bias ist immer noch geringer als bei Waldhof, trotz der viel höheren beobachteten Konzentrationen. Die auch für Waldhof beobachteten Episoden (Ende September-Mitte Oktober-Anfang November) werden nicht modelliert. Das Maximum in der November-Episode tritt ein paar Tage früher auf als bei Waldhof.

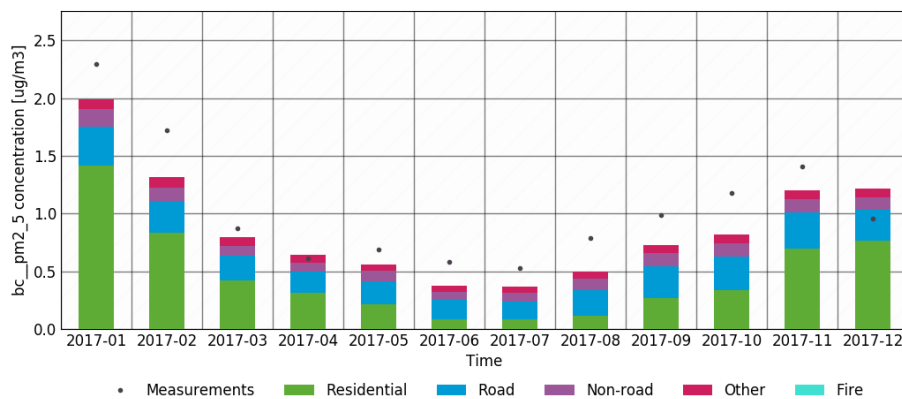
Abbildung 76: Mainz Mombach, Tagesmittelwerte für Messungen und Modell für Melpitz. Ganzes Jahr (oben), Wintermonate (Mitte) und Sommermonate (unten)



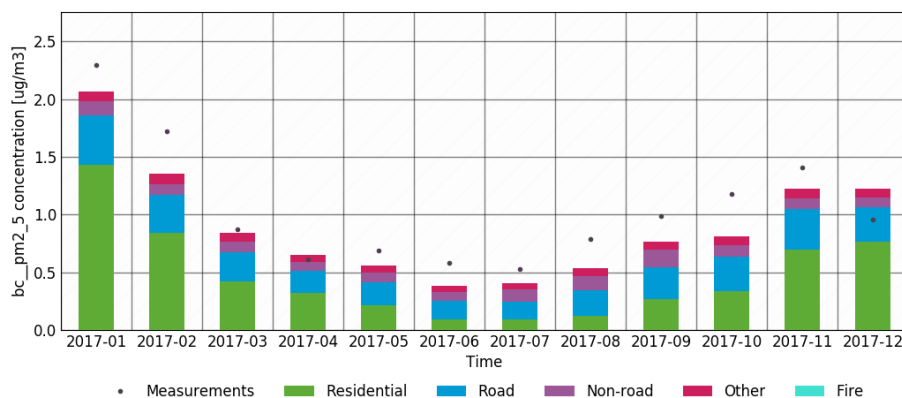
Quelle: TNO

Abbildung 77: Mainz Mombach, Monatsmittelwerte der Sektorbeiträge für Szenarioläufe in Melpitz, Szenario 1 (Oben) Szenario 4 (Mitte) und Szenario 5 (Unten)

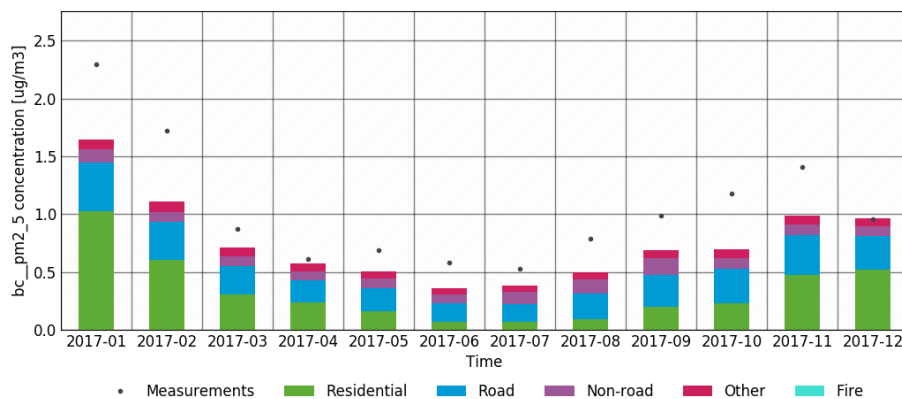
Mainz-Mombach; run: UBA-BC-offr-adj; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Mainz-Mombach; run: UBA-BC-agritime; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]

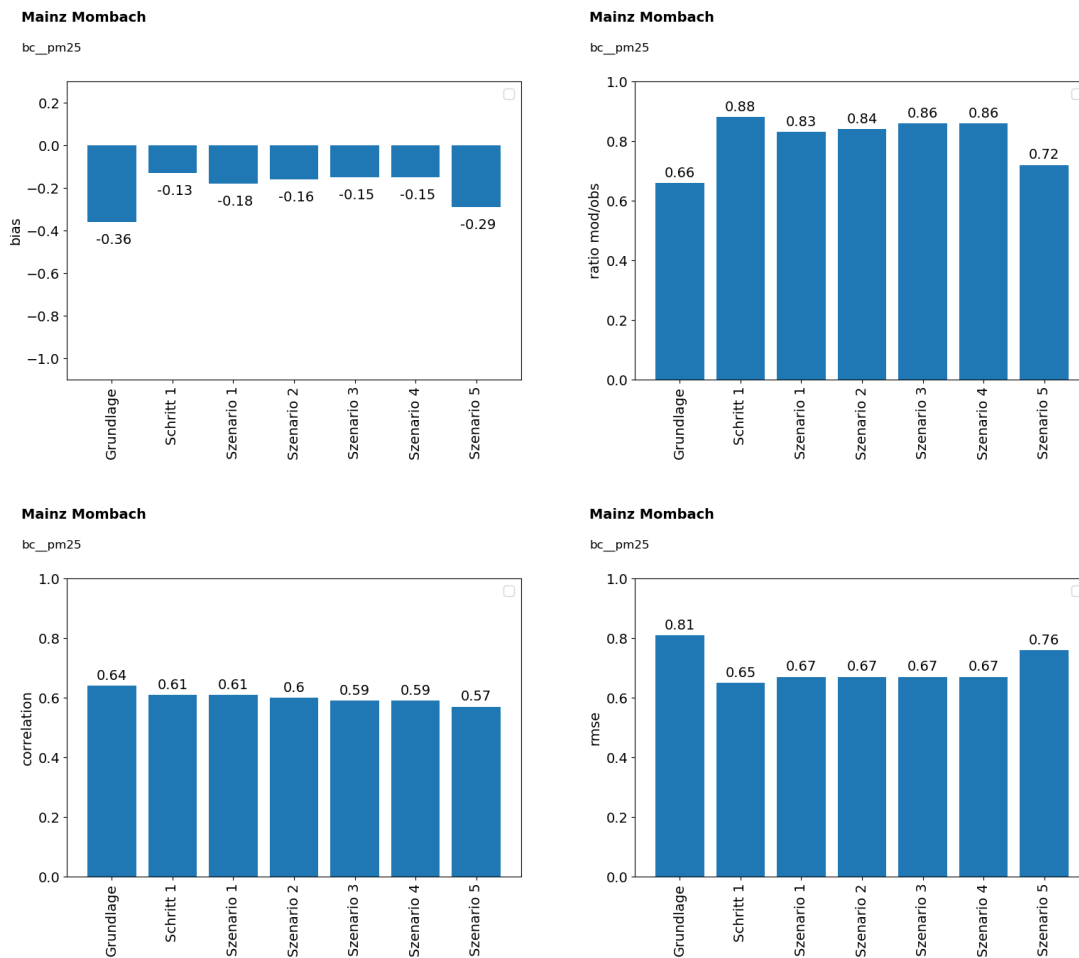


Mainz-Mombach; run: UBA-BC-CAMSRwcdist; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Quelle: TNO

Abbildung 78: Mainz Mombach, statistische Analyse der Szenarioläufe



Quelle: TNO

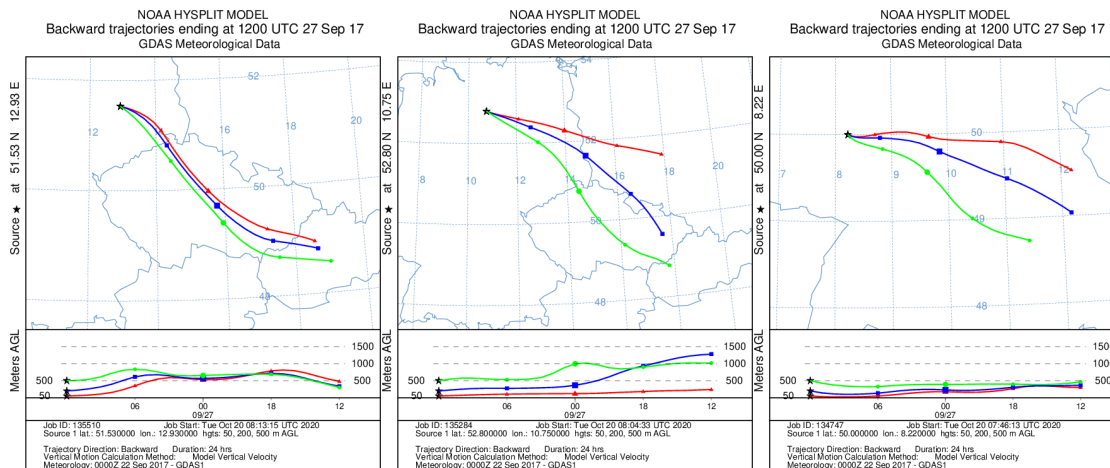
8.7.4 Herbstepisoden mit hohen BC Konzentrationen

Einige beobachtete Perioden im Herbst wurden in den Modellsimulationen schlecht dargestellt. Für die drei Stationen und drei Zeiträume wurde eine sogenannte Backtrajectory-Analyse mit NOAA HYSPLIT (Stein et al., 2015) durchgeführt, um den Ursprung dieser Luftverschmutzung besser zu verstehen. Die Trajektorien werden immer mit einer Starthöhe von 50 m, 200 m und 500 m und einer Startzeit von 12 UTC 24 Stunden zurück in der Zeit verfolgt.

Die Episode von Ende September (Abbildung 79) ist die erste Herbstepisode und ist durch eine südöstliche Strömung gekennzeichnet. Zu dieser Jahreszeit ist es möglich, dass die BC-Werte durch das offene Verbrennen von landwirtschaftlichen Rückständen nach der Ernte beeinflusst werden. Die europäische Situation ist in Amann et al. (2017) zusammengefasst. Offiziell hat die EU-Gesetzgebung diese Praxis verboten, aber in der Realität ist die Verbrennung der Rückstände in einigen europäischen Gebieten immer noch üblich. Insbesondere in Tschechien belaufen sich die GAINS-Schätzungen für die Verbrennung von landwirtschaftlichen Abfällen auf 11 % der gesamten PM_{2,5}-Emissionen (Null im nationalen Bericht). Selbst in den Niederlanden und Deutschland kann eine lokale Verbrennung von landwirtschaftlichen Abfällen nicht ausgeschlossen werden, obwohl der Beitrag gering ist. Bei dieser Emissionsquelle finden die Emissionen über einen relativ kurzen Zeitraum statt, so dass sie als saisonale Ereignisse

auftreten, die schwer zu modellieren sind und oft nicht Teil der offiziell gemeldeten Gesamtemissionen des Landes sind.

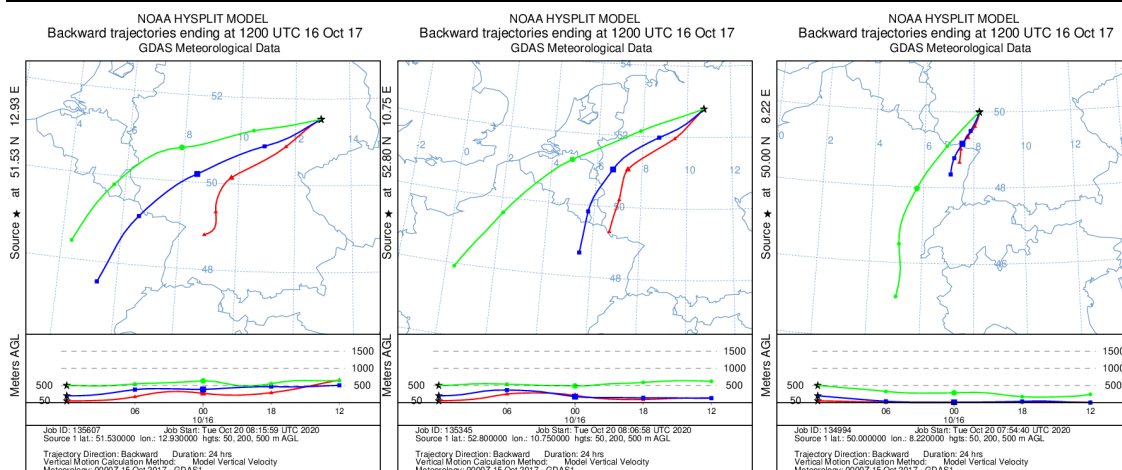
Abbildung 79: NOAA Hysplit 24 Stunden Backtrajectories für 27 September Melpitz, Waldhof und Mainz



Quelle: TNO/ <https://www.ready.noaa.gov/hypub-bin/trajtype.pl?runtype=archive>

Die Episode um den 15. und 17. Oktober (Abbildung 80) ist eine besondere Episode mit Beiträgen von Waldbränden in Portugal mit stark erhöhten PM10-Konzentrationen über Nordwesteuropa. Obwohl LOTOS-EUROS die PM10-Summe in diesem Zeitraum im CAMS-Ensemble realistisch modelliert hat, könnte der Beitrag von BC unterschätzt worden sein. Für alle drei Stationen zeigt die südwestliche Strömung den Ursprung der Luftmasse aus dem Südosten an, was mit dieser Annahme übereinstimmt. Auch der Beitrag von "Wildbrand" zur Kennzeichnung ist in diesem Zeitraum größer als zu anderen Zeiten des Jahres, aber der Nettobeitrag ist immer noch gering. Aufgrund der südwestlichen Strömung war der Zeitraum relativ warm, so dass der Beitrag von Hausbrand wahrscheinlich nicht signifikant ist.

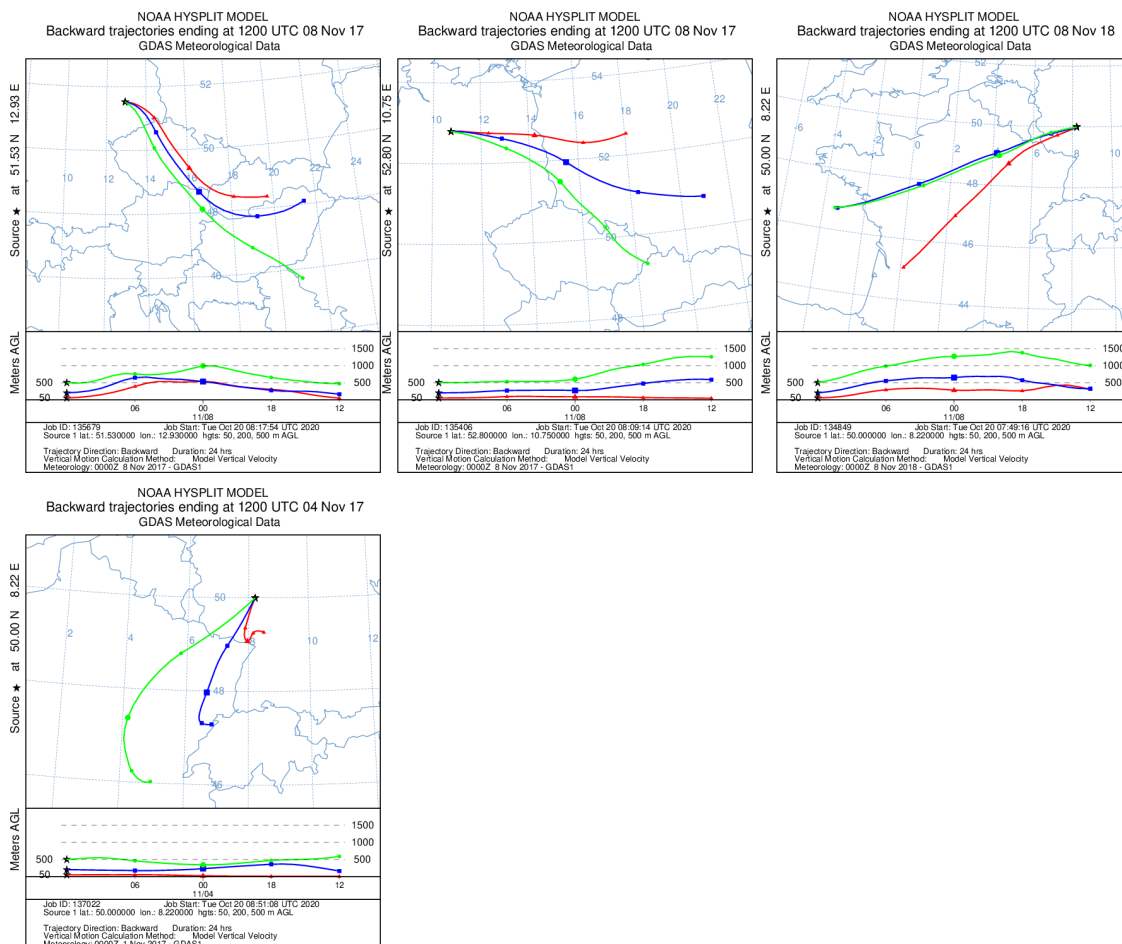
Abbildung 80: NOAA Hysplit 24 Stunden Backtrajectories für 16 Oktober, Melpitz, Waldhof und Mainz



Quelle: TNO/ <https://www.ready.noaa.gov/hypub-bin/trajtype.pl?runtype=archive>

Für die Episoden Anfang November (Abbildung 81) zeigen die Trajektorien, dass die Station Mainz von Luft aus Südwesten beeinflusst wird, wobei am 4. November eher stagnierende Bedingungen herrschen, die höheren Konzentrationen entsprechen. Es ist wahrscheinlich, dass für diesen relativ kurzen Zeitraum stagnierende Bedingungen nicht vollständig in der Eingangsmeteorologie und/oder dem LOTOS-EUROS-Modell wiedergegeben werden, was zu einer Unterschätzung führt. Melpitz und Waldhof werden in dieser Zeit von Luft aus Südosten beeinflusst. Das Verbrennen von landwirtschaftlichen Abfällen oder Laub kann zu dieser Episode beitragen.

Abbildung 81: NOAA Hysplit 24 Stunden Backtrajectories für 8 November, Melpitz, Waldhof und Mainz, und für 4 September (nur Mainz)



Quelle: TNO/ <https://www.ready.noaa.gov/hypub-bin/trajtype.pl?runtime=archive>

8.8 Schlussfolgerungen für GRETA und Endergebnis

Die Szenarioläufe zeigen, dass neue Emissionsfaktoren zu modellierten Konzentrationen führen, die besser mit den Messungen übereinstimmen.

- Die Anpassung des BC-Faktors für Reifen- und Bremsenabrieb ist groß, aber diese Emissionskategorie leistet einen relativ kleinen Beitrag zum Gesamt-BC.

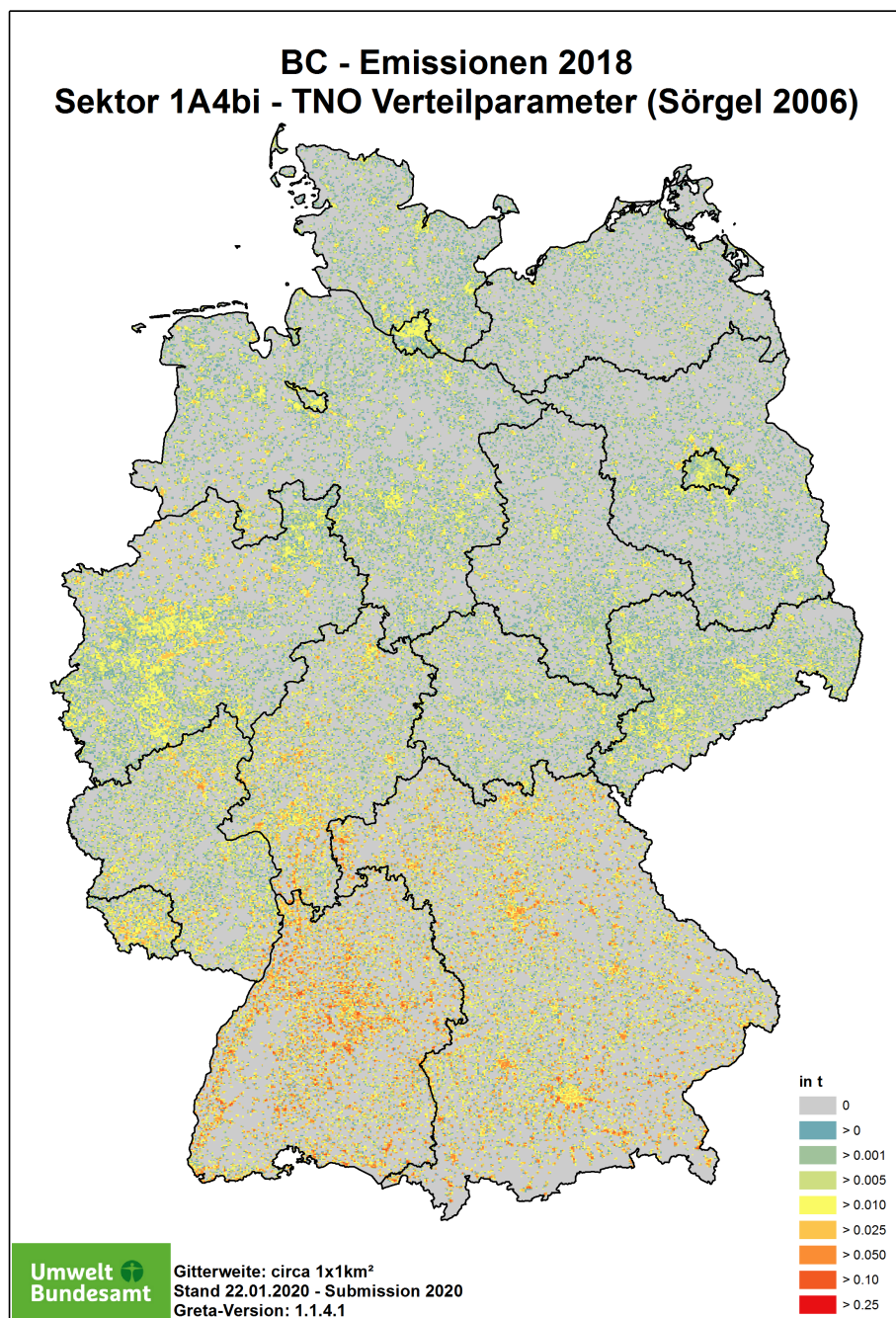
- ▶ Insbesondere die höheren BC-Emissionsfaktoren für den Hausbrandsektor führen zu einer besseren Übereinstimmung mit den Messungen.
- ▶ Die modifizierte räumliche Verteilung für den landwirtschaftlichen Verkehr ist konzeptionell realistischer und liefert eine bessere Übereinstimmung mit den Messungen.
- ▶ Die neuen Zeitprofile tragen auch zu einer besseren Modellierung der Konzentrationen bei.

Für die Verteilung der Hausbrandemissionen wurde ein letzter Schritt vereinbart. Wichtige Gründe dafür sind die tatsächlich beobachteten regionalen Unterschiede im Holzverbrauch (Mantau und Sörgel, 2006) und die Erhöhung des Bias für Mainz in Szenario 5, bei dem diese regionalen Unterschiede nicht berücksichtigt wurden. Andererseits führte die ursprüngliche Verteilung zu übermäßig hohen Emissionen in Berlin, da für dieses Gebiet ein sehr großer Waldfaktor angenommen wurde, der zwar für das Berliner Umland, nicht aber für die Stadt selbst, realistisch ist.

Die Hausbrandemissionen werden zunächst auf die Gruppen der Bundesländer nach Mantau und Sörgel (2006) aufgeteilt. Innerhalb dieser Bereiche wird dann der CAMS-Ansatz zur Gewichtung verwendet (Waldfläche und Einwohneranzahl pro $0.1 \times 0.05^\circ$ lon x lat Gitterzelle). Um einen hochauflösenden Datensatz zu erhalten, werden die Emissionen dann pro Kreis summiert und weiter in die CLC-Klassen unterteilt, die bebaute Gebiete darstellen. Die CLC-Gewichtung wird modifiziert, um den Effekt der Bevölkerungsdichte und die damit verbundene Wahrscheinlichkeit, dass ein Haushalt mit Holz heizt, zu berücksichtigen. Die Emissionen werden nun in CLC 111 (continuous urban fabric) und CLC 112 (non-urban fabric)

gleichgewichtet. Die CLC-Klasse 121 (industrial and commercial units) erhält keine Emissionen aus dem Hausbrandsektor mehr.

Abbildung 82: Verteilung von BC der Hausbrandsektor (1A4bi), Endergebnis



Quelle: UBA

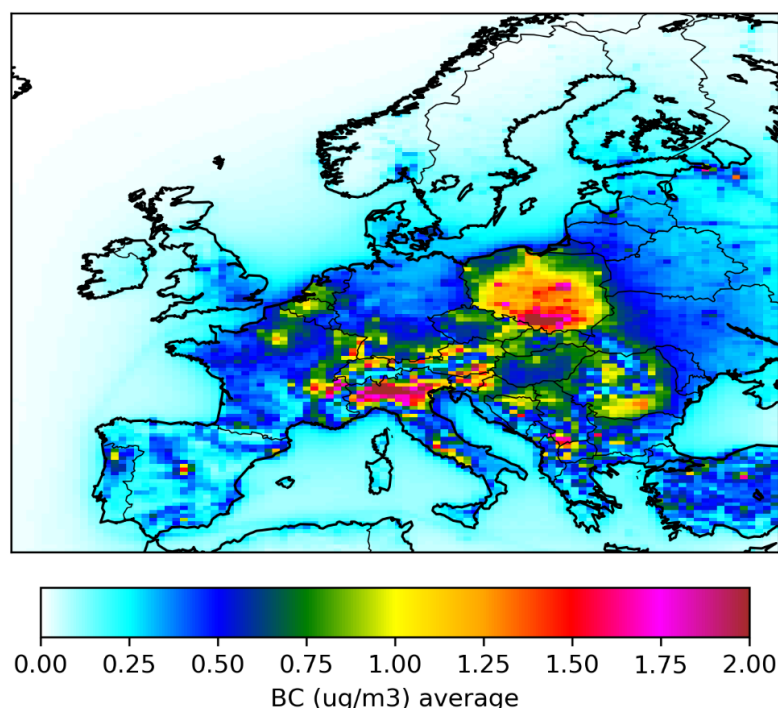
9 Endergebnis regionale Modellierung mit optimierten Emissionen

In diesem Abschnitt werden die Läufe mit den optimierten Emissionen auf der regionalen Skala ausgewertet und diskutiert.

9.1 Europaweit

Zunächst wird die Konzentration für ganz Europa als Referenz angegeben (Abbildung 83). Ein 5-Jahres-Mittelwert reduziert den Einfluss der interjährlichen Variabilität in der Meteorologie und liefert somit eine allgemeinere Darstellung als ein Jahresmittelwert. Besonders hoch sind die Konzentrationen in der Alpenregion, in der Po-Region, in Polen und in der Balkanregion, vor allem aufgrund von Hausbrand und Industrie. Im Westen sind die Beiträge des Verkehrs, wie in den Niederlanden und Belgien, in Paris und anderen Großstädten, sichtbar.

Abbildung 83: Mittelwert BC Konzentration 2015-2019, europaweit



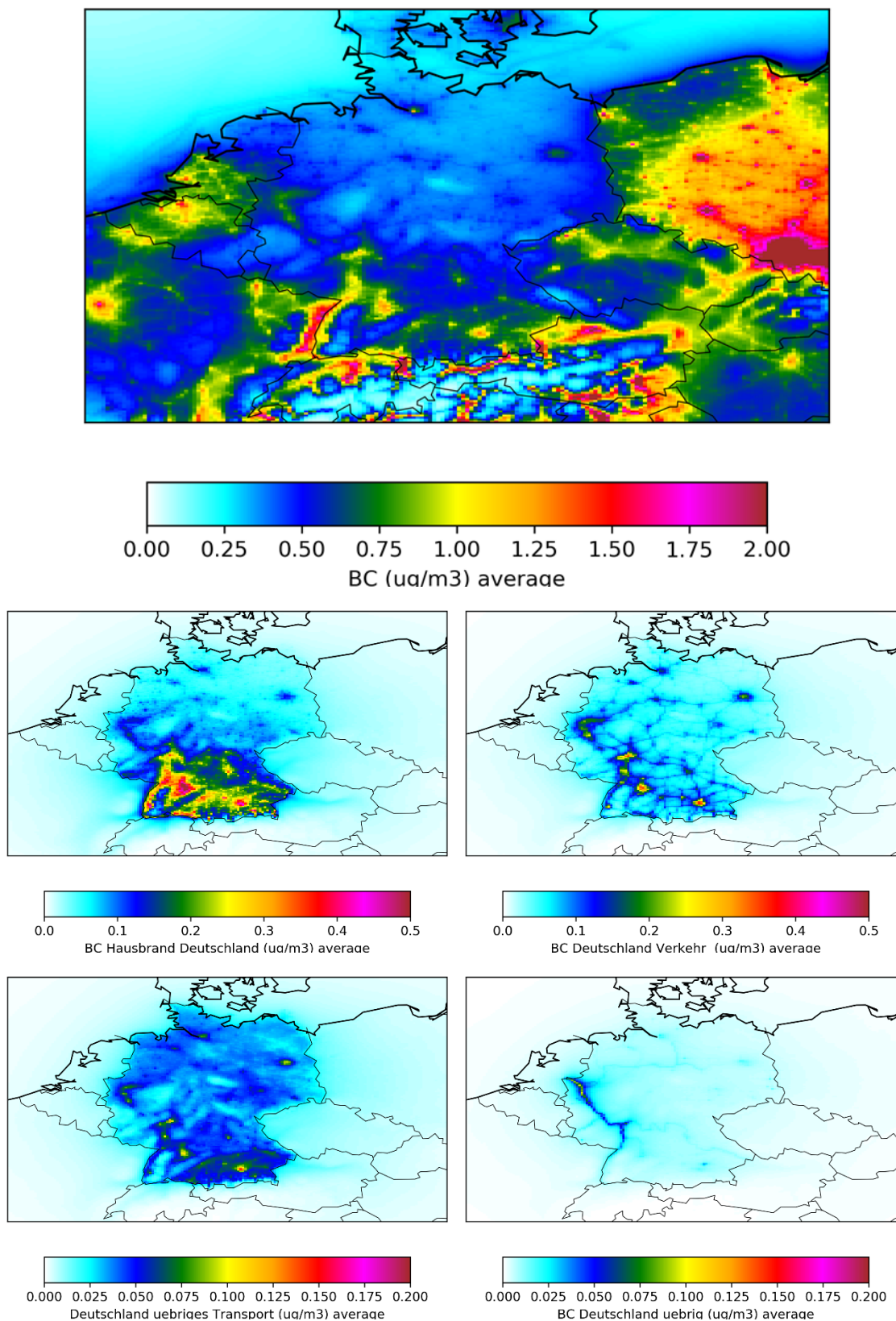
Quelle: TNO

9.2 Deutschland und Umgebung

Flächendeckende Immissionsbelastung

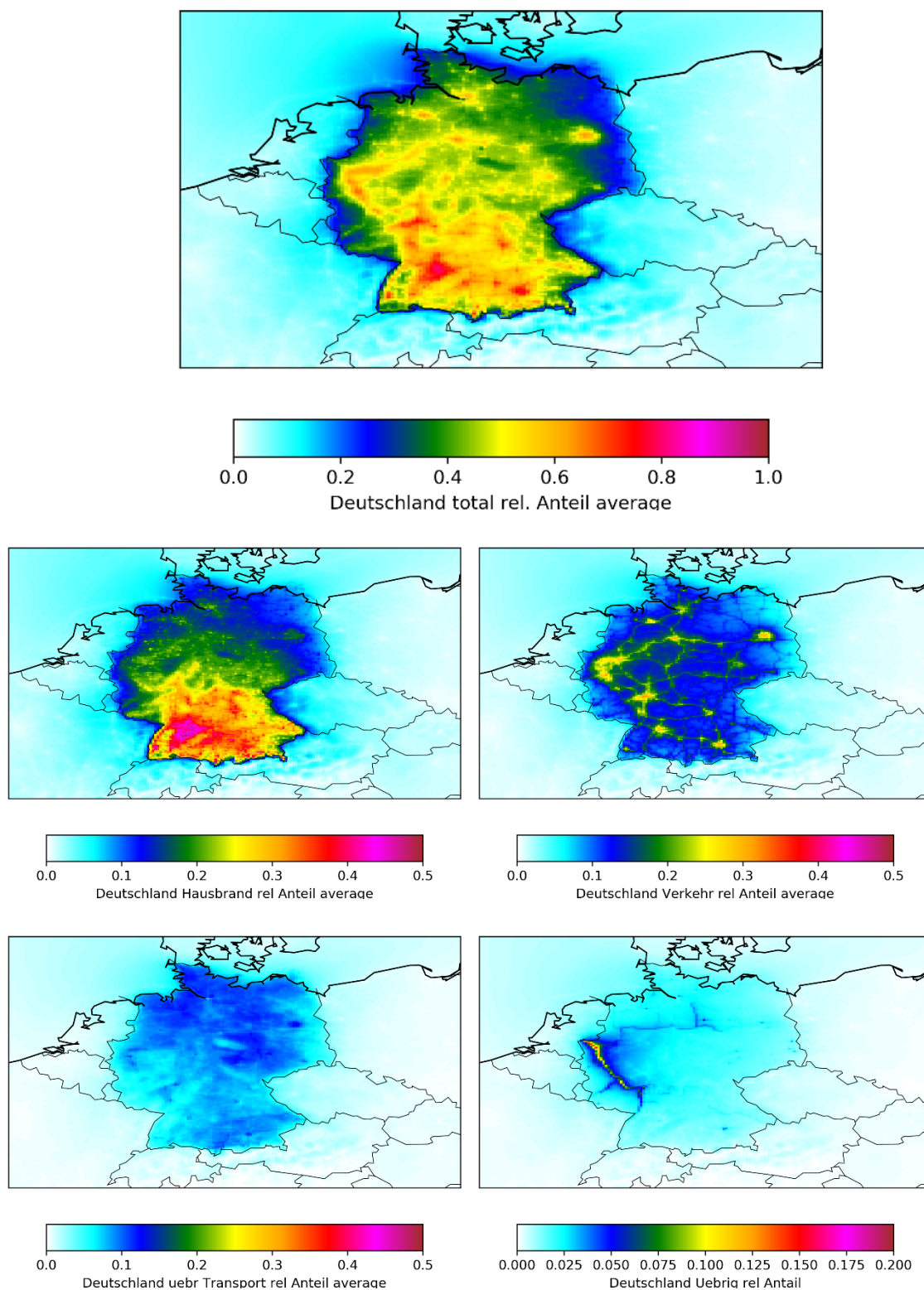
Eine der Hauptfragen ist, wie hoch die Immissionsbelastung von BC in Deutschland ist. Die Belastung in Deutschland und seiner unmittelbaren Umgebung ist in Abbildung 84 dargestellt, wobei neben den Gesamtkonzentrationen auch die Beiträge der wichtigsten Sektoren angegeben sind. Abbildung 85 zeigt die relativen Beiträge von Deutschland und den deutschen Sektoren. Die Jahresmittelkonzentrationen liegen bei 0,2-1,5 µg/m³ mit Maximalwerten im Main-Rhein-Gebiet und den südlichen Großstädten. Für die Hintergrundgebiete betragen die Werte zwischen 0,2 und 0,8 µg/m³.

Abbildung 84: Mittelwert der BC Konzentrationen von 2015-2019: Gesamt und Beiträge der wichtigsten Sektoren



Quelle: TNO

Abbildung 85: Relative Beiträge zu den BC Gesamtkonzentrationen, Deutschland und deutsche Emissionssektoren



Quelle: TNO

Die wichtigsten Quellbeiträge sind Verkehr und Hausbrand, wobei Hausbrand im Süden Deutschlands absolut und relativ gesehen wichtiger sind. Obwohl der nicht straßengebundene Verkehr („Off-road transport“) in absoluten Zahlen einen geringeren Beitrag leistet, kann er lokal bis zu 15 % beitragen. Auch die Schifffahrt, die hier als Sonstige klassifiziert wird, kann lokal einen wesentlichen Beitrag leisten. Dies ist in den Szenario-Läufen bereits berücksichtigt, wird hier aber als langjähriges Mittel und mit einer höheren Modellauflösung in der vertikalen Ebene separat dargestellt. Diese Grafik ist daher sowohl allgemeiner als auch genauer als die Grafik von 2017.

Die jährlichen Mittelwertkonzentrationen sind niedriger als in den Nachbarländern. Der Kontrast zu Polen ist groß. In Polen wird relativ viel mit Holz und Kohle geheizt, die Hausbrandanlagen sind relativ alt und daher sind höhere Emissionsfaktoren zu erwarten. Der große Unterschied in den BC-Emissionen zwischen Deutschland und Polen ist daher nicht unrealistisch. Starke Unterschiede gibt es auch in den Grenzgebieten zu Frankreich und der Schweiz. Es gibt Hinweise von dem Projekt EURODELTA_CAR³, dass die aktuellen Hausbrandemissionen für Frankreich und die Schweiz in CAMS81_RWC überschätzt werden. Höhere Konzentrationen finden sich auch für die Niederlande, was vor allem auf das dichte Autobahnnetz zurückzuführen ist. Das Ruhrgebiet sollte relativ vergleichbar sein, aber die modellierten BC-Konzentrationen sind etwas niedriger.

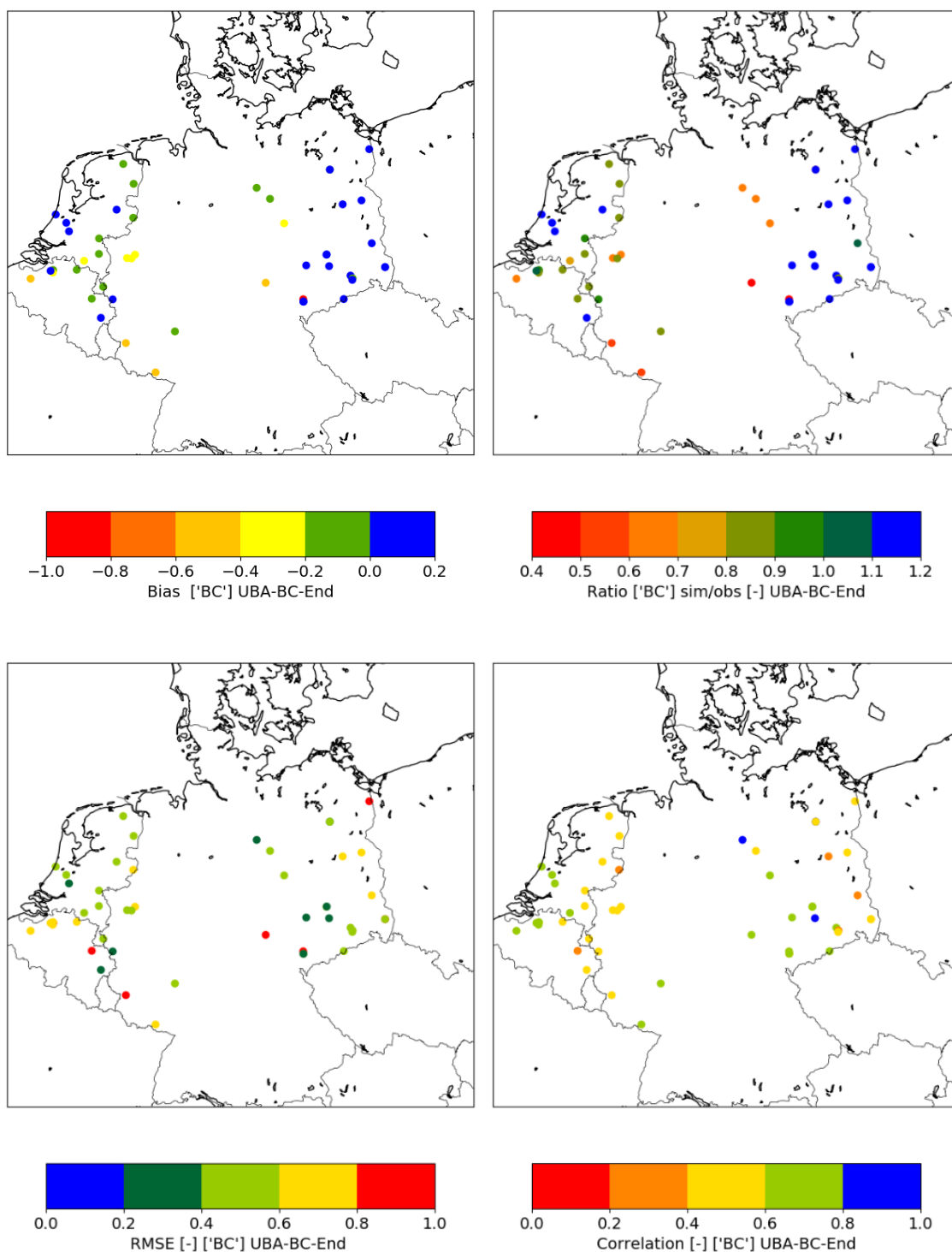
Auswertung und Zeitprofile

Der Vergleich mit den Messungen von 2017 ist in Abbildung 86 dargestellt und der Vergleich der Statistiken mit früheren Läufen in Abbildung 87 und den Tabellen in Anhang B. Das Endergebnis hat ein deutlich geringeres Bias und RMSE als die Grundlage, Schritt 1 und die einzelnen Szenarien. Hinsichtlich der Korrelation gibt es Messpunkte, bei denen das Endergebnis eine Verbesserung darstellt, aber auch Messpunkte, bei denen die Korrelation leicht gesunken ist. Es ist zu bedenken, dass das Endergebnis den Effekt der Emissionsfaktoren, den Effekt der Emissionsverteilung und den Effekt einer besseren Darstellung der Meteorologie durch die Verwendung von mehr Modellschichten beinhaltet. Der RMSE ist bei städtischen Stationen besonders hoch.

Zusätzlich zur Auswertung für 2017 wird auch eine Auswertung für 2018 vorgenommen. Für dieses Jahr sind weniger Messungen verfügbar als für 2017, aber viel mehr als für andere Jahre. Im Jahr 2018 gab es keine so starke Winterepisode wie im Jahr 2017. Der RMSE ist für 2018 bei den meisten Stationen etwas niedriger, aber die Korrelation und der Bias sind nicht überall besser. Für die Stationen in Ostdeutschland ist die Überschätzung im Modell im Jahr 2017 geringer, aber für die anderen Stationen gibt es keinen großen Unterschied zwischen den beiden Jahren.

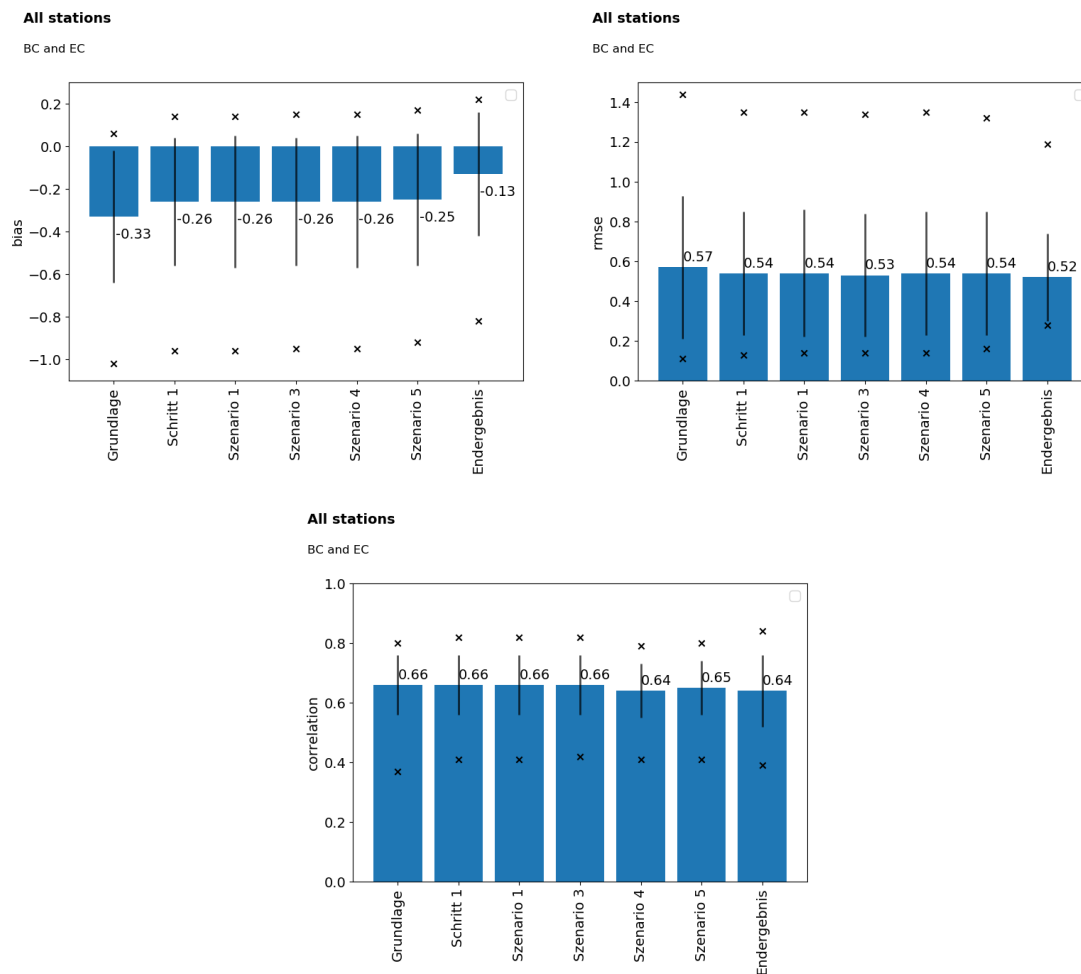
³ <https://wiki.met.no/emep/emep-experts/tfmmeurodeltacarb>

Abbildung 86: Auswertung des Endlaufs für 2017



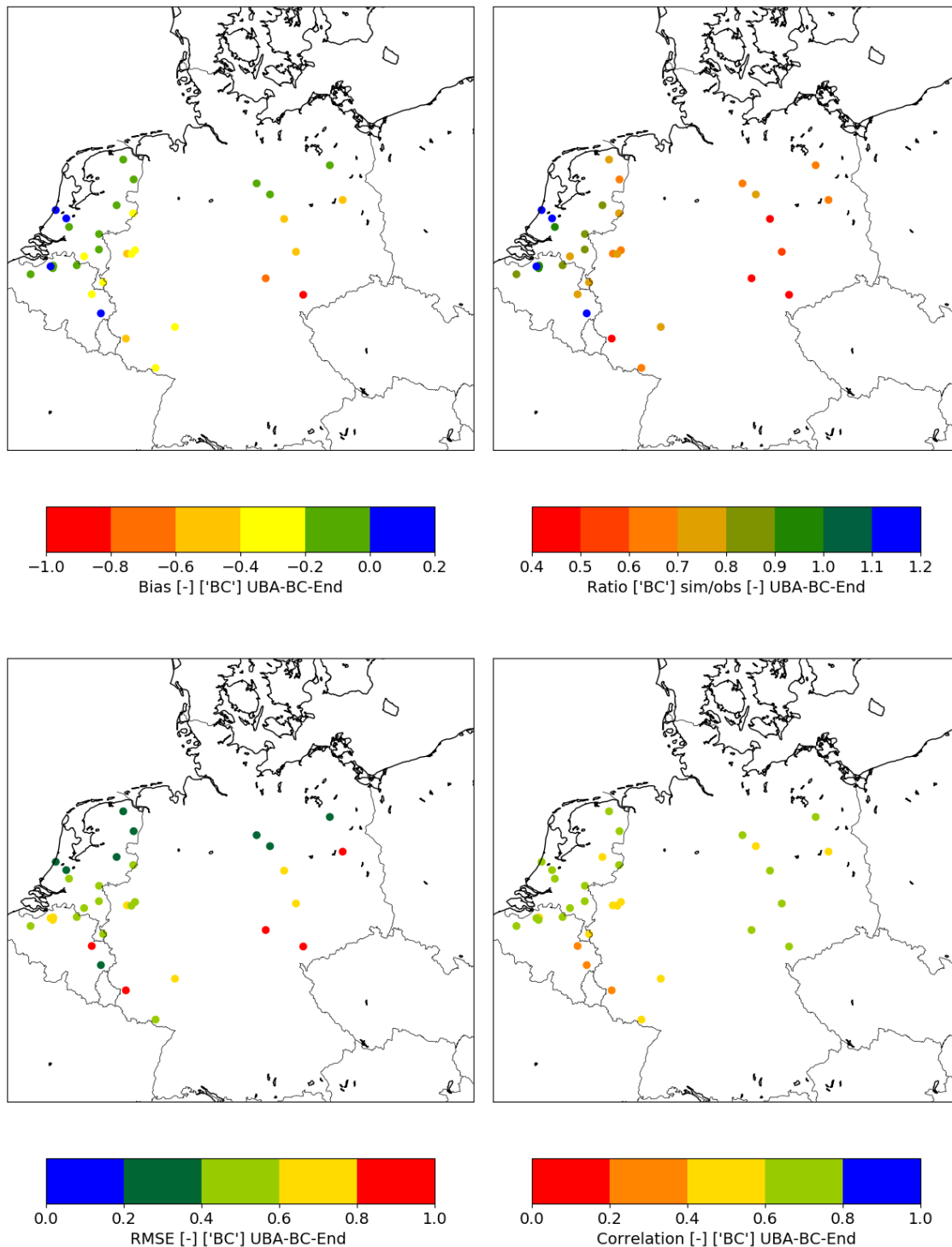
Quelle: TNO

Abbildung 87: Auswertung des Endlaufs für 2017. Mittelwerte der Statistik für alle Nicht-Straßenstationen. Standardabweichung als schwarze Linien, Minimum und Maximum sind mit Kreuz gekennzeichnet.



Quelle: TNO

Abbildung 88: Auswertung des Endlaufs für 2018



Quelle: TNO

Die Stationen Melpitz, Waldhof und Mainz sind in Abbildung 89 bis Abbildung 91 wieder als Zeitreihen dargestellt. In der Sensitivitätsstudie bezüglich BC von MAAP und harmonisierte eBC

haben wir gesehen, dass für Waldhof und Mainz die gemessenen Konzentrationen wahrscheinlich etwas zu hoch sind. Dies wurde hier nicht korrigiert.

Für Melpitz wird die Winterkonzentration noch überschätzt, die Sommerwerte werden vom Modell gut wiedergegeben. Im Wochenzyklus werden die Werte für Montag-Donnerstag am meisten überschätzt, und das Modell reproduziert das gemessene Maximum für Samstag nicht.

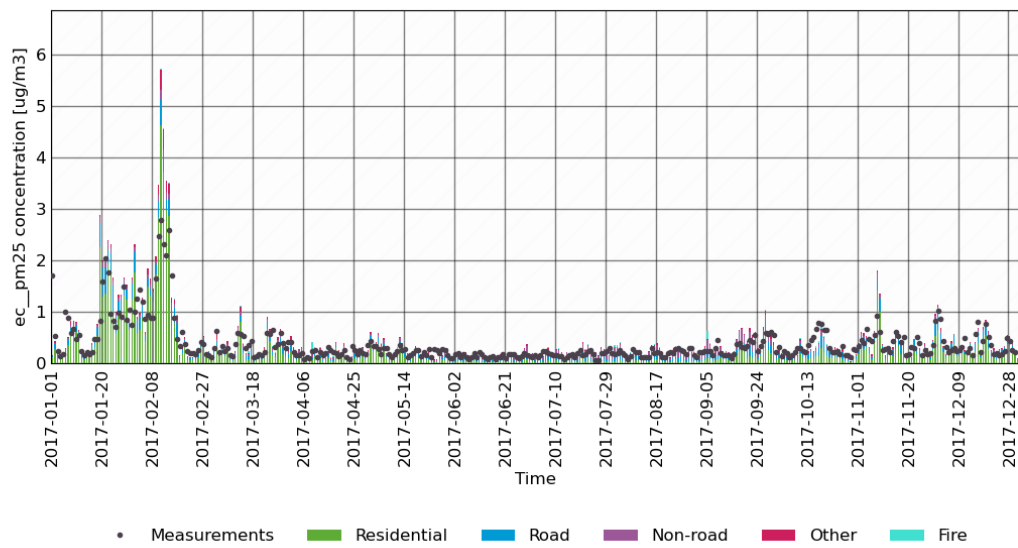
Für Waldhof werden die Werte immer unterschätzt. Der Jahreszyklus wird vom Modell qualitativ gut wiedergegeben, aber mit Bias. Die Unterschätzung ist stärker im Winter als im Sommer. Der Wochenzyklus zeigt eine kleinere Unterschätzung für Montag und Dienstag, für die anderen Tage ist die Unterschätzung relativ stabil, und der Wochenzyklus wird vom Modell qualitativ gut wiedergegeben. Auch der Tagesgang wird realistisch wiedergegeben, allerdings mit einer stärkeren Unterschätzung am Abend. Das kann auf eine Unterschätzung des abendlichen Beitrags der Hausbrandemissionen hinweisen, aber auch auf Schwierigkeiten bei der Modellierung der vertikalen Durchmischung (Aufreten Bildung einer stabilen Atmosphäre rund um den Sonnenuntergang).

Die Werte für Mainz Mombach sind ebenfalls leicht unterschätzt, jedoch mit einer realistischen Darstellung des Jahresverlaufs. Das Wochenprofil wird größtenteils gut wiedergegeben, nur für den Dienstag ist das Modell verhältnismäßig etwas zu hoch. Bei der Darstellung des Tagesprofils werden die Morgenwerte vom Modell gut wiedergegeben, aber der Rest des Tages wird unterschätzt, besonders am späten Abend. Dies kann auf die Schwierigkeit zurückzuführen sein, Änderungen der atmosphärischen Stabilität genau zu modellieren.

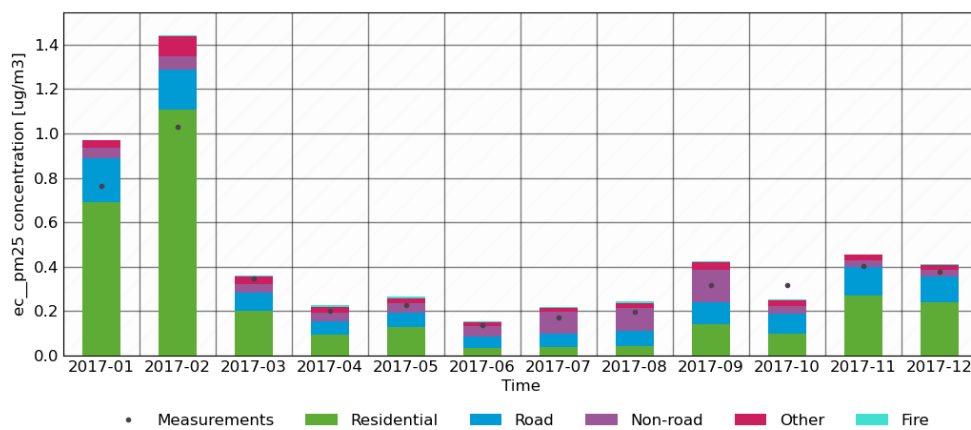
Alles in allem ergibt der Endlauf überwiegend eine realistische Darstellung der Messwerte.

Abbildung 89: Auswertung Endlauf, Melpitz

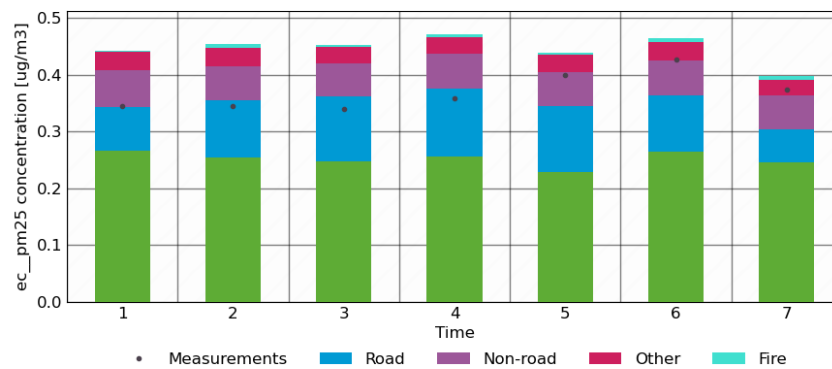
Melpitz; run: UBA-BC-End; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



Melpitz; run: UBA-BC-End; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



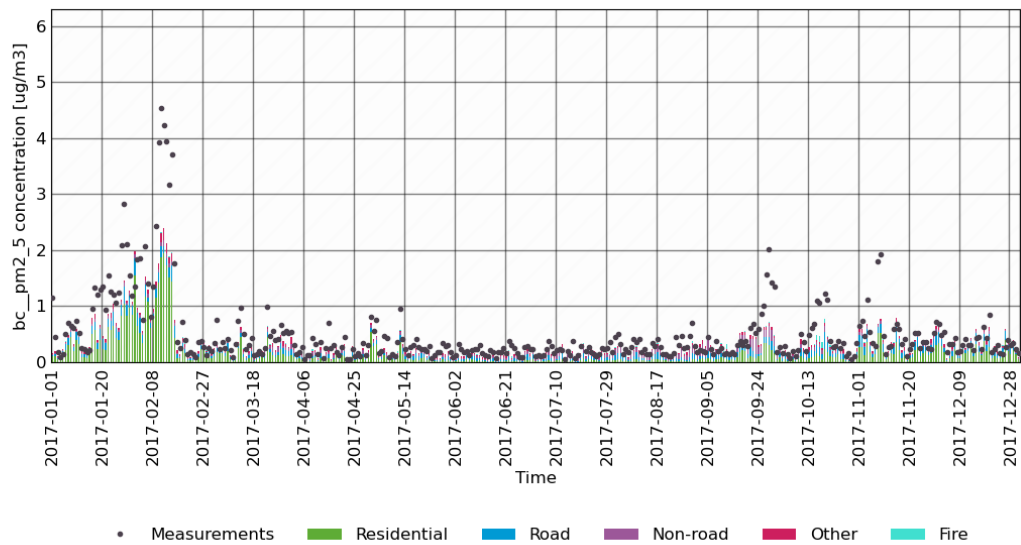
Melpitz; run: UBA-BC-End; tracer: ec_pm25 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



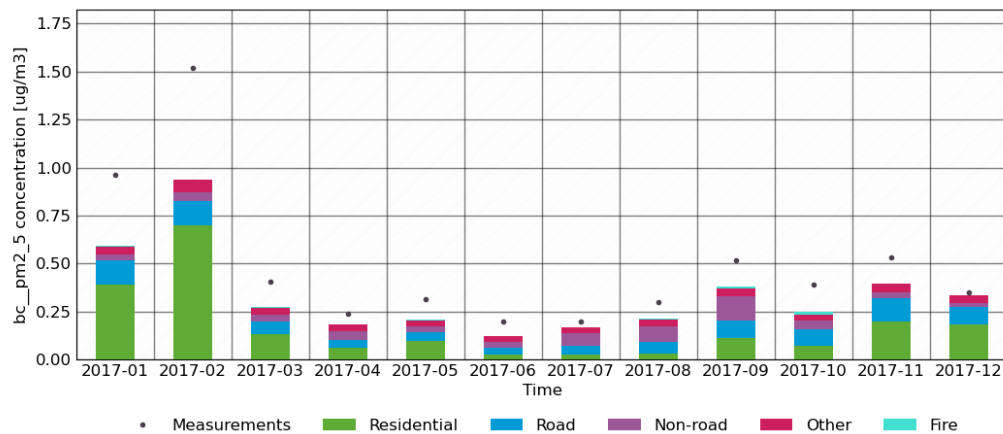
Quelle: TNO

Abbildung 90 : Auswertung Endlauf, Waldhof

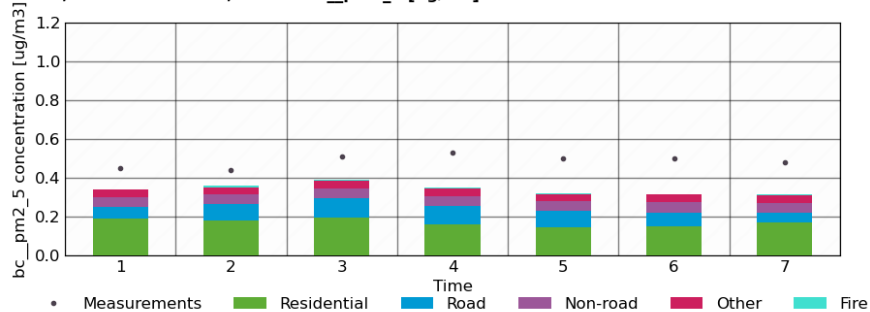
Waldhof; run: UBA-BC-End; tracer: bc_pm2_5 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

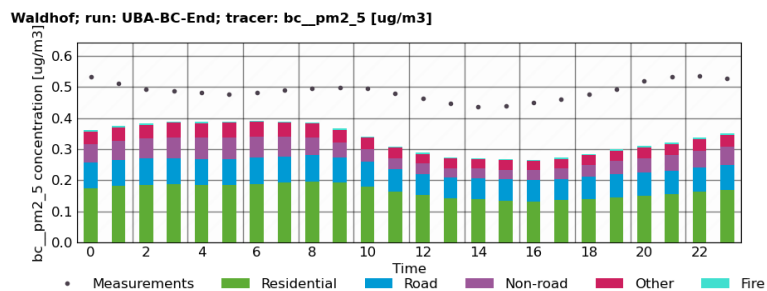


Waldhof; run: UBA-BC-End; tracer: bc_pm2_5 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



Waldhof; run: UBA-BC-End; tracer: bc_pm2_5 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

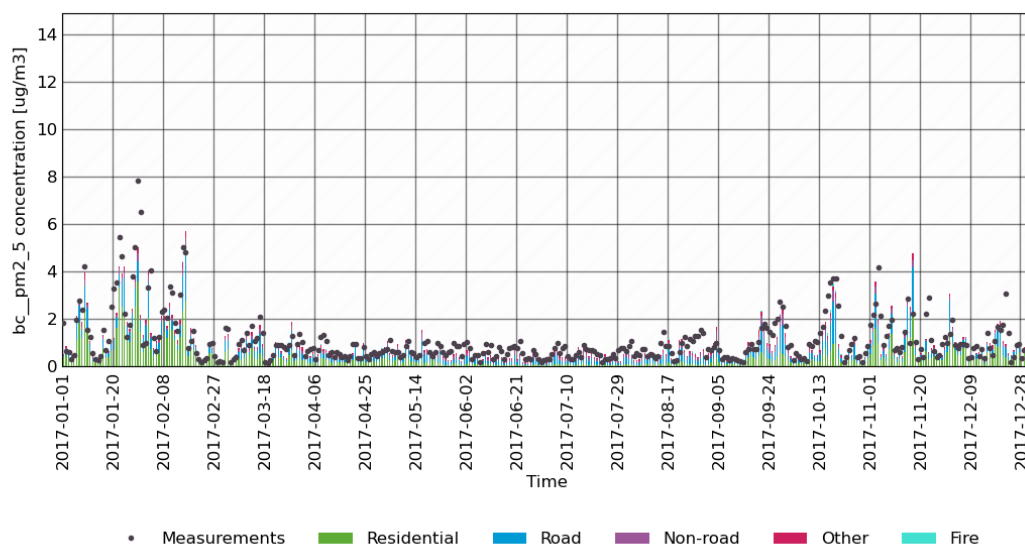




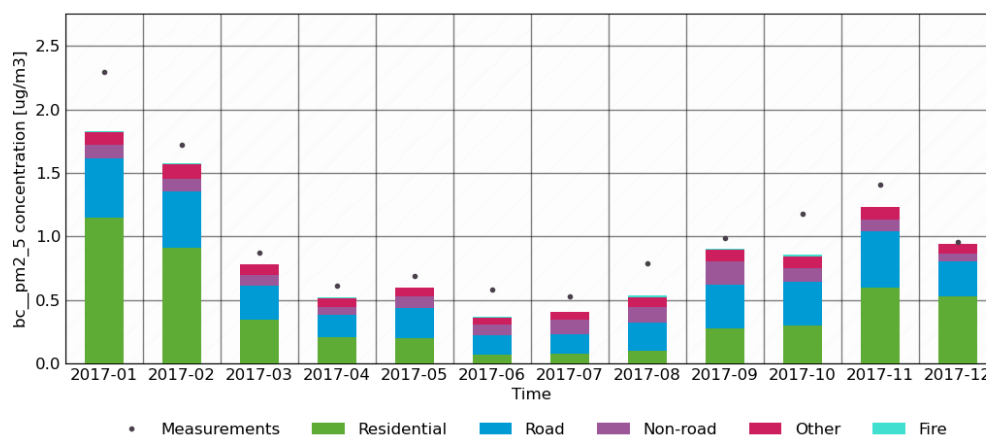
Quelle: TNO

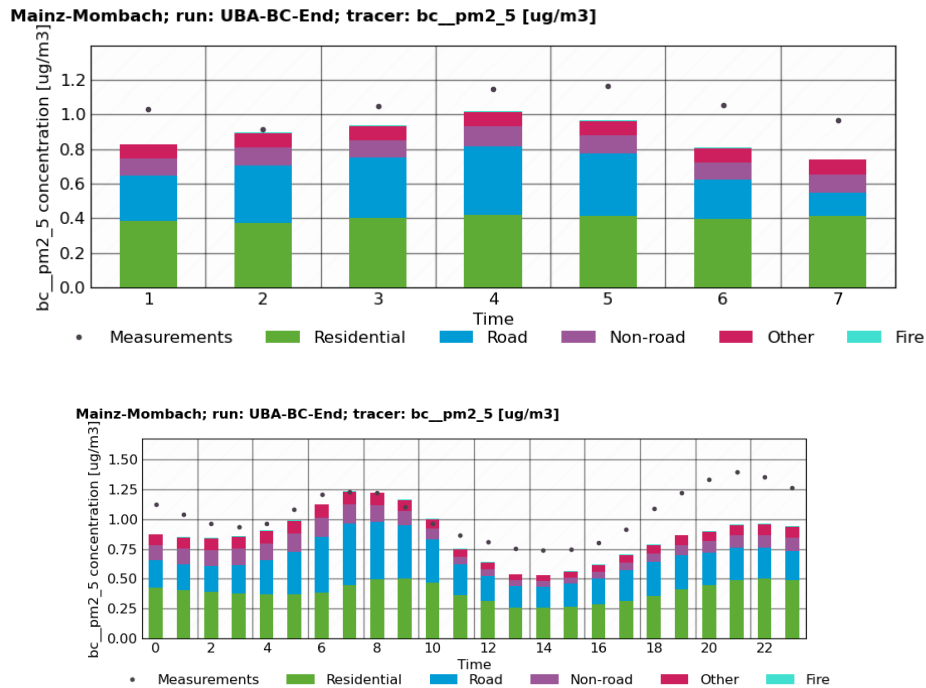
Abbildung 91: Auswertung Endlauf, Mainz Mombach

Mainz-Mombach; run: UBA-BC-End; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]



Mainz-Mombach; run: UBA-BC-End; tracer: bc_pm2_5 [ug/m3]





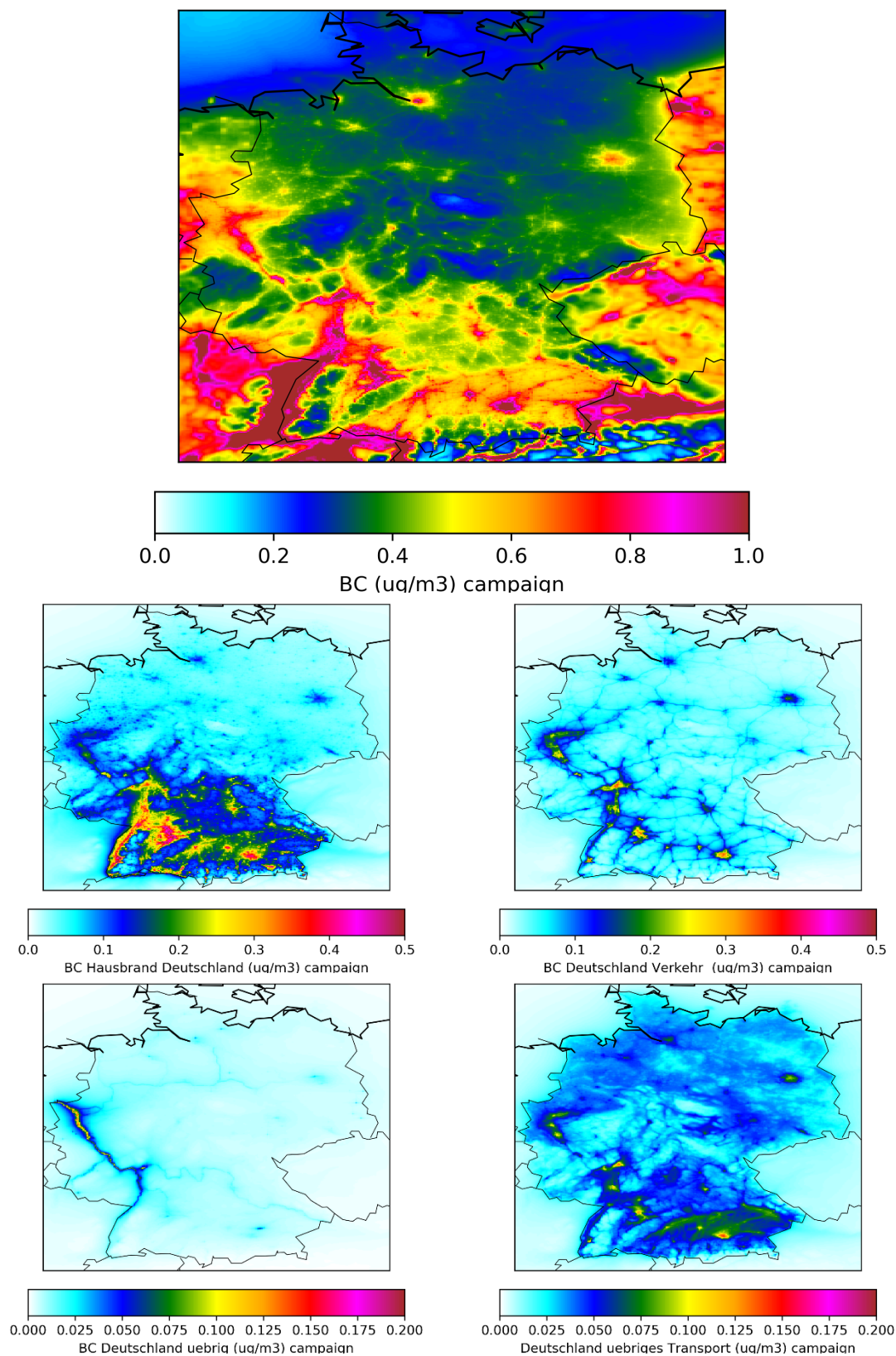
Quelle: TNO

9.3 Deutschland, Hochaufgelöst

Für die Messkampagne September 2018-September 2019 wurde eine hochaufgelöste Simulation durchgeführt (~2 km). Der Jahresmittelwert ist in Abbildung 92 dargestellt. Dieser Lauf wird als Hintergrund für die Detailauswertung für Berlin (siehe Kapitel 10) verwendet und zeigt die Autobahnstrecken, Flüsse, Städte, und dicht besiedelte Gebiete als Bereiche hoher BC Konzentrationen, aber auch den Kontrast zu größeren Naturgebieten oder anderen dünn besiedelten Gebieten. Im Vergleich zu den Läufen mit ~5 km Auflösung wurde für die Hintergrundwerte kein signifikanter Unterschied gefunden. Details werden übersichtlicher dargestellt.

Der Lauf liefert Hintergrundkonzentrationen für die mikroskalige Modellierung in Berlin und wird für Berlin anhand der Messkampagne ausgewertet, wobei die Beiträge der lokalen Quellen aus den mikroskaligen Berechnungen berücksichtigt werden, d.h. die Gesamtkonzentration. Die Messkampagne in Berlin wird in Abschnitt 7 ausführlich beschrieben. Dieser Lauf wird nicht weiter mit Messungen in ganz Deutschland ausgewertet, da die weitere Datenverfügbarkeit für 2019 stark eingeschränkt ist.

Abbildung 92: Mittlere BC Konzentration und deutsche Sektorbeiträge, Kampagneperiode, hochaufgelöst.



Quelle: TNO

10 Mikroskalige Detailmodellierung

10.1 Modellierungsansatz

Die mikroskaligen Berechnungen für das jeweilige Umfeld der vier Messstationen für den Zeitraum 1.9.2018 - 31.8.2019 wurden mit einer Kopplung der in den folgenden Kästen beschriebenen Modelle MISKAM für die Strömungsmodellierung und LASAT für die Ausbreitungsmodellierung durchgeführt, um die jeweiligen Vorteile beider Modelle (z. B. die prognostische Windfeldmodellierung von MISKAM und die dynamischen Quelleigenschaften von LASAT) zu kombinieren. Die horizontale Auflösung beträgt äquidistant im ganzen Modellgebiet $2 \times 2 \text{ m}^2$. Die Ergebnisse wurden jeweils in der Schicht ausgewertet, in der der Messkopf der jeweiligen Messstation (3.6 - 3.7 m) liegt.

Das Gebiet um die Hintergrundmessstation Buch weist im Vergleich mit den übrigen drei Standorten eine völlig andere räumliche Struktur auf. Das Umfeld der Station ist sehr dünn besiedelt und nicht städtisch geprägt. Die Station selbst steht in einem kleinen Waldgebiet. Für diese Situation ist der Standardansatz der Strömungsmodellierung mit MISKAM, bei dem von einer neutralen Schichtung – wie sie in Stadtgebieten i. d. R. gegeben ist – ausgegangen wird, nicht angemessen. Für das Gebiet um die Messstation Buch wurde daher die Strömungsmodellierung mit LASAT, bzw. dem darin enthaltenen diagnostischen Windfeldmodell, unter Berücksichtigung der Stabilitätsklassen durchgeführt.

Das Verfahren der Kopplung von MISKAM und LASAT wurde u. a. auch in einem UBA-Projekt zur Ermittlung von Grundlagen für die Entwicklung einer modellgestützten flächenbezogenen Beurteilung der Luftqualität eingesetzt (FKZ 3715 51 200 0; IVU Umwelt, 2017). Dort wurde, neben Ansätzen zur Vermeidung von Doppelzählungen von Emissionen bei der Kombination mit großräumigen Modellierungen, explizit untersucht, wie mikroskalige Modell- und Untersuchungsgebiete gewählt werden sollten, um Randeffekte möglichst zu vermeiden. Gemäß der dort gewonnenen Erkenntnisse wurde im vorliegenden Projekt für jede Messstation zunächst ein mindestens $500 \times 500 \text{ m}^2$ großes Untersuchungsgebiet definiert. Um Randeffekte zu vermeiden, wurde dann um diese Untersuchungsgebiete ein Puffer von 300 m gelegt, so dass die Modellgebiete jeweils mindestens $1100 \times 1100 \text{ m}^2$ groß sind. Hinzu kommen dann gegebenenfalls noch weitere Vergrößerungen, um die Strömungssituation am Gebietsrand, z. B. bei hohen Gebäuden, sachgerecht abzubilden. Für die Modellierung wurden die Modellgebiete so gedreht, dass die Straßenachsen bzw. Häuserfluchten der jeweiligen Straße mit der Messstation parallel zu den Gitterkanten ausgerichtet sind.

Im Einzelnen wurden für jede der vier Messstationen die folgenden Arbeitsschritte durchgeführt:

- ▶ Festlegung des Untersuchungs- und Modellgebiets, so dass Randeffekte vermieden werden
- ▶ Beschaffung und Zusammenstellung der Geometriedaten (Straßen bzw. Fahrbahnen, Gebäude)
- ▶ Berechnung der Emissionen des Kfz-Verkehrs in hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung
- ▶ Ableitung der Hausbrandemissionen aus dem Berliner Kataster und in hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung
- ▶ Aufbereitung der Geometrie- und Quelldaten entsprechend den Modellanforderungen

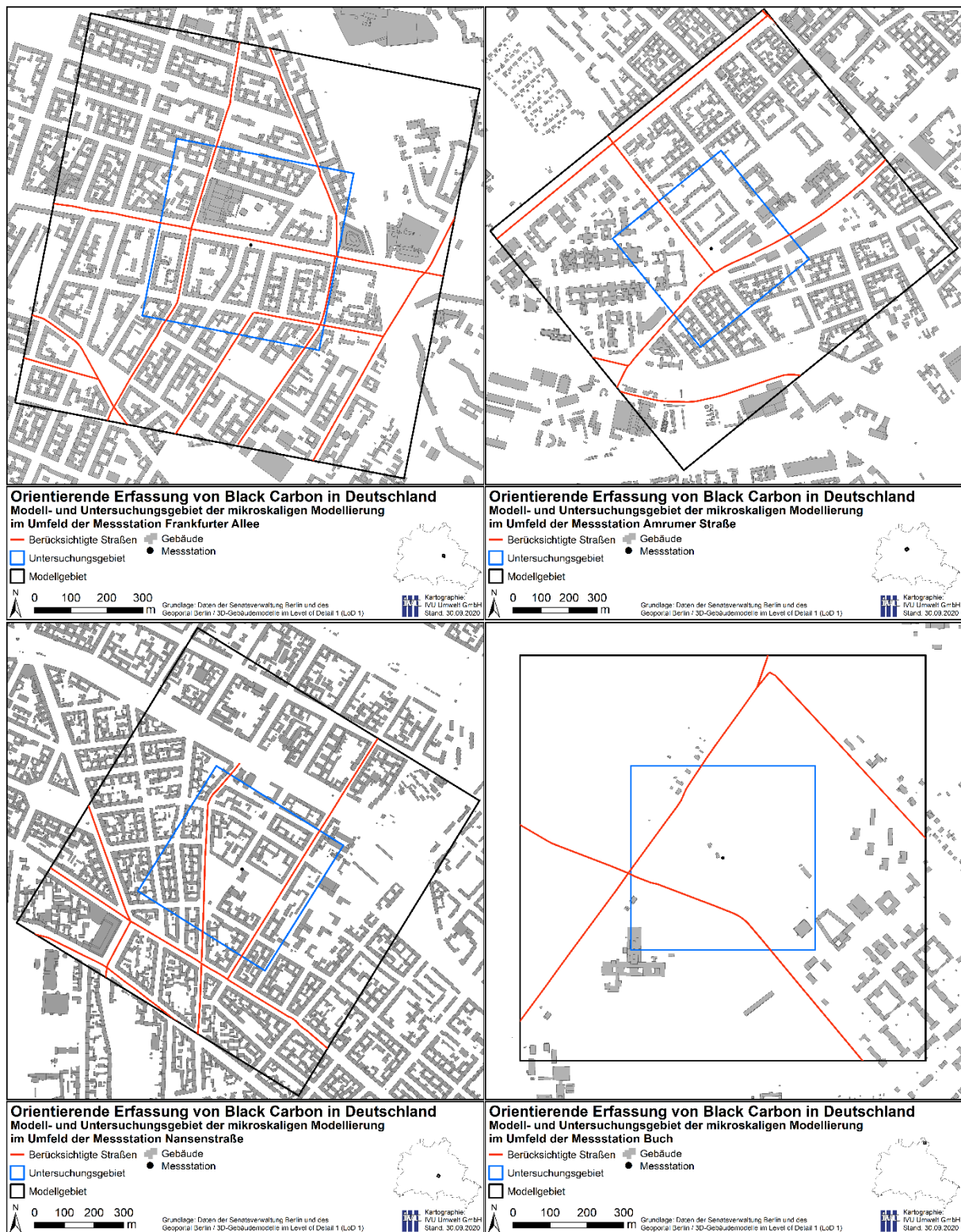
- ▶ Erstellung der Windfeldbibliothek mit MISKAM (bzw. mit LASAT für Buch)
- ▶ Ausbreitungsrechnung mit LASAT in stündlicher Auflösung für den Messzeitraum
- ▶ Ermittlung der Gesamtbelastung
- ▶ Auswertung der Konzentrationszeitreihe für den Ort der Messstation
- ▶ Aufbereitung der mittleren Konzentrationen über den gesamten Zeitraum als flächendeckende Karten für die Untersuchungsgebiete

Zur Abbildung der Gebäude als Strömungshindernisse in der mikroskaligen Modellierung wurden Daten des Geodatenportals der Senatsverwaltung Berlin genutzt. Diese standen in den beiden „Level-of-Detail“ 1 (LoD1; „Klötzchenmodell“) und 2 (LoD2; „Gebäudemodell mit Dachformen“) zur Verfügung. Stichprobenhafte Prüfungen ergaben, dass die LoD1-Daten die tatsächlichen Gebäudehöhen besser abbilden und daher wurden diese als Datengrundlage genutzt. Für jedes Modellgebiet wurden diese Gebäudedaten vor Luftbildern visualisiert und fehlende Gebäude ergänzt.

Die Messstation an der Amrumer Straße steht innerhalb einer Gruppe von Laubvegetation, was bei der Modellierung berücksichtigt wurde.

Die vier Modell- und Untersuchungsgebiete der mikroskaligen Berechnungen sind in Abbildung 93 zusammen mit den verwendeten Gebäudedaten und den Querschnittsmittelachsen der für die Kfz-Emissionen (s. Abschnitt 10.3) berücksichtigten Straßen dargestellt.

Abbildung 93: Modell- und Untersuchungsgebiete der mikroskaligen Modellierungen



Quelle: IVU

MISKAM

MISKAM (Mikroskaliges Strömungs- und Ausbreitungsmodell; Eichhorn, 2013) ist ein dreidimensionales nicht-hydrostatisches numerisches Strömungs- und Ausbreitungsmodell zur kleinräumigen Berechnung von Windverteilungen und Immissionskonzentrationen in bebauten Gebieten.

Die Simulation der Strömungsverhältnisse im Modellgebiet basiert auf den vollständigen dreidimensionalen Bewegungsgleichungen (prognostischer Modellansatz) in Form der Reynolds-gemittelten Navier-Stokes-Gleichungen (Reynolds-Averaged Navier-Stokes, RANS). Für die auf den berechneten Strömungsverhältnissen aufbauende Ausbreitungsrechnung wird in MISKAM die Advektions-Diffusions-Gleichung verwendet.

Das Modellgebiet wird durch ein räumliches Gitter in geeigneter Auflösung dargestellt. MISKAM erlaubt sowohl in horizontaler als auch in vertikaler Richtung variable Gitterweiten. Gebäude und andere Strömungshindernisse werden explizit als 3D-Objekte in der Auflösung der Rechnung zu Grunde liegenden Modellgitters berücksichtigt.

Die verkehrserzeugte Turbulenz im Straßenraum ist in MISKAM selbst nicht enthalten. Sie kann nur im Postprocessing über einen pauschalen Korrekturfaktor berücksichtigt werden. Die Berechnung von Zeitreihen von Konzentrationsfeldern ist mit MISKAM nur mit großem rechen- und datentechnischen Aufwand zu realisieren und in der allgemeinen Anwendung bis heute nicht üblich. In diesem Projekt wurden mit MISKAM die Wind- und Turbulenzfelder für definierte meteorologische Zustände berechnet und diese in eine Windfeldbibliothek für LASAT konvertiert. Die Ausbreitungsmodellierung erfolgte dann auf Basis dieser Windfeldbibliothek in LASAT (s. folgender Kasten).

LASAT

Das Ausbreitungsmodell **LASAT** (Janicke, 2015) ist ein Partikelmodell nach Richtlinie VDI 3945 Blatt 3 (KRdL, 2004) und die Grundlage des Ausbreitungsmodells AUSTAL2000 der TA Luft (2002). Es berechnet für ein dreidimensionales Modellgebiet die Ausbreitung von Spurenstoffen in der Atmosphäre, indem es für ein repräsentatives Ensemble von Spurenstoff-Partikeln die Bewegung im Strömungsfeld mit Hilfe eines stochastischen Prozesses simuliert (Lagrange-Verfahren).

Das Modellgebiet wird durch ein räumliches Gitter in geeigneter Auflösung dargestellt. LASAT verwendet in horizontaler Richtung ein äquidistantes Gitter, in vertikaler Richtung sind variable Gitterweiten möglich. Die Verwendung mehrerer ineinander geschachtelter Netze zur feineren Auflösung einzelner Bereiche innerhalb eines Modellgebiets ist möglich und erlaubt so auch die Abdeckung ganzer Stadtgebiete oder Regionen in angemessener Auflösung. Gebäude und andere Strömungshindernisse werden explizit als 3D-Objekte in der Auflösung der Rechnung zu Grunde liegenden Modellgitters berücksichtigt.

Um mit LASAT Wind- und Turbulenzfelder zu ermitteln, sind dort verschiedene Ansätze implementiert, u. a. ein diagnostisches Windfeldmodell zur Berücksichtigung von komplexem Gelände mit oder ohne Gebäude. In diesem Projekt wurde das Wind- und Turbulenzfeld, mit Ausnahme für die Station Buch, nicht mit LASAT ermittelt. Stattdessen wurde mit MISKAM

jeweils eine Windfeldbibliothek für LASAT erstellt. Zum Antrieb der mikroskaligen Berechnungen wurde eine stündlich aufgelöste Zeitreihen der benötigten meteorologischen Größen (Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Stabilitätsklasse) AKTerm verwendet. Auf Basis dieser Antriebs-Zeitreihen und der Windfeldbibliotheken wurde dann mit LASAT die Ausbreitung modelliert.

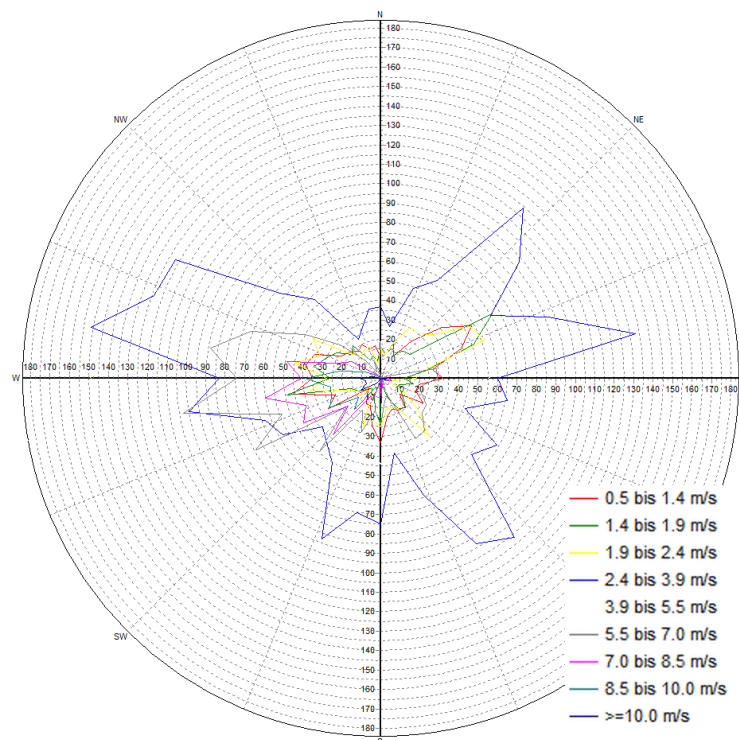
Emissionen können als Punkt-, Linien-, Flächen-, Raster- und Volumen-quellen angegeben und mit Freisetzungseigenschaften, z. B. Winkel, Geschwindigkeitsstreuung und Abklingfunktion, versehen werden. Abgasfahnenüberhöhungen können über gängige Eingangsdaten wie Wärmestrom oder Volumenstrom und Temperatur berücksichtigt werden. Sowohl die meteorologischen Daten als auch die Quellstärken der einzelnen Quellorte können als Zeitreihe vorgegeben werden. Die Ergebnisse werden für jeden Zeitschritt der Zeitreihe berechnet und können beliebig aggregiert ausgegeben werden, so dass Aussagen sowohl zu Kurzzeitkennwerten als auch zu Jahresmittelwerte direkt aus den Ergebnissen abgeleitet werden können. Die verkehrserzeugte Turbulenz im Straßenraum wird in LASAT als Eigenschaft der Emissionsquelle parametrisiert und nimmt mit Abstand von der Quelle ab.

LASAT wurde für die Simulation der Ausbreitung nicht-reaktiver Substanzen entwickelt und kann nur chemische Umsetzungen erster Ordnung für Einzelstoffe und Deposition simulieren.

10.2 Meteorologie

Als meteorologischer Antrieb für die mikroskalige Modellierung wurden die Messdaten der DWD-Station Berlin-Tegel verwendet, die in Abbildung 94 für den Modellierungszeitraum als Häufigkeitsverteilungen der Windrichtungen und -geschwindigkeiten dargestellt sind.

Abbildung 94: Windrose Berlin-Tegel für den Modellierungszeitraum



Quelle: IVU

10.3 Emissionen

In den mikroskaligen Ausbreitungsrechnungen wurden alle Quellen der Emittentengruppen Kfz-Verkehr sowie kleine und mittlere Feuerungsanlagen („Hausbrand“) innerhalb der jeweiligen Modellgebiete berücksichtigt.

Beim Kfz-Verkehr war die Datengrundlage das sogenannte „Detailnetz“ aus der 2. Fortschreibung des Luftreinhalteplans Berlin (Senat Berlin, 2019), das Angaben zum Verkehr als Jahresmittelwerte der durchschnittlichen täglichen Verkehrsstärke für 2015 enthält. Die Lage der Straßen im Verhältnis zu den Gebäudedaten wurde geprüft und ggf. korrigiert. Bei großen Verkehrsachsen und bei komplexen Kreuzungsanbindungen wurde das Straßennetz teilweise räumlich verfeinert und beispielsweise Mittelachsen des Straßenquerschnitts in zwei Mittelachsen der Richtungsfahrbahnen aufgeteilt.

Um differenzierte Verkehrsdaten für den Modellierungszeitraum zu berücksichtigen, wurde auf die Datenbasis des umweltverträglichen Verkehrsmanagementsystems (UVM) der Senatsverwaltung Berlin zugegriffen. Aus diesem UVM-System wurden für Straßen, die in den jeweiligen Modellgebieten liegen, richtungsgetrennte stündliche Kfz-Belastungen und weitere emissionsrelevante Parameter für den Modellierungszeitraum extrahiert und in dieser Detaillierungsstufe die Kfz-Emissionen auf Basis der aktuellen Version 4.1 des Handbuchs für Emissionsfaktoren (HBEFA; INFRAS, 2019) mit dem stündlichen Emissionsmodell IMMIS_{em,h} (IVU Umwelt, 2020) berechnet. Damit liegen direkt differenzierte stündliche Emissionszeitreihen der betrachteten Hauptstraßen vor.

In den Modellgebieten der Frankfurter Allee und der Nansenstraße sowie für Buch lagen für vereinzelte untergeordnete Straßenabschnitte am Rand bzw. außerhalb der jeweiligen Untersuchungsgebiete keine detaillierten Verkehrsdaten aus dem UVM vor, so dass für diese die Jahresverkehrswerte des „Detailnetzes“ des Luftreinhalteplans Berlin verwendet wurden. Um die Emissionsdatenbasis für den Kfz-Verkehr zu erweitern, wurde bei der Senatsverwaltung Berlin recherchiert, ob in den betrachteten Modellgebieten ergänzende Verkehrsdaten aus Zählungen vorliegen. Dies war für die Modellgebiete der Frankfurter Allee und der Nansenstraße der Fall, wo so auf Basis dieser Zählraten aus den Jahren 2011 und 2016 für weitere untergeordnete Straßenzüge Kfz-Emissionen ermittelt und angesetzt werden konnten.

Die Hausbrandemissionen lagen als Summenwerte im 100-m-Raster aus dem Emissionskataster Berlin (AVISO & IE, 2016) vor und wurden anhand von Gebäudevolumina differenziert räumlich verteilt. Dazu wurde für jedes Gebäude eine Emissionsquelle auf dessen Dach generiert und jeder dieser Quellen eine Emissionsmenge entsprechend dem Anteil des Volumens des zugehörigen Gebäudes am gesamten Gebäudevolumen der 100-m-Rasterzelle zugewiesen. Damit sind die Hausbrand-Emissionen im Modellgebiet sowohl in der Fläche als auch in der Höhe entsprechend der Gebäudestruktur verteilt. Der zeitliche Verlauf der Emissionen des Hausbrands wurde anhand der Heizgradtagwerte ermittelt. Die Gebäude im Untersuchungsgebiet für Buch werden alle mit Fernwärme versorgt, so dass in diesem Untersuchungsgebiet keine Hausbrandemissionen auftreten.

10.4 Hintergrund- und Gesamtbelastung

In der mikroskaligen Modellierung wird zunächst nur die Zusatzbelastung berechnet, die sich aus den in der Modellierung explizit berücksichtigten Quellen ergibt. Zur Ermittlung der Gesamtbelastung muss diese mit der Hintergrundbelastung kombiniert werden. Die

Hintergrundbelastung ist im vorliegenden Fall das Modellergebnis der LOTOS-EUROS-Modellierung der höchsten Auflösung D3 für die entsprechende Gitterzelle.

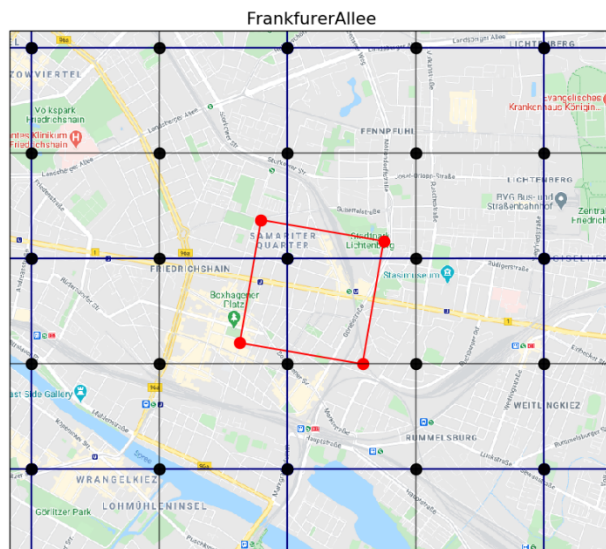
Allerdings sind in diesen von LOTOS-EUROS berechneten Konzentrationen auch die lokalen Emissionen aus den Untersuchungsgebieten der mikroskaligen Berechnungen enthalten. Um diese Emissionen nicht doppelt zu berücksichtigen, wurden in der LOTOS-EUROS-Modellierung die Emissionen des Hausbrands und des Kfz-Verkehrs der 1x1 km² GRETA

Emissionsgitterzellen, in denen die jeweilige Messstation liegt, mit entsprechenden Labeln für die vier Standorte und je zwei Sektoren Hausbrand und Kfz-Verkehr versehen. Die Ermittlung der Hintergrundbelastung für die vier Gebiete der mikroskaligen Modellierung erfolgte dann ohne Berücksichtigung der jeweiligen lokalen Beiträge in LOTOS-EUROS.

Eine vollständige Konsistenz zwischen den Emissionen der Mikroskala und denen aus LOTOS-EUROS kann dabei allerdings aus den folgenden Gründen nicht erreicht werden:

- ▶ De mikroskalige Modellierung verwendet räumlich und zeitlich hochaufgelöste Emissionsdaten mit zugrundeliegenden Berliner Aktivitätsdaten, die in GRETA mit seinen deutschlandweiten Verteilparametern so nicht abgebildet werden können.
- ▶ Die mikroskaligen Modellgebiete wurden anhand fachlicher Gründe definiert, was zu einer jeweiligen Lage, Größe und z. T. auch Drehung führt, die sich nicht 1:1 auf die Gitterzellen von LOTOS-EUROS abbilden lassen. Dies illustriert Abbildung 95 für die Frankfurter Allee als ungünstiges Beispiel. Für die Nansenstraße ist die Situation ähnlich. Für Buch und die Amrumer Straße ist das jeweilige mikroskalige Untersuchungsgebiet von einer LOTOS-EUROS Gitterzelle abgedeckt.

Abbildung 95 Modellgebiete der Mikroskala (rot), GRETA Gitter (schwarz) und LOTOS-EUROS Gitterzellen (blau, jeweils vier GRETA Gitterzellen formen eine LOTOS-EUROS Zelle)



Quelle: IVU

Die Emissionen des Berliner Katasters und die aus GRETA in Übereinstimmung zu bringen, stellt eine komplexe, hier nicht leistbare Aufgabe dar. Auch das "einfache" skalieren von Emissionen aus GRETA für Berlin auf die Werte des Katasters von Berlin ist nicht sinnvoll, weil die räumliche

Verteilung nicht übereinstimmt. Es ist daher ein besserer Ansatz, sich der gegenwärtigen Grenzen und Unsicherheiten in der räumlichen Differenzierung der GRETA-Emissionen, die eine möglichst gute deutschlandweite Verteilung abbilden sollen, bewusst zu sein. Für Standorte, die stark von lokalen Quellen beeinflusst sind wie Frankfurter Allee lässt sich eine gute Darstellung der lokalen Emissionsbeiträge nur mit einem mikroskaligen Ansatz erreichen.

Der letztlich gewählte Ansatz, nur die Emissionen der GRETA-Gitterzelle, die die Messstation enthält, als lokale Emissionen zu kennzeichnen, ist durch Überlegungen motiviert, dass dies zu so wenig möglich Doppelzählung der Emissionen wie möglich führt. Wenn stattdessen z. B. die Emissionen in den vier Gitterzellen um das mikroskalige Modellgebiet betrachtet würden, wären relativ zum mikroskaligen Modellgebiet zu viele Emissionen als lokal gekennzeichnet. Außerdem würde das mikroskalige Modellgebiet in vier verschiedene LOTOS-EUROS Gitterzellen fallen, was dann für eine weitere ungünstige Verschmierung der Emissionen in dem LOTOS-EUROS Modell führen würde. Eine weitere, noch kompliziertere Alternative wäre die Verendung einer anteiliger Emissionen abhängig der Fläche und Landnutzung. Solch ein Ansatz wäre gerechtfertigt wenn in LOTOS-EUROS direkt die Emissionen des Berliner Katasters verwendet würden, würde in der gegenwärtigen Situation nur eine Scheingenauigkeit vortäuschen.

Die Auswertung der modellierten Konzentrationen am Messstandort wird jetzt von einer LOTOS-EUROS Gitterzelle und dem dortigen mikroskaligen Beitrag bestimmt. Die mikroskalig berechneten Konzentrationen werden mit den Hintergrundkonzentrationen von LOTOS-EUROS zur Gesamtbelastung addiert. Dabei werden in LOTOS-EUROS jeweils die für die betrachtete Messstation als lokaler Beitrag gelabelten Konzentration nicht berücksichtigt. Gradienten der Konzentrationen in LOTOS-EUROS sind klein im Verhältnis zu den starken lokalen Konzentrationsgradienten, die vor allem durch den Straßenverkehr zu erwarten sind und lassen sich deshalb in den Abbildungen der Jahresmittelwerte nicht direkt erkennen. Abbildung 96 zeigt die mittlere BC Konzentration der LOTOS-EUROS Simulation, zusammen mit mittlerer Konzentrationsbeitrag der Berliner Hausbrandemissionen und mittlerer Konzentrationsbeitrag der Berliner Verkehrsemissionen, und Anteil BC aus Biomasseverbrennung and totale BC Immission.

Obschon der hier konkret ausgewählte Ansatz zur Kopplung der Modellskalen ohne Doppelzählung keine perfekte Abstimmung der Emissionen leistet, bietet er einen guten Kompromiss zwischen konsistenten deutschlandweiten Hintergrundkonzentrationen und hoher Detaillierung bei den lokalen Beiträgen. Damit ergeben sich in LOTOS-EUROS als Mittelwerte über den Modellierungszeitraum die Hintergrundbelastungen gemäß Tabelle 19.

Tabelle 19 Hintergrundbelastungen für die mikroskaligen Modellierungen

| Station | Frankfurter Allee | Nansenstr. | Amrumer Str. | Buch |
|----------------------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| Hintergrundbelastung | 0.652 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ | 0.650 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ | 0.652 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ | 0.522 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ |

10.5 Ergebnisse Mikroskala

Mit der mikroskaligen Modellierung wurden für den Modellierungszeitraum 1.9.2018 - 31.08.2019 für jedes Modellgebiet Konzentrationszeitreihen in stündlicher Auflösung ermittelt. Für den Ort der Messstation werden die berechneten Konzentrationen als Zeitreihen vorgehalten. Die mittleren Konzentrationen über den gesamten Zeitraum wurden jeweils als flächendeckende Karten für die Untersuchungsgebiete aufbereitet.

10.5.1 Flächenhafte Auswertung

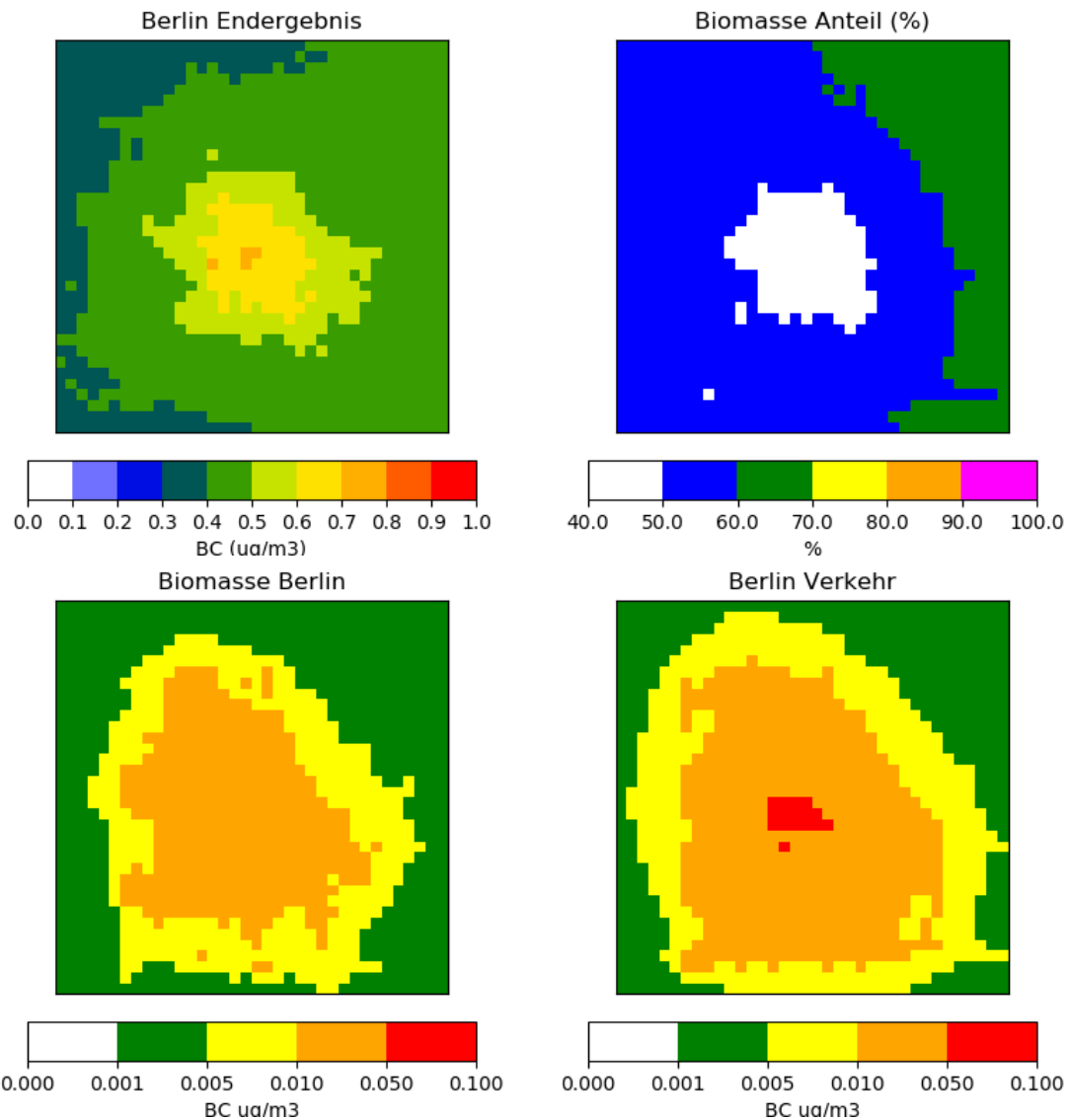
Die mittleren Konzentrationen für den Modellierungszeitraum sind für die vier Untersuchungsgebiete in Abbildung 97 dargestellt. Die Konzentrationen im Gebiet der Frankfurter Allee sind deutlich durch Belastungen entlang der Frankfurter Allee dominiert, die sich dort durch die Kfz-Emissionen und die weitgehend geschlossene Randbebauung entlang der Frankfurter Allee ergeben. Maximal werden Zusatzbelastungen in Höhe von $0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. Gesamtbelastungen von $1.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ modelliert. Für den Ort der Messstation beträgt die modellierte Zusatz- bzw. Gesamtbelastung 0.6 bzw. $1.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Für die Amrumer Straße und die Nansenstraße, bei denen es im Untersuchungsgebiet keine ausgeprägten Straßenschluchten mit hohen Verkehrsbelastungen gibt, werden die höchsten Konzentrationen für einzelne Innenhöfe modelliert. Die in diesen Untersuchungsgebieten vereinzelt auftretenden, auch im Vergleich zur Frankfurter Allee, hohen Werte sind in den hohen Hausbrandemissionen in den Modellgebieten der Amrumer Straße und insbesondere der Nansenstraße begründet. Diese sind summiert über das Modellgebiet in der Amrumer Straße über doppelt und in der Nansenstraße fast vier Mal so hoch wie in der Frankfurter Allee. Da die räumliche Verteilung der Hausbrandemissionen innerhalb der Modellgebiete über die Gebäudevolumina erfolgte und keine konkrete Kenntnis über die Emissionen einzelner Gebäude oder die Lage der Kamine berücksichtigt wurde, ist die dargestellte räumliche Verteilung hinsichtlich Konzentrationsspitzen in einzelnen Innenhöfen nicht belastbar.

Für das Untersuchungsgebiet der Amrumer Straße werden Zusatzbelastungen in Höhe von $0.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. Gesamtbelastungen von $1.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ modelliert. Für den Ort der Messstation beträgt die modellierte Zusatz- bzw. Gesamtbelastung 0.1 bzw. $0.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Für das Untersuchungsgebiet der Nansenstraße erreichen die modellierten Zusatzbelastungen bis zu $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und die Gesamtbelastungen bis zu $1.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Für den Ort der Messstation beträgt die modellierte Zusatz- bzw. Gesamtbelastung 0.2 bzw. $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

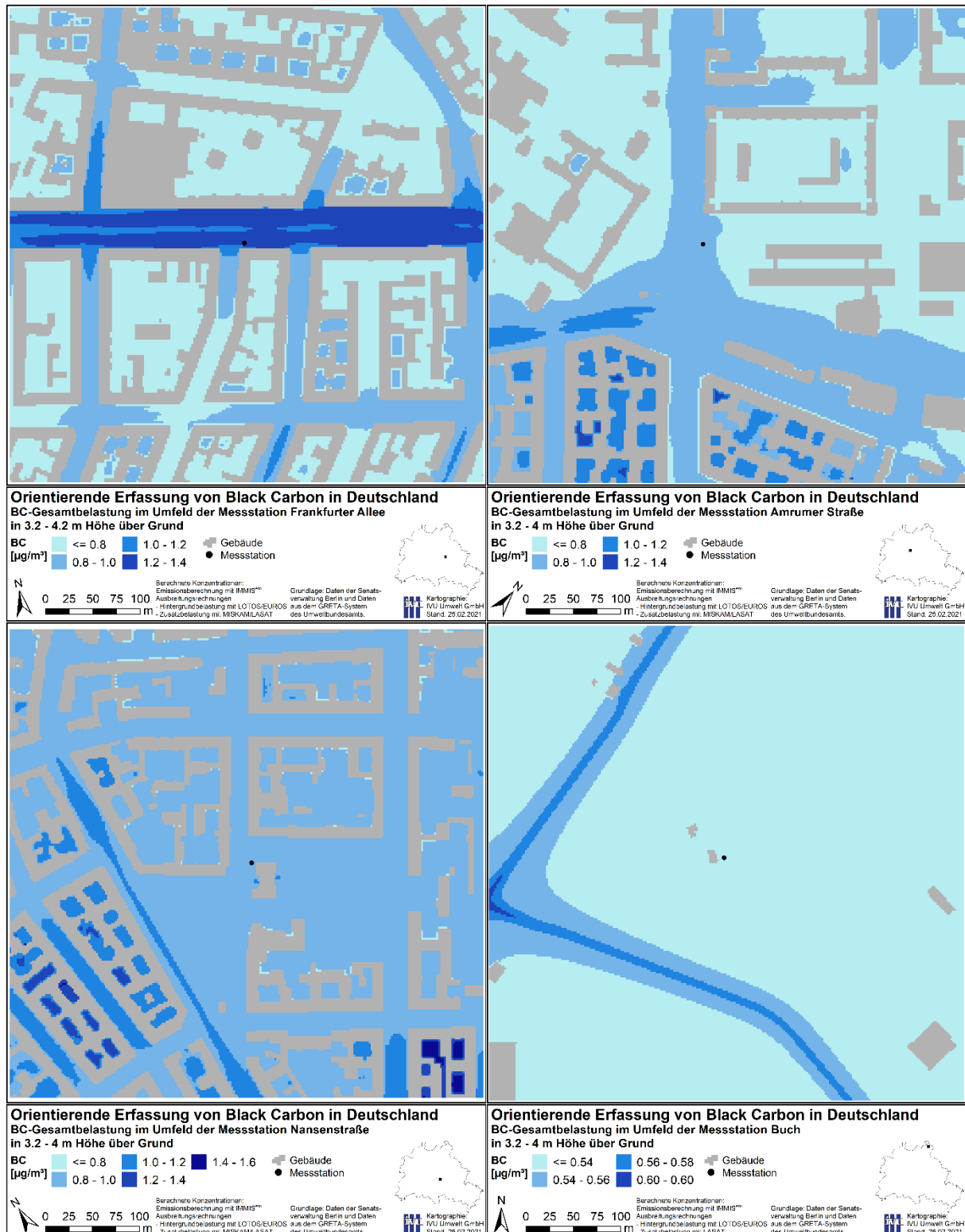
Für Buch gibt es keinen lokalen Beitrag der Quellengruppe Hausbrand, da alle Gebäude im Modellgebiet mit Fernwärme versorgt werden. Der lokale Beitrag des Kfz-Verkehrs ist sehr gering und auch die Hintergrundkonzentration ist hier niedriger als für die anderen Gebiete. Maximal werden Zusatzbelastungen in Höhe von $0.07 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. Gesamtbelastungen von $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ modelliert. Für den Ort der Messstation betragen die modellierte Zusatz- bzw. Gesamtbelastung 0.01 bzw. $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Abbildung 96 Jahresmittlere BC Konzentrationen für Berlin und Umgebung. Mittlere BC Konzentration (oben links) , Mittlerer Anteil der Biomasseverbrennung (oben rechts). Unten: Mittlere Konzentrationen die Emissionen in Berlin zufolge sind, links für Biomasseverbrennung, rechts für Verkehr.



Quelle: TNO

Abbildung 97 Jahresmittlere Konzentrationen in den Untersuchungsgebieten der Mikroskala. Für die Legende für Buch wurde eine andere Skala verwendet



Quelle: IVU

10.5.2 Vergleich zu Messungen

Die Modellergebnisse (Hintergrund+ Lokal) wurden mit den Daten der Messkampagne verglichen. Die statistischen Kenngrößen sind in Tabelle 20 zusammengefasst. Für die Nansenstraße und die Frankfurter Allee sind Zeitreihen der Tagesmittelwerte sowie Jahres-, Monats- und Tagesprofile dargestellt in Abbildung 98 und Abbildung 99. In Abbildung 100 sind für alle Stationen die Anteile der Biomasseverbrennung dargestellt. Die Modellierung von Buch zeigt die besten statistischen Kenngrößen. Diese Station ist am wenigsten von lokalen Quellen beeinflusst und daher weniger sensitiv bezüglich Unsicherheiten in den lokalen Beiträgen und kann damit besser als die anderen Stationen mit einem Modell mit Gitterweite ~2 km abgebildet werden.

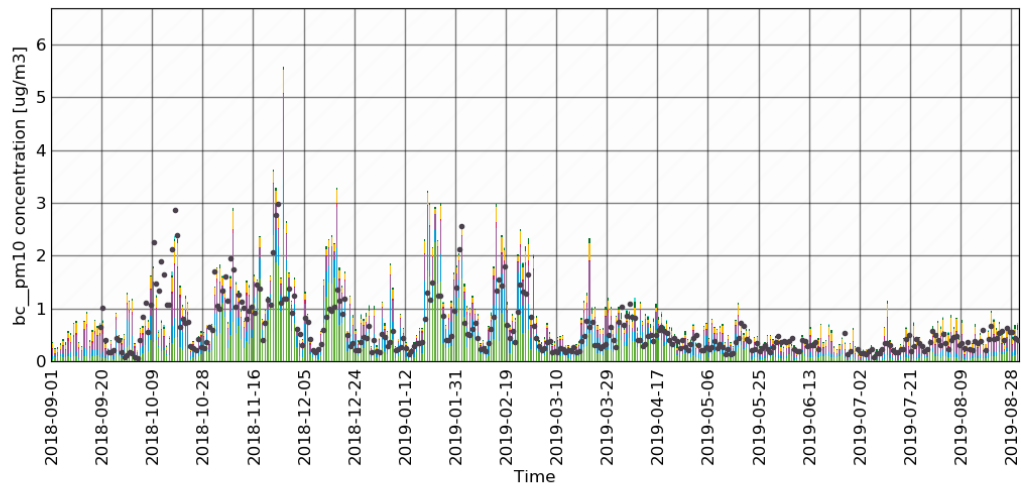
Die Daten und Abbildungen zeigen, dass die modellierten Werte die Messungen generell gut widerspiegeln. Der Verlauf in der Zeit wird gut abgebildet und die modellierten Konzentrationen haben die richtige Größenordnung. Die höheren Konzentrationen werden aber oft überschätzt. Ein Grund dafür ist, dass in der hochaufgelösten Simulation von LOTOS-EUROS der vertikale Austausch in Situationen mit sehr stabiler Grenzschicht etwas unterschätzt wird. Dieser Effekt ist bei hoher Auflösung und bei Verwendung von mehr Ebenen in der Vertikalen stärker als bei den Szenarioläufen. Jahres- Wochen- und Tagesgang werden meist gut repräsentiert, wobei für die Nansenstraße die Konzentrationen freitags am meisten überschätzt werden. Im Oktober werden die Konzentrationen in einer Episode unterschätzt. Dies ist in der Frankfurter Allee, wo der lokale Verkehrsbeitrag dominiert, nicht sichtbar, aber deutlich für z.B. die Nansenstraße und auch in den relativ hohen gemessenen Biomasse-Beiträgen um den 10. Oktober zu erkennen. Die Tatsache, dass dies die einzige Episode ist, die unterschätzt wird, weist darauf hin, dass die Episode stark von einer (oder ggf. auch mehreren) Quelle beeinflusst ist, die nicht im Inventar enthalten ist oder bei der die zeitliche Verteilung nicht korrekt abgebildet wurde (spezifisches Ereignis). Eine HYSPLIT Backward Trajectory Simulation zeigte eine Anströmung aus der Tschechei, wie bereits in Abschnitt 8.7.4 diskutiert wurde.

Tabelle 20 Statistische Auswertung Berlin Endergebnis

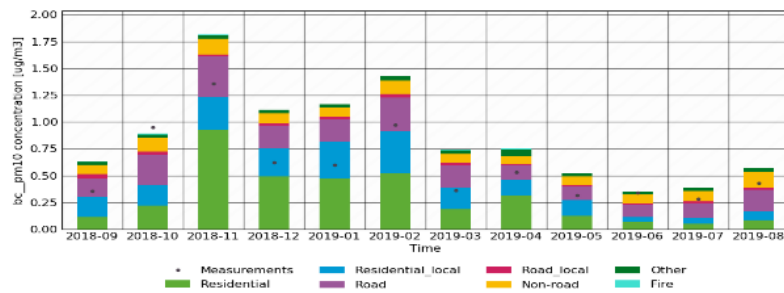
| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|------|------|------|
| MC010 | 0.52 | 0.80 | 0.28 | 0.52 | 0.60 |
| MC042 | 0.59 | 0.89 | 0.30 | 0.56 | 0.57 |
| MC077 | 0.44 | 0.54 | 0.10 | 0.39 | 0.70 |
| MC174 | 0.98 | 1.30 | 0.32 | 0.68 | 0.51 |

Abbildung 98 Modellerte Sektorbeiträge und Messungen für die Nansenstrasse

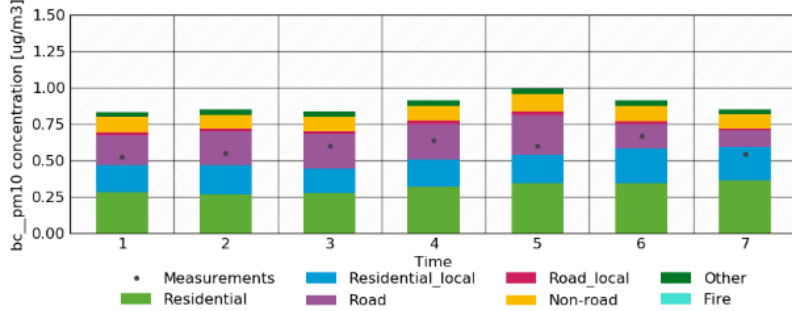
MC042; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]



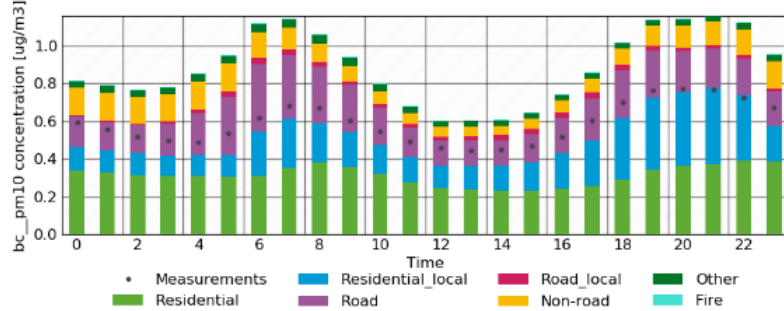
MC042; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]



MC042; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]



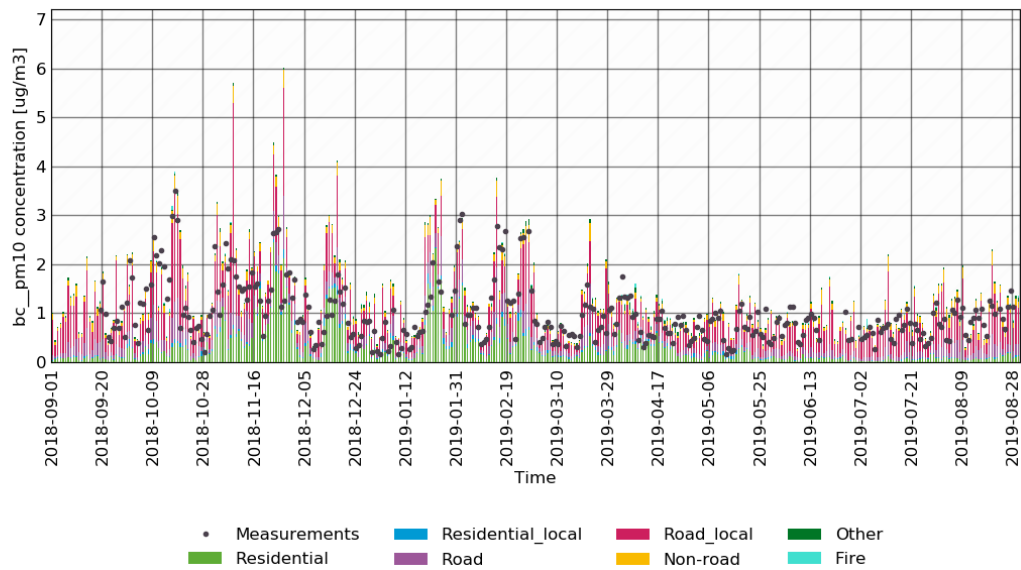
MC042; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [ug/m3]



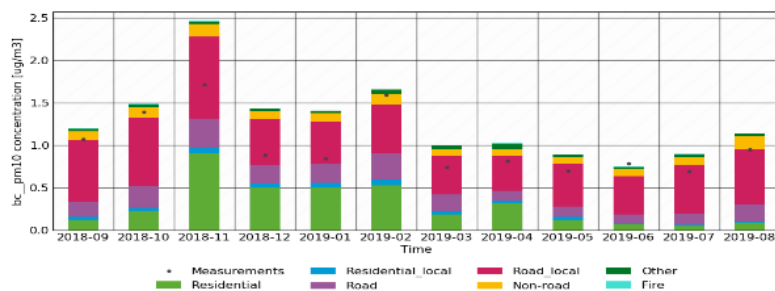
Quelle: TNO

Abbildung 99 Modellerte Sektorbeiträge und Messungen für die Station Frankfurter Allee

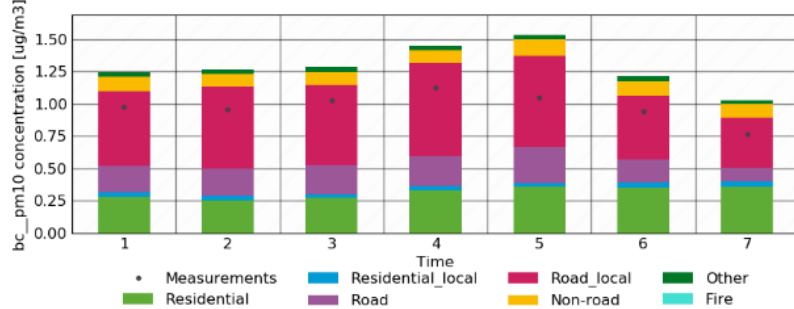
MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



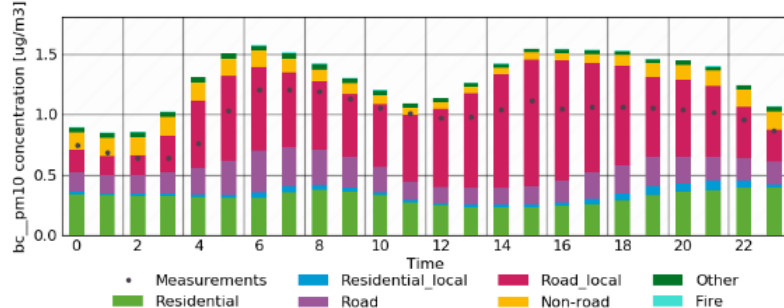
MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



MC174; run: UBA-BC-Berlin-End; tracer: bc_pm10 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]



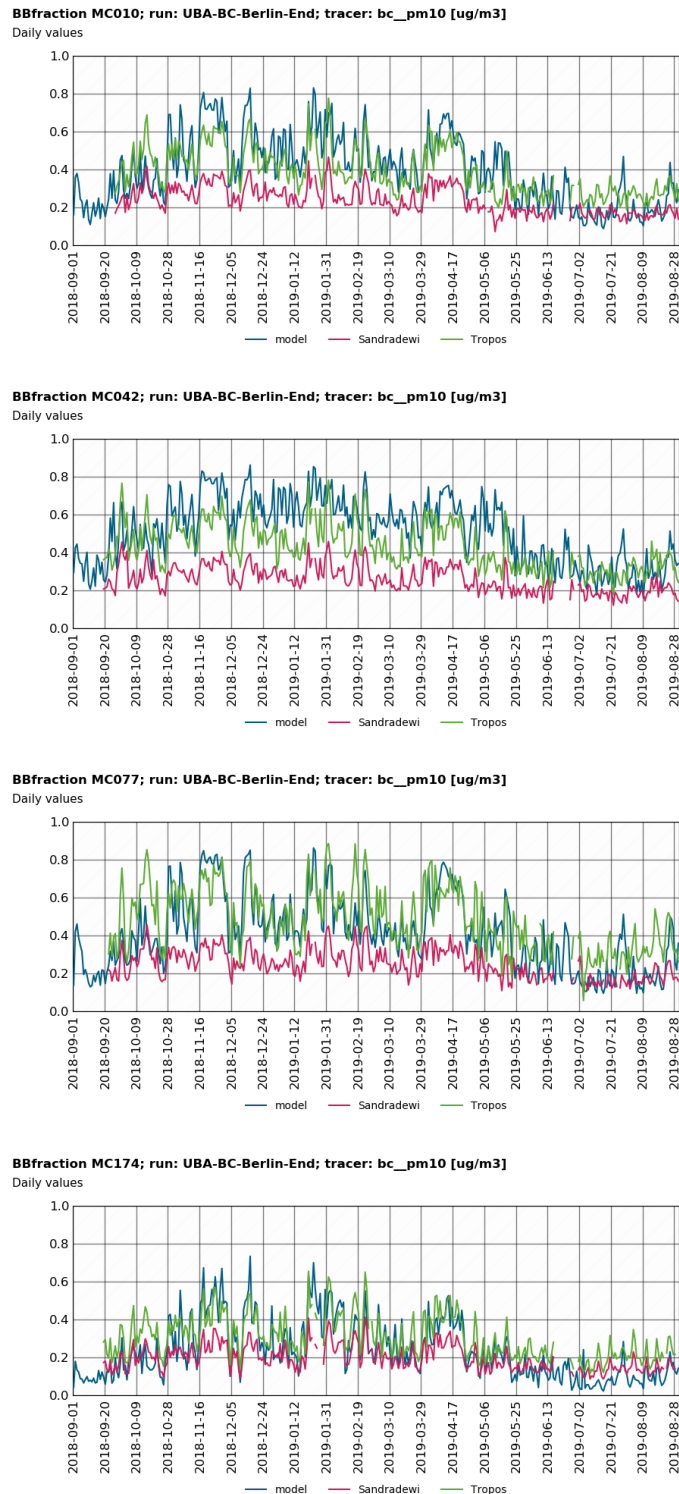
Quelle: TNO

Mit dem Aethalometer war es möglich, den Beitrag von EC aus der Verbrennung von Biomasse von dem aus fossilen Brennstoffen zu trennen. Für Berlin wurde eine Zuordnung zu EC_{ff} und EC_{bb} vorgenommen, wie im Abschnitt 5.5 beschrieben. Dies ist ein Unterschied zum Ansatz von Sandradewi, der direkt einen Anteil schätzt. Dennoch wurde aus den EC_{ff} und EC_{bb} aus den Beobachtungen ein Anteil der Biomasseverbrennung berechnet, um ihn mit den Modellergebnissen und den Ergebnissen, die sich aus dem Sandradewi-Ansatz ergeben würden, zu vergleichen. Für diesen Vergleich sind alle modellierten Konzentrationen aus Hausbrand und Waldbrand als Biomassebeitrag addiert und der Anteil am gesamten BC berechnet worden. Der Vergleich ist in Abbildung 100 wiedergegeben.

Bei dem neuen Ansatz stimmt der modellierte Anteil von Biomasse mit den Messungen gut überein. Vor allem im Winter ist die Übereinstimmung hoch. Im Sommer hingegen wird der Biomasseanteil in der Modellierung hinsichtlich der von den Messwerten abgeleiteten Werten etwas unterschätzt. Der Sandradewi-Ansatz würde implizieren, dass der modellierte Anteil von Biomasse zu hoch ist. Die gute Übereinstimmung zwischen modellierten und gemessenen Konzentrationen mit dem neuen Ansatz spricht dafür, dass der neue Ansatz in diesem Fall der wahrscheinlicheren ist. Nur im Sommer gibt der Sandradewi-Ansatz eine bessere Übereinstimmung zwischen dem modellierten und dem durch Messungen abgeleiteten Biomassebeitrag. Für die Nansenstraße ist der Unterschied zwischen modelliertem und gemessenen Biomasseanteil am größten mit einer Überschätzung der modellierten Beiträge. An dieser Station sind die modellierten lokalen Hausbrandbeiträge am größten und könnten wegen der limitierten Genauigkeit der Emissionen überschätzt sein.

Es ist eine Episode um den 10. Oktober zu erkennen, in der es eine erhöhte Biomassebeitrag in den Messungen gibt, die nicht vom Modell wiedergegeben ist. Dieser Fall hängt wieder mit Zufluss von Luftmassen aus Tschechien zusammen, wo die Verbrennung von Biomasse in der Landwirtschaft eine Rolle spielen könnte (siehe Abschnitt 8.7.4). Der Biomasseanteil steigt bei diesem Ereignis nicht in allen Stationen gleichermaßen, weil die lokalen Gesamtkonzentrationen und die lokalen Verkehrsbeiträge nicht die gleichen sind. Insbesondere für die Nansenstraße wo der Biomassebeitrag des Modells generell eher überschätzt wird ist dies eine Episode in der das Modell dann eine gute Übereinstimmung mit den Messungen gibt.

Abbildung 100: Anteil Biomasse an BC Konzentrationen. Modelliert (Blau) und von Messungen abgeleitet (genereller Sandradewi Ansatz (Fuchsie) und Tropos Ansatz (Grün) spezifisch für die Berliner Stationen)



Quelle: TNO

11 Diskussion

Die Studie führte zu einer verbesserten Darstellung der BC-Emissionen und der BC-Konzentrationen in Deutschland mit allgemein höheren BC-Konzentrationen. Zusätzlich zu den Änderungen der Emissionsfaktoren wurden neue räumliche und zeitliche Verteilungen für Verbrennung, Straßenverkehr und sonstigen Verkehr abgeleitet. In Deutschland handelte es sich dabei hauptsächlich um die Emissionen aus dem landwirtschaftlichen Verkehr. Zusätzlich wurden Messungen in Berlin durchgeführt, wobei die BC-Messungen mit dem Aethalometer mit den EC-Messungen harmonisiert wurden und der Beitrag der Biomasse zum Gesamt-BC mit einer neuen Methode abgeleitet wurde.

Es wurde ein integraler Ansatz mit zwei Säulen gewählt. Die Emissionsfaktoren wurden anhand von Vergleichen mit der Literatur aktualisiert. Diese Emissionen wurden mit Hilfe von Euler'schen (Europa, Deutschland) und Lagrang'schen Modellen (Berlin) in Konzentrationen umgerechnet. Die modellierten Konzentrationen wurden anhand von Messungen validiert, was eine Bewertung der vorgeschlagenen Emissionsänderung ermöglichte. Darüber hinaus liefern die modellierten Konzentrationen eine flächendeckende Karte der BC Immissionsbelastung in Deutschland.

Der Prozess erforderte eine starke Zusammenarbeit von Experten für Emissionen, Modellierung und Beobachtungen, um zu einem konsistenten Bild zu gelangen, da es in all diesen Bereichen große Unsicherheiten gibt. Die wichtigsten Unsicherheiten und Empfehlungen werden hier erläutert.

Messungen

Die Analyse der Aethalometerdaten für Berlin hat klar gezeigt, dass für die Ableitung der eBC aus optischen Messungen die Anwendung von lokal bestimmten MAC Werte unentbehrlich ist. Dafür wurden zusätzliche EC Messungen verwendet. Der Effekt war groß: die harmonisierten eBC-Konzentrationen waren 40-50% niedriger als die ursprünglich ausgewertete BC Konzentrationen mit Standardwerten für MAC. Diese Erkenntnis wurde weiter miteinbezogen in die Auswertung der Modellläufe für Stationen bei welchen Standardfaktoren angewendet sind um BC Konzentrationen zu messen.

Auch für die Auswertung der Biomassenbeiträge wurde eine neue Methode mit Kalibrierung an einer Station die stark von Biomassenverbrennung dominiert ist entwickelt und angewandt. Im Vergleich zu den üblichen Sandradewi (2008) Ansatz hat die neue Methode einen starken Anstieg des berechneten Biomassebeitrages zur Folge.

In der Modellierung werden oft die Daten der Messungen als Wahrheit genommen. Diese Studie zeigt, dass der Effekt von Unsicherheiten in den Messungen groß sein kann und das für eine Modellstudie harmonisierte eBC Werte erforderlich sind. In der EMEP Intensivstudie zu BC in 2018-2019, zum Beispiel, sind für einen Teil der Messungen solche Harmonisierungen mit lokalen MAC Werte durchgeführt worden. Umgekehrt können Modellwerte die von Messungen abgeleitete eBC Werte gut widerspiegeln. Dies führt zu einer weiteren Akzeptanz der verwendeten Ansätze und Verringerung der Unsicherheiten in den Messungen. Wenn, wie in dieser Studie, Messungen und Modellwerte so gut übereinstimmen, gibt das Vertrauen in sowohl Messungen als auch das Modell.

Emissionen

Die Schätzung von Emissionen ist eine Herausforderung, insbesondere bei dem Hausbrandsektor. Die Anpassung der Emissionsfaktoren für diesen Sektor (Schritt 1) zeigte die größte Verbesserung für die modellierte BC-Konzentration. Die modellierten Konzentrationen stimmten besser mit den Messungen überein. Auffällig ist, dass die Konzentrationen in Deutschland immer noch niedriger sind als in den Nachbarländern. Für einige Stationen werden die BC-Konzentrationen noch unterschätzt. Die aktuellen Emissionen sind fast um den Faktor 4 höher als die ursprünglichen Emissionen, aber immer noch geringer als die CAMS81_RWC-Emissionen, wie sie in der FKZ verwendet werden: 3716 51 203 0.

In Deutschland gibt es strenge Richtlinien für die Verbrennung von Holz. Daher sollten Wohnungsalter und soziale Faktoren eine sehr begrenzte Rolle spielen. Für Melpitz wurde festgestellt, dass die beobachteten EC-Konzentrationen am Freitag und Samstag am höchsten sind. Dies wurde auch in Van Pinxteren et al. (2020) dokumentiert. Bei der Auswertung der lokalen Beiträge in Melpitz wurde ein abendliches Maximum bei PM-Messungen im Herbst und Frühjahr, ein morgendliches Maximum im Winter und ein Maximum bei EC-Messungen am Samstag gefunden. Einer der Gründe könnte die Verwendung von Holz als Sekundärheizung sein. Ein ähnlicher Befund wurde in der vorliegenden Studie für die Station Buch gemacht, wo in den Wochenprofilen der Messungen ein kleines Maximum des eBC am Samstag gefunden wurde. Dies bedeutet, dass Zeitprofile, die nur auf dem Heizbedarf basieren, nicht vollständig repräsentativ sind. Außerdem können die niedrigen Emissionsfaktoren für reale Bedingungen optimistisch sein. In einer Studie von Sturmlechner et al. (2019) wurde gezeigt, dass die Verbrennung in der Praxis nicht immer optimal ist, insbesondere bei der Raumheizung war die Variabilität hoch. Auch die Qualität des Holzes könnte eine Rolle spielen. Es ist schwierig, diese zufälligen und unerwünschten höheren Emissionsfaktoren in einer offiziellen Emissionsinventarberechnung zu berücksichtigen. Diese Unsicherheiten müssen jedoch beim Vergleich von modellierten und gemessenen BC-Konzentrationen mitbetrachtet werden. In den Niederlanden, wo die Holzverbrennung überwiegend in der Freizeit stattfindet, wird eine zusätzliche Informationsquelle zur Holznutzung durch Umfragen gewonnen. Dies, zusätzlich zur Verwendung von Daten von Schornsteinfegern, wie es in Deutschland gemacht wird, könnte ein detaillierteres Bild der Holzverbrennungspraktiken ergeben.

Die Verwendung der generellen Bezeichnung BC für eBC, EC und BC führt zu weiteren Unsicherheiten. Bei der Abschätzung der Emissionen aus der Holzverbrennung wird BC als relevanter Stoff angenommen. Dies kann zu kleinen Unterschieden in der Masse führen, wenn modellierte Ergebnisse mit BC-Emissionen mit EC-Messungen verglichen werden. Bezogen auf die Masse kann diese BC-Masse etwas mehr sein als reiner elementarer Kohlenstoff. Andererseits kann elementarer Kohlenstoff ein Bestandteil von größerem Material sein, wie z. B. in Brems- und Reifenabrieb, der im optisch aktiven Bereich nicht als schwarzer Kohlenstoff gezählt wird. Dies motivierte dazu, niedrigere Emissionsfaktoren für den Reifen- und Bremsenabrieb im Straßenverkehr vorzuschlagen.

Zu guter Letzt gibt es Emissionen, die entweder nicht in den Inventaren enthalten sind oder einen geringen Beitrag zu den Gesamtemissionen leisten, aber zu bestimmten Zeiten lokal einen relevanten Beitrag zu den Konzentrationen leisten. Als Beispiel sei hier das wahrscheinliche Verbrennen von Laub oder Pflanzenresten nach der Ernte genannt, aber auch Brände zu Ostern

oder Weihnachtsmärkten gelten als solche Quellen. Es ist schwierig, diese Emissionen zeitlich und räumlich korrekt darzustellen, so dass man eine vollständige Übereinstimmung der Modellergebnisse mit den Messwerten nicht erwarten darf. Die Emissionen von Waldbränden werden jedoch in das Modell einbezogen, indem das CAMS-Emissionsmodell für Waldbrände verwendet wird (Kaiser et al, 2012).

Modell

Bei der Modellierung von BC als Feinstaubkomponente in Modellen, die auf die Luftqualität ausgerichtet sind, wie z. B. LOTOS-EUROS, wird BC häufig als inerte Substanz behandelt. Das bedeutet, dass keine Unsicherheiten hinzukommen, die z. B. durch chemische Reaktionen mit anderen Stoffen und zugehörige Unsicherheiten in den Emissionen dieser Komponente entstehen. Auf der anderen Seite ist BC besonders empfindlich für Unsicherheiten in den Prozessen Mischung, Transport und Deposition. Viele BC-Quellen sind Oberflächenquellen, so dass BC in der Nähe dieser Quellen starke Gradienten aufweist, was die BC-Konzentration stark von der korrekten Verteilung der Emissionen in Raum und Zeit, der Modellauflösung und der Meteorologie abhängig macht.

Für die Grundlage- und Szenario-Läufe wurde eine fünfschichtige Version von LOTOS-EUROS verwendet. Dies ist seit vielen Jahren die Standardkonfiguration des Modells, das für PM₁₀ und PM_{2,5} an Hintergrundstationen gute Ergebnisse erzielt. LOTOS-EUROS wurde in dieser Konfiguration bereits in mehreren Projekten in Deutschland eingesetzt. Für BC neigt es dazu, die Konzentrationen unter stabilen Bedingungen, die üblicherweise schwer zu erfassen sind (z. B. Stern et al., 2008, wo Modelle typischerweise zu stark verdünnen, indem sie den vertikalen Austausch und die Grenzschichthöhe überbewerten), zu unterschätzen. Dies muss bei der Interpretation der Szenarioergebnisse berücksichtigt werden. Aus diesem Grund wurden die abschließenden Simulationen mit einer Multilayer-Version durchgeführt (siehe z.B. Thuerkow et al, 2020). Durch eine höhere Auflösung in der vertikalen Ebene wurde der vertikale Austausch besser dargestellt. In dieser letzten Simulation wurden die Auswirkungen der vorgeschlagenen Änderungen bei den Emissionen und der verbesserten Meteorologie kombiniert. Für die höchst aufgelöste Simulation wurden auch hochaufgelöste meteorologische Eingangsdaten von COSMO-D2 verwendet, um Unterschiede zwischen Stadt und Umland und Gebieten mit starken Höhenunterschieden (Gebirgsregionen, Rheintal) besser darstellen zu können.

Die Änderungen in der räumlichen Verteilung für den landwirtschaftlichen Verkehr führten aus konzeptionellen Gründen zu einer realistischeren Darstellung. Die Einbeziehung neuer Zeitprofile ist ein innovativer Aspekt der Studie und führt eindeutig zu einer besseren Modellierung der Konzentrationen in ländlichen Gebieten im Frühjahr und Sommer. Der Effekt der damit verbundenen Abnahme der BC-Konzentrationen im Winter wird durch die neuen Verkehrszeitprofile, insbesondere die Kaltstart-Emissionen, ausgeglichen. Dies bedeutet, dass wir in der ursprünglichen Situation kompensierende Fehler hatten. Obwohl der Kennzeichnungsansatz (Labeling) es uns ermöglicht, die beiden beitragenden Sektoren zu unterscheiden, können die Beobachtungen nicht verwendet werden, um sie zu trennen, da sie beide fossile Brennstoffe verwenden und die Messungen mit dem Aethalometer nur fossile Brennstoffe von Biomasse unterscheiden können. Daher ist man auf die Darstellung von Monats-, Wochen- und Tageszyklen angewiesen, um Hinweise auf die korrekte Darstellung der Zeitprofile in den Sektoren zu erhalten. Diese Ergebnisse implizieren, dass es von äußerster Wichtigkeit ist, Korrelationen und Modellabweichungen an verschiedenen Stellen sorgfältig zu

untersuchen, einschließlich eines Kennzeichnungsansatzes, wie hier verfolgt. Dieses Verfahren wird jedoch teilweise durch die Inhomogenität der Messdaten erschwert.

Die Modellvalidierung war in diesem Projekt besonders herausfordernd. Die Daten wurden zwar überwiegend zentral vom Umweltbundesamt bezogen, stammten aber aus unterschiedlichen Messnetzen (Bundesländer, UBA, Kampagne) und wurden mit teilweise unterschiedlichen Methoden erfasst. Der Unterschied bei der Probenahme von PM_{2,5} und PM₁₀ ist gering im Hinblick auf die großen Unsicherheiten, die durch die Verwendung von Standard-MAC-Werten entstehen, wie sie in Bond et al. (2013), Petzold et al. (2013) beschrieben und kürzlich von Pileci et al. (2021) für Europa quantifiziert wurden. Obwohl nur für Berlin korrigierte Daten zur Verfügung standen, führte die Erkenntnis dieser Unsicherheiten zu dem Sensitivitätsexperiment, das darauf hinwies, dass ein Teil der Modellunterschätzungen durch Überschätzungen der beobachteten BC-Konzentrationen aufgrund der Verwendung von Standard-Instrumentenwerten zurückzuführen sein könnte. Obwohl es im Rahmen des Projekts nicht möglich war genauere Schätzungen der beobachteten MAAP- und Aethalometerdaten zu erhalten, veranschaulicht das Problem die Bedeutung einer engen Zusammenarbeit von Experten für Modellierung und Beobachtungen. Umgekehrt kann die Modellierung auch den experimentellen Ansatz zur Ableitung von Konzentrationen und Abtrennung bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe und Biomasse aus Absorptionmessungen unterstützen. Die enge Übereinstimmung zwischen den modellierten und beobachteten Beiträgen der Biomasseverbrennung für Berlin in diesem Bericht gibt sowohl den Modellierungs- als auch den Beobachtungsergebnissen eine solidere Grundlage.

Ein weiteres Problem ist, dass für einige Bundesländer keine Messdaten verfügbar sind. Zumindest für Brandenburg und Berlin, Nordrhein-Westfalen, Rheinland-Pfalz, Thüringen und Sachsen war es trotz der Schwierigkeiten bei der Vergleichbarkeit möglich, die räumliche und zeitliche Variabilität zu betrachten und Muster in den Beiträgen der verschiedenen Sektoren zu erkennen. Man konnte feststellen, dass der Ansatz für die betrachteten Stationen das Verständnis und die Darstellung von BC in Deutschland verbessert. Allerdings muss man vorsichtig sein, wenn man die Ergebnisse auf ganz Deutschland extrapoliert. Berlin wurde als Fallstudie ausführlich analysiert, aber Berlin unterscheidet sich in vielerlei Hinsicht von den großen Städten im südlichen Teil Deutschlands, in denen und deren Umgebung die Holzverbrennung eine wichtigere Rolle spielt. Daher wird empfohlen, das BC-Messnetz zu erweitern oder Messkampagnen für eine bestimmte Stadt (z.B. München, Stuttgart) und ihre Umgebung einzurichten, um die aktuelle BC-Emissionsverteilung und BC-Immissionsbelastung besser zu verifizieren.

12 Schlussfolgerung und Empfehlungen

Emissionen

Als Grundlage werden die Emissionen für Deutschland aus GRETA und für Europa aus CAMS übernommen, wobei für den Hausbrandsektor der wissenschaftlich harmonisierte Ansatz für BC/OC verwendet wird.

Die wichtigsten Sektoren für BC-Emissionen sind Hausbrand, Straßenverkehr (Diesel) und landwirtschaftlicher Verkehr.

- ▶ UBA Deutschland verwendet niedrige Emissionsfaktoren für die Holzverbrennung als Heizung für Wohnhäuser. Es wird vorgeschlagen, den PM_{2,5}-Emissionsfaktor von 77 g/GJ zu erhöhen und 100 g/GJ als Mittelwert für den Zeitraum 2014-2019 zu verwenden, basierend auf Literaturwerten von 50-140 g/GJ in dem Emission Guidebook.
- ▶ Dieser PM_{2.5}-Faktor entspricht PM_{2.5} ohne kondensierbare Gase. Daher sollte für diesen Sektor ein BC-Anteil von 30 % EC verwendet werden. Bisher wurde stattdessen ein Anteil von 10% verwendet, der PM_{2.5} inklusive kondensierbare Gase entsprechen würde.
- ▶ Die räumliche Verteilung der Hausbrandemissionen war aufgrund einiger ungünstiger Gewichtungskombinationen in GRETA zu stark auf Großstädte konzentriert.
- ▶ Der Abrieb von Reifen enthält elementaren Kohlenstoff. Dieser kann aber nicht als BC charakterisiert werden, da das Material in groben Partikeln enthalten ist, die nicht optisch aktiv sind. Daher sinken die Emissionen aus dem Transportsektor von 25% BC auf 0,37% (Reifen) und 2,3% (Bremsen).
- ▶ Die räumliche Verteilung der Emissionen durch den landwirtschaftlichen Verkehr wurde angepasst, wobei landwirtschaftliche Flächen nun maßgebend sind. Dadurch verschieben sich die Emissionen von Gebieten, in denen viele Menschen in der Landwirtschaft tätig sind, zu Gebieten mit Ackerbau.
- ▶ In den Niederlanden wird mit Hilfe von Fragebögen die Menge an Holzabgeschätzt, die für die Verbrennung in Haushalten verwendet wird. Diese Methode könnte als Ergänzung zu den derzeit verwendeten Methoden eingesetzt werden um zum Wissen über regionale Unterschiede der Holzverbrennung in Wohngebieten in Deutschland beizutragen. Dies könnte auch zu einer Verbesserung der deutschen Gesamtemissionen führen.

Modellierung

- ▶ Das Modell ist in der Lage die gemessenen Konzentrationen wiederzugeben, inklusive der Verteilung der Beiträge von Biomasse und fossilem Brennstoff, wenn die Messungen ortsspezifisch harmonisiert sind auf eBC und eine Verfeinerung nach Sandradewi (2008) abgeleitet und angewendet wird.

- ▶ Der Labelling Ansatz ermöglichte es den Einfluss von verschiedenen Quellen und Regionen effektiv zu erforschen.
- ▶ Für EC als inerter Stoff mit stark lokalisierten Quellgebieten (Orte, Straßen) ist der Einfluss von Meteorologie und Modellauflösung auf die Modellergebnisse relativ groß.
- ▶ Genaue räumliche Verteilung der Emissionen sind wesentlich. Durch die räumlichen Änderungen der Emissionen für die Sektoren Hausbrand und Landwirtschaft wurden Verbesserungen in den modellierten Konzentrationen erreicht.
- ▶ Bei mikroskaligen Modellierungen von BC für Bereiche, die nicht durch lokale Verkehrsemissionen dominiert werden bzw. keine hoch belasteten Straßenschluchten darstellen, haben die Hausbrand-Emissionen eine hohe Bedeutung. Die modellierten Konzentrationen hängen stark von der räumlichen Verteilung dieser Emissionen im Modellgebiet ab. Diese ist aber in der Regel nicht bekannt. Selbst bei einem räumlich hoch aufgelösten Emissionskataster von $100 \times 100 \text{ m}^2$, wie es für Berlin vorliegt, hat die räumliche Verteilung der Emissionen auf die Gebäude innerhalb einer Rasterzelle bei einer hochauflösenden Modellierung mit $2 \times 2 \text{ m}^2$ Gitterweite einen großen Einfluss auf die modellierten Konzentrationen, wie beispielsweise in schlecht durchlüfteten Innenhöfen. Da die räumliche Verteilung der Emissionen mangels weiterer Kenntnisse meist nur pauschal quantifiziert, z. B. wie hier über Gebäudevolumina, und ebenfalls nur pauschal verortet, wie hier als Schornstein in der Mitte des Gebäudes, ist, besteht die Gefahr, die in hoher räumlicher Auflösung vorliegenden mikroskaligen Konzentrationsfelder zu überinterpretieren. Die dafür eigentlich erforderliche genaue räumlichen Verteilung der Hausbrandemissionen war in diesem Projekt nicht bekannt.
- ▶ Die genaue Verteilung der Emissionen mit der Zeit ist wesentlich. Heizgradtage wurden schon vom Anfang an verwendet. Weitere Verbesserungen in den modellierten Konzentrationen wurden durch Deutschlandspezifische Verkehrszeitprofile und Berücksichtigung von Kaltstartemissionen für den Personenverkehr gefunden. Auch die Verwendung von saisonalen Profilen, die Aktivitäten in der Landwirtschaft regional differenziert darstellen (düngen, sähen, Ernte nach örtliche Temperatursumme und Pflanzentyp), trägt zu einer Verbesserung bei.
- ▶ Im Herbst gibt es noch einige Episoden, die nicht gut modelliert wurden. Es gibt starke Hinweise dafür dass diese zusammenhängen mit Verbrennung in der Landwirtschaft nach der Ernte in Tschechien. Solche Ereignisse sind nicht mit Zeitprofilen zu erfassen, finden nur in sehr eingeschränkten Episoden statt und sind damit schwierig zu modellieren.
- ▶ Obwohl die Effekte der Emissionsänderung in bestimmten Jahreszeiten und an bestimmten Auswertepunkten (Messstationen) gefunden werden, ist es nicht immer einfach zu bestimmen, ob ein einzelner Schritt eine klare Verbesserung ist, da es kompensierende Fehler gibt (z.B. unrealistische Emissionen von landwirtschaftliches Verkehr im Winter kompensieren teilweise Abwesenheit von Kaltstart Zeitprofile). Die Abdeckung von Deutschland mit Messungen ist nicht gut genug, um dies detailliert zu entwirren.

- Bei der Modellevaluierung sollen die Messungen von unterschiedlichen Datensätzen und Messverfahren getrennt evaluiert werden und die Effekte von Unsicherheiten in den Messungen durch die Benutzung von Standardfaktoren beachtet werden, um zu einer harmonisierten Darstellung zu kommen.

Messungen

- Die für die BC-Messungen aus Aethalometer und MAAP verwendeten MAC-Werte sollten die Metadaten mitaufgenommen werden
- Harmonisierungsfaktoren für AE33, die aus dem Vergleich von AE33 und MAAP abgeleitet wurden, können die Unsicherheiten bei der Ableitung von MAC mit AE33 und die gravimetrische Analyse von Filterproben um einen Faktor 2 reduzieren. Harmonisierte und nicht harmonisierte eBC-Konzentrationen aus AE33 unterscheiden sich weniger, da MAAP und AE33 unterschiedliche MAC bzw. spezifische Absorptionsquerschnitte verwenden.
- Als international akzeptierte Referenzmethode eignet sich der eBC aus EUSAAR/ACTRIS.
- Nicht alle Bundesländer messen BC. Eine Erweiterung des Messnetzes für BC wäre wünschenswert, um die regionalen Unterschiede der BC-Konzentrationen innerhalb Deutschlands genau abzubilden. Insbesondere eine Messkampagne in einer der süddeutschen Städte und ihrer Umgebung (z.B. München, Stuttgart) ist empfehlenswert.
- Die Verwendung des Aethalometermodells zur Abschätzung des Biomasse-Verbrennungsanteils (BB%-Wert) und der eBC_{bb}- und eBC_{fr}-Massenkonzentrationen, muss von Fall zu Fall sorgfältig abgewogen werden. Es wurde ein neues Modell zur Abschätzung der eBC Massenkonzentrationen aus Biomasseverbrennung vorgeschlagen und angewandt. In Vergleich zum Ansatz von Sandradewi (2008) stellte sich heraus, dass die Ergebnisse beider Modelle für eBC_{bb} unterschiedliche Absolutwerte zeigen, aber ähnliche Tendenzen.

Immisionsbelastung Deutschland

- Die Jahresmittelkonzentrationen befinden sich bei 0.2-1.5 µg/m³ mit Höchstwerten im Main-Rheinbereich und den südlichen Großstädten. Für Hintergrundgebiete sind Werte von 0.2-0.8 µg/m³ modelliert. Für stark verkehrsbelastete Standorte (Frankfurter Allee) wird eine Zusatzbelastung von ~0.5 µg/m³ gefunden.
- Maximale Tageswerte werden erreicht im Winter in kalten und stabilen Episoden durch eine Kombination von erhöhten Emissionen für Hausbrand, Kaltstartemissionen und weniger Verdünnung und Transport der lokalen Emissionen. Der maximale Tageswerte befindet sich bei 4 µg/m³ für die Frankfurter Allee, mit Verkehrsbeiträge bis zu 2 µg/m³. In Gebieten mit

einem größeren Beitrag von Holzfeuerung könnten die Tageswerte höher sein. Z.B. hat Mainz Mombach eine maximale Hintergrundkonzentrationen von $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die relevantesten Emissionsquellen sind Verkehr und Hausbrand, wobei Hausbrand im Süden Deutschlands absolut und relativ wichtiger sind. Beide Sektoren können lokal über $0.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ der BC Konzentrationen bestimmen. Landwirtschaftlicher Verkehr trägt viel weniger bei ($0.05 \mu\text{g}/\text{m}^3$), der gesamte nicht-Straßenverkehr trägt bis zu $0.15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei. Schifffahrt kann im Rhein-Ruhr Bereich einen Beitrag von bis zu $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ liefern. Es soll beachtet werden dass die Verteilung der Schifffahrtemissionen in diesem Bericht nicht gezielt betrachtet wurden.

- Die Jahresmittelkonzentrationen sind niedriger als in den Nachbarländern. Der Kontrast zu Polen ist groß. In Polen wird relativ viel mit älteren Herden und Kohle geheizt und der Unterschied ist daher nicht unrealistisch. Die dichtbesiedelten Gebieten lassen sich vergleichen zu den Niederlanden, wo die Konzentrationen leicht höher sind. Der Kontrast in den Grenzbereichen mit Frankreich und Schweiz kann Hinweise auf die relativ niedrige Emissionsfaktoren für Hausbrand für Deutschland geben.

13 Quellenverzeichnis

- 22.BImSchV: Zweiundzwanzigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Immissionswerte für Schadstoffe in der Luft - 22. BImSchV). Aufgehoben von der 39. BImSchV am 2. August 2010, n.d.
39. BImSchV: Neununddreißigste Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes (Verordnung über Luftqualitätsstandards und Emissionshöchstmengen - 39. BImSchV), n.d.
- Aan de Brugh, J. M. J., Schaap, M., Vignati, E., Dentener, F., Kahnert, M., Sofiev, M., Huijnen, V. and Krol, M. C.: The European aerosol budget in 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(3), 1117–1139, doi:10.5194/acp-11-1117-2011, 2011.
- Aerosol d.o.o: Aethalometer Model AE33 User Manual Version 1.57. Magee Scientific., 2018.
- Ajtai, T., Kiss-Albert, G., Utry, N., Tóth, Á., Hoffer, A., Szabó, G. and Bozóki, Z.: Diurnal variation of aethalometer correction factors and optical absorption assessment of nucleation events using multi-wavelength photoacoustic spectroscopy, *J. Environ. Sci. (China)*, 83, 96–109, doi:10.1016/j.jes.2019.01.022, 2019.
- Amato, F., Alastuey, A., Karanasiou, A., Lucarelli, F., Nava, S., Calzolari, G., Severi, M., Becagli, S., Gianelle, V. L., Colombi, C., Alves, C., Custódio, D., Nunes, T., Cerqueira, M., Pio, C., Eleftheriadis, K., Diapouli, E., Reche, C., Minguillón, M. C., Manousakas, M.-I., Maggos, T., Vratolis, S., Harrison, R. M. and Querol, X.: AIRUSE-LIFE+: a harmonized PM speciation and source apportionment in five southern European cities, *Atmos. Chem. Phys.*, 16(5), 3289–3309, doi:10.5194/acp-16-3289-2016, 2016.
- Amann, M., Measures to address air pollution from agricultural sources. IIASA, 2017
- Amann, M.: Integrated assessment tools: The Greenhouse and Air Pollution Interactions and Synergies (GAINS) model, in: *Atmospheric Pollution and Climate Change: How to address both challenges effectively together?*, 73–76, 2009
- AVISO; IE, 2016: Erstellung der Berliner Emissionskataster Industrie, Gebäudeheizung, sonstiger Verkehr, Kleingewerbe, sonstige Quellen, Baustellen. AVISO GmbH; Aachen; Leipziger Institut für Energie (IE). Auftraggeber: Senatsverwaltung für Stadtentwicklung und Umwelt Berlin. 2016.
- BAFU: BC-Immissionen Schweiz. Modellierung 2010 und 2020. Auftraggeber: Schweizer Bundesamt für Umwelt (BAFU). Erarbeitet durch INFRAS & Meteotest., 2014.
- Banzhaf, S., Schaap, M., Kerschbaumer, A., Reimer, E., Stern, R., Van Der Swaluw, E. and Builtjes, P.: Implementation and evaluation of pH-dependent cloud chemistry and wetdeposition in the chemical transport model REM-Calgrid, *Atmos. Environ.*, 49, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.10.069, 2012.
- Bessagnet, B., Pirovano, G., Mircea, M., Cuvelier, C., Aulinger, A., Calori, G., Ciarelli, G., Manders, A., Stern, R., Tsyro, S., García Vivanco, M., Thunis, P., Pay, M.-T., Colette, A., Couvidat, F., Meleux, F., Rouil, L., Ung, A., Aksoyoglu, S., Baldasano, J. M., Bieser, J., Briganti, G., Cappelletti, A., D'Isidoro, M., Finardi, S., Kranenburg, R., Silibello, C., Carnevale, C., Aas, W., Dupont, J.-C., Fagerli, H., Gonzalez, L., Menut, L., Prévôt, A. S. H., Roberts, P. and White, L.: Presentation of the EURODELTA III intercomparison exercise – evaluation of the chemistry transport models' performance on criteria pollutants and joint analysis with meteorology, *Atmos. Chem. Phys.*, 16(19), 12667–12701, doi:10.5194/acp-16-12667-2016, 2016.
- Bond, T. C., Streets, D. G., Yarber, K. F. and Nelson, S. M.: A technology based inventory of black and organic carbon emissions from combustion, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 108(D21)

- [online] Available from:
https://www.researchgate.net/publication/221702876_A_technology_based_inventory_of_black_and_organic_carbon_emissions_from_combustion (Accessed 28 October 2018), 2004.
- Bond, T. C., Doherty, S. J., Fahey, D. W., Forster, P. M., Berntsen, T., DeAngelo, B. J., Flanner, M. G., Ghan, S., Kärcher, B., Koch, D., Kinne, S., Kondo, Y., Quinn, P. K., Sarofim, M. C., Schultz, M. G., Schulz, M., Venkataraman, C., Zhang, H., Zhang, S., Bellouin, N., Guttikunda, S. K., Hopke, P. K., Jacobson, M. Z., Kaiser, J. W., Klimont, Z., Lohmann, U., Schwarz, J. P., Shindell, D., Storelvmo, T., Warren, S. G. and Zender, C. S.: Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118(11), 5380–5552, doi:10.1002/jgrd.50171, 2013.
- Boucher, O., Randall, D., Artaxo, P., Bretherton, C., Feingold, G., Forster, P., Kerminen, V.-M., Kondo, Y., Liao, H., Lohmann, U., Rasch, P., Satheesh, S. K., Sherwood, S., Stevens, B. and Zhang, X. Y.: Clouds and Aerosols, in *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by V. B. and P. M. M. Stocker, T.F., D. QStocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley in, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, pp. 571–658, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA., 2013.
- Brasseur, O., Declerck, P., Heene, B. and Vanderstraeten, P.: Modelling Black Carbon concentrations in two busy street canyons in Brussels using CANSBC, *Atmos. Environ.*, 101, 72–81, doi:https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.10.049, 2015.
- Cavalli, F., Viana, M., Yttri, K. E., Genberg, J., and Putaud, J. P.: Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol, *Atmos. Meas. Techn.*, 3, 79–89, doi: DOI 10.5194/amt-3-79-2010, 2010.
- Chen, Y., Cheng, Y.-F., Nordmann, S., Birmili, W., Denier van der Gon, H. A. C., Ma, N., Wolke, R., Wehner, B., Sun, J., Spindler, G., Mu, Q., Pöschl, U., Su, H. and Wiedensohler, A.: Evaluation of the size segregation of elemental carbon (EC) emission in Europe: influence on the simulation of EC long-range transportation, *Atmos. Chem. Phys.*, 16(3), 1823–1835, doi:10.5194/acp-16-1823-2016, 2016.
- CLC 2006 CORINE land cover 2006 raster data , <http://www.eea.europa.eu/data-and-maps/data/corine-land-cover-2006-raster-2>
- Clemen, S., Tang, C., Kerschbaumer, A., Grunow, K. and Kaupp, H.: Quantifizierung des Holzverbrennungsbeitrages zu PM 10 in Berlin mit einem automatischen Messverfahren, *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 78(5), 215–222, 2018.
- Collaud Coen, M., Weingartner, E., Apituley, A., Ceburnis, D., Fierz-Schmidhauser, R., Flentje, H., Henzing, J. S., Jennings, S. G., Moerman, M., Petzold, A., Schmid, O. and Baltensperger, U.: Minimizing light absorption measurement artifacts of the Aethalometer: Evaluation of five correction algorithms, *Atmos. Meas. Tech.*, 3(2), 457–474, doi:10.5194/amt-3-457-2010, 2010.
- Cuesta-Mosquera, A., Močnik, G., Drinovec, L., Müller, T., Pfeifer, S., Minguillón, M. C., Björn, B., Buckley, P., Dudoitis, V., Fernández-García, J., Fernández-Amado, M., Ferreira De Brito, J., Flentje, H., Heffernan, E., Kalivitis, N., Kalogridis, A.-C., Keernik, H., Marmureanu, L., Luoma, K., Marinoni, A., Pikridas, M., Schauer, G., Serfozo, N., Servomaa, H., Titos, G., Yus-Díez, J., Zioła, N. and Wiedensohler, A.: Intercomparison and characterization of 23 Aethalometers under laboratory and ambient air conditions: Procedures and unit-to-unit variabilities, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, (August), 1–34, doi:10.5194/amt-2020-344, 2020a.

- Cuesta-Mosquera, A., Müller, T., Tuch, T. and Wiedensohler, A.: Investigation of the residential biomass burning aerosol particles input and optical properties in a rural site in Germany, 2020b.
- Denier Van Der Gon, H. A. C., Bergström, R., Fountoukis, C., Johansson, C., Pandis, S. N., Simpson, D. and Visschedijk, A. J. H.: Particulate emissions from residential wood combustion in Europe - revised estimates and an evaluation, *Atmos. Chem. Phys.*, doi:10.5194/acp-15-6503-2015, 2015.
- DIN EN ISO 16909: Außenluft - Messung von auf Filtern abgeschiedenem elementarem Kohlenstoff (EC) und organisch gebundenem Kohlenstoff (OC), Berlin, Beuth-Verlag, 2017.
- Drinovec, L., Močnik, G., Zotter, P., Prévôt, A. S. H., Ruckstuhl, C., Coz, E., Rupakheti, M., Sciare, J., Müller, T., Wiedensohler, A. and Hansen, A. D. A.: The "dual-spot" Aethalometer: an improved measurement of aerosol black carbon with real-time loading compensation, *Atmos. Meas. Tech.*, 8(5), 1965–1979, doi:10.5194/amt-8-1965-2015, 2015.
- Drinovec, L., Gregoric, A., Zotter, P., Wolf, R., Anne Bruns, E., Bruns, E. A., Prevot, A. S. H., Favez, O., Sciare, J., Arnold, I. J., Chakrabarty, R. K., Moosmüller, H., Filep, A. and Mocnik, G.: The filter-loading effect by ambient aerosols in filter absorption photometers depends on the coating of the sampled particles, *Atmos. Meas. Tech.*, 10(3), 1043–1059, doi:10.5194/amt-10-1043-2017, 2017.
- EMEP: EMEP/MSC-W model performance for acidifying and eutrophying components, photo-oxidants and particulate matter in 2014, Supplementary material to the EMEP Status Report 1/2016, http://emep.int/publ/reports/2016/sup_Status_Report_1_2016.pdf. [online] Available from: http://emep.int/publ/reports/2016/sup_Status_Report_1_2016.pdf, 2016.
- EMEP/EEA air pollutant emission inventory guidebook. 1.A.3.b.i, 1.A.3.b.ii, 1.A.3.b.iii, 1.A.3.b.iv Passenger cars, light commercial trucks, heavy-duty vehicles including buses and motor cycles 2016 – Update Jul. 2018
- Friedrich, U. and Schierbaum, I.: Vergleich Immissionsmessung - Immissionsberechnung für 14 verkehrsnahen Meßpunkte im Land Brandenburg., *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, Nr. 57, 55–59, 1997.
- Garg, S., Chandra, B. P., Sinha, V., Sarda-Esteve, R., Gros, V. and Sinha, B.: Limitation of the Use of the Absorption Angstrom Exponent for Source Apportionment of Equivalent Black Carbon: a Case Study from the North West Indo-Gangetic Plain, *Environ. Sci. Technol.*, 50(2), 814–824, doi:10.1021/acs.est.5b03868, 2016.
- Genberg, J., Denier van der Gon, H. A. C., Simpson, D., Swietlicki, E., Areskoug, H., Beddows, D., Ceburnis, D., Fiebig, M., Hansson, H. C., Harrison, R. M., Jennings, S. G., Saarikoski, S., Spindler, G., Visschedijk, A. J. H., Wiedensohler, A., Yttri, K. E. and Bergström, R.: Light-absorbing carbon in Europe - measurement and modelling, with a focus on residential wood combustion emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(17), 8719–8738, doi:10.5194/acp-13-8719-2013, 2013.
- Hendriks, C., Kranenburg, R., Kuenen, J. J. P. 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, *Atmos. Environ.*, 131, 83–96, doi:10.1016/j.atmosenv.2016.01.043, 2016.
- IASS: Black Carbon in Europe: Targeting an Air Pollutant and Climate Forcer | Climate & Clean Air Coalition. [online] Available from: <http://www.ccacoalition.org/en/resources/black->

- carbon-europe-targeting-air-pollutant-and-climate-forcer (Accessed 12 October 2018), 2017.
- Ifeu and INFRAS: Aktualisierung der Emissionsberechnung für die Binnenschifffahrt und Übertragung der Daten in TREMOD. FKZ 3711 45 105. ifeu Heidelberg GmbH; INFRAS AG, Bern. Auftraggeber: Umweltbundesamt., 2013.
- INFRAS, 2019: Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs. HBEFA Version 4.1. Hrsg.: INFRAS Bern im Auftrag von Umweltbundesamt (Deutschland), BAFU (Schweiz), Umweltbundesamt (Österreich), ADEME (Frankreich), Trafikverket (Schweden), Miljødirektoratet (Norwegen) und JRC (Joint Research Center der Europäischen Kommission).
- IVU: Untersuchung zur Belastung der Münchener Hauptverkehrsstraßen durch Ruß-, Benzol- und NO₂-Immissionen. Auftraggeber: Bayerisches Landesamt für Umweltschutz und Landeshauptstadt München, Umweltreferat., 1996.
- IVU: Das Modellinstrumentarium IMMISnet/cpb zur immissionsseitigen Bewertung von Kfz-Emissionen im Rahmen der 23. BImSchV. In: UBA; FGU (Hrsg.): Verkehrsbedingte Belastungen durch Benzol, Dieselruß und Stickoxide in städtischen Straßenräumen. 23. BImSchV se, 1997a.
- IVU: Modellrechnung zur Abschätzung der Immissionsbelastung von NO₂, Benzol und Ruß an Hauptverkehrsstraßen in Hamburg. Auftraggeber: Hansestadt Hamburg, Amt für Umweltschutz., 1997b.
- IVU Umwelt: Untersuchung des Potentials und der Umsetzbarkeit von Maßnahmen und der damit erzielbaren Minderung der Feinstaub (PM₁₀)- und Stickoxidemission in Berlin. Auftraggeber: Senatsverwaltung für Stadtentwicklung Berlin., 2005.
- IVU Umwelt, 2017: Urbane NO₂- und PM₁₀-Konzentrationen: Grundlagen für die Entwicklung einer modellgestützten flächenbezogenen Beurteilung der Luftqualität. FKZ 3715 51 200 0. Veröffentlichung UBA-Texte 68/2019. Unter Mitarbeit von Dr. Rainer Stern, Berlin und Dr. Eberhard Reimer, Berlin. Im Auftrag des Umweltbundesamtes.
- IVU Umwelt, 2020: IMMIS^{em/luft/lärm} - Handbuch zur Version 8. IVU Umwelt GmbH, Freiburg. 2020.
- Juhrich, K.: Energieverbrauchsdaten im Wohn- und Gewerbebereich; Daten zur Verfügung gestellt von Frau Kristina Juhrich, Section V 1.6 Emissions Situation, Umweltbundesamt, 2021
- Kaiser, J. W., A. Heil, M. O. Andreae, A. Benedetti, N. Chubarova, L. Jones, J.-J. Morcrette, M. Razinger, M. G. Schultz, M. Suttie, and G. R. van der Werf (2012). "Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power". *Biogeosciences* 9.1, pp. 527–554. DOI: 10.5194/bg-9-527-2012
- Karl, M., Kukkonen, J., Keuken, M. P., Lützenkirchen, S., Pirjola, L. and Hussein, T.: Modeling and measurements of urban aerosol processes on the neighborhood scale in Rotterdam, Oslo and Helsinki, *Atmos. Chem. Phys.*, 16(8), 4817–4835, doi:10.5194/acp-16-4817-2016, 2016.
- Ketzel, M. and Berkowicz, R.: Modelling the fate of ultrafine particles from exhaust pipe to rural background: an analysis of time scales for dilution, coagulation and deposition, *Atmos. Environ.*, 38(17), 2639–2652, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.02.020, 2004.
- Keuken, M., Zandveld, P., Jonkers, S., Moerman, M., Jedynska, A., Verbeek, R., Visschedijk, A., Elshout van den, S.; Panteliadis, P. and Velders, G.: Modelling elemental carbon at regional, urban and traffic locations in The Netherlands, *Atmos. Environ.*, 73, 73–80, 2013.

- Keuken, M. P., Wilmlink, I., Tromp, P. and Kluizenaar, Y.: Emission, dispersion and health effects of ultrafine particles from road traffic (in Dutch), TNO-034-UT-2009-00308 RPT-ML., 2009.
- Keuken, M. P., Moerman, M., Zandveld, P., Henzing, J. S. and Hoek, G.: Total and size-resolved particle number and black carbon concentrations in urban areas near Schiphol airport (the Netherlands), *Atmos. Environ.*, 104, 132–142, doi:<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.01.015>, 2015a.
- Keuken, M. P., Moerman, M., Zandveld, P. and Henzing, J. S.: Total and size-resolved particle number and black carbon concentrations near an industrial area, *Atmos. Environ.*, 122, 196–205, doi:<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.09.047>, 2015b.
- Klimont, Z., Kupiainen, K., Heyes, C., Purohit, P., Cofala, J., Rafaj, P., Borken-Kleefeld, J. and Schöpp, W.: Global anthropogenic emissions of particulate matter including black carbon, *Atmos. Chem. Phys.*, 17(14), 8681–8723, doi:10.5194/acp-17-8681-2017, 2017.
- Kranenburg, R., Segers, A. J. J., Hendriks, C. and Schaap, M.: Source apportionment using LOTOS-EUROS: module description and evaluation, *Geosci. Model Dev.*, 6(3), 721–733, doi:10.5194/gmd-6-721-2013, 2013.
- Kokkola, H., Kühn, T., Laakso, A., Bergman, T., Lehtinen, K. E. J., Mielonen, T., Arola, A., Stadtler, S., Korhonen, H., Ferrachat, S., Lohmann, U., Neubauer, D., Tegen, I., Siegenthaler-Le Drian, C., Schultz, M. G., Bey, I., Stier, P., Daskalakis, N., Heald, C. L., and Romakkaniemi, S.: SALSA2.0: The sectional aerosol module of the aerosol–chemistry–climate model ECHAM6.3.0-HAM2.3-MOZ1.0, *Geosci. Model Dev.*, 11, 3833–3863, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-3833-2018>, 2018.
- KRdL: Umweltmeteorologie - Kfz-Emissionsbestimmung - Luftbeimengungen. VDI-Richtlinie 3782 Blatt 7. VDI/DIN-Kommission Reinhaltung der Luft (KRdL) - Normenausschuss. Düsseldorf, 2003.
- KRdL: Umweltmeteorologie - Kfz-Emissionsbestimmung - Luftbeimengungen. VDI-Richtlinie 3782 Blatt 7 - Entwurf. VDI/DIN-Kommission Reinhaltung der Luft (KRdL) - Normenausschuss. Düsseldorf, 2018.
- Kuenen, J. J. P., Visschedijk, A. J. H., Jozwicka, M. and Denier van der Gon, H. A. C.: TNO-MACC_II emission inventory; a multi-year (2003–2009) consistent high-resolution European emission inventory for air quality modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(20), 10963–10976, doi:10.5194/acp-14-10963-2014, 2014.
- Kukkonen, J., Karl, M., Keuken, M. P., Denier van der Gon, H. A. C., Denby, B. R., Singh, V., Douros, J., Manders, A., Samaras, Z., Moussiopoulou, N., Jonkers, S., Aarnio, M., Karppinen, A., Kangas, L., Lützenkirchen, S., Petäjä, T., Vouitsis, I. and Sokhi, R. S.: Modelling the dispersion of particle numbers in five European cities, *Geosci. Model Dev.*, 9(2), 451–478, doi:10.5194/gmd-9-451-2016, 2016.
- Kulmala, M., Asmi, A., Lappalainen, H. K., Baltensperger, U., Brenguier, J.-L., Facchini, M. C., Hansson, H.-C., Hov, Ø., O’Dowd, C. D., Pöschl, U., Wiedensohler, A., Boers, R., Boucher, O., de Leeuw, G., Denier van der Gon, H. A. C., Feichter, J., Krejci, R., Laj, P., Lihavainen, H., Lohmann, U., McFiggans, G., Mentel, T., Pilinis, C., Riipinen, I., Schulz, M., Stohl, A., Swietlicki, E., Vignati, E., Alves, C., Amann, M., Ammann, M., Arabas, S., Artaxo, P., Baars, H., Beddows, D. C. S., Bergström, R., Beukes, J. P., Bilde, M., Burkhardt, J. F., Canonaco, F., Clegg, S. L., Coe, H., Crumeyrolle, S., D’Anna, B., Decesari, S., Gilardoni, S., Fischer, M., Fjaeraa, A. M., Fountoukis, C., George, C., Gomes, L., Halloran, P., Hamburger, T., Harrison, R. M., Herrmann, H., Hoffmann, T., Hoose, C., Hu, M., Hyvärinen, A., Hörrak, U., Iinuma, Y., Iversen, T., Josipovic, M., Kanakidou, M., Kiendler-Scharr, A., Kirkevåg, A., Kiss,

- G., Klimont, Z., Kolmonen, P., Komppula, M., Kristjánsson, J.-E., Laakso, L., Laaksonen, A., Labonnote, L., Lanz, V. A., Lehtinen, K. E. J., Rizzo, L. V., Makkonen, R., Manninen, H. E., McMeeking, G., Merikanto, J., Minikin, A., Mirme, S., Morgan, W. T., Nemitz, E., O'Donnell, D., Panwar, T. S., Pawlowska, H., Petzold, A., Pienaar, J. J., Pio, C., Plass-Duelmer, C., Prévôt, A. S. H., Pryor, S., Reddington, C. L., Roberts, G., Rosenfeld, D., Schwarz, J., Seland, Ø., et al.: General overview: European Integrated project on Aerosol Cloud Climate and Air Quality interactions (EUCAARI) – integrating aerosol research from nano to global scales, *Atmos. Chem. Phys.*, 11(24), 13061–13143, doi:10.5194/acp-11-13061-2011, 2011.
- Kumar, P., Ketzel, M., Vardoulakis, S., Pirjola, L. and Britter, R.: Dynamics and dispersion modelling of nanoparticles from road traffic in the urban atmospheric environment—A review, *J. Aerosol Sci.*, 42(9), 580–603, doi:https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2011.06.001, 2011.
- Langmann, B., Varghese, S., Marmer, E., Vignati, E., Wilson, J., Stier, P. and O'Dowd, C.: Aerosol distribution over Europe: a model evaluation study with detailed aerosol microphysics, *Atmos. Chem. Phys.*, 8(6), 1591–1607, doi:10.5194/acp-8-1591-2008, 2008.
- Lefebvre, W., Vercauteren, J., Schrooten, L., Janssen, S., Degraeuwe, B., Maenhaut, W., de Vlieger, I., Vankerkom, J., Cossemans, G., Mensink, C., Veldeman, N., Deutsch, F., Van Looy, S., Peelaerts, W. and Lefebvre, F.: Validation of the MIMOSA-AURORA-IFDM model chain for policy support: Modeling concentrations of elemental carbon in Flanders, *Atmos. Environ.*, 45(37), 6705–6713, doi:https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.08.033, 2011.
- Ligterink, N. E.: Elemental carbon emission factors of vehicles for Dutch air-quality assessments, TNO-report R11689., 2017.
- Lorentz, H.; Hellebrandt, P.; Ketzel, M.; Jakobs, H.; Janicke, U., 2020: Einfluss eines Großflughafens auf zeitliche und räumliche Verteilungen der Außenluft-konzentrationen von Ultrafeinstaub < 100 nm, um die potentielle Belastung in der Nähe zu beschreiben - unter Einbeziehung weiterer Luftschadstoffe (Ruß, Stickoxide und Feinstaub (PM_{2,5} und PM₁₀)). FKZ 3716 52 200 0. Im Auftrag des Umweltbundesamts, 2020.
- Magee Scientific: Aethalometer® Model AE33 User Manual, , (ver. 1.57), 149 [online] Available from: www.aerosol.eu, 2018
- Manders, A. M. M., Builtjes, P. J. H., Curier, L., Gon, H. A. C. D. V., 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. V., Sauter, F. J., Van Der Swaluw, E., Swart, D. P. J., Douros, J., Eskes, H., Van Meijgaard, E., Van Ulft, B., Van Velthoven, P., Banzhaf, S., Mues, A. C., Stern, R., Fu, G., Lu, S., Heemink, A., Van Velzen, N. and Schaap, M.: Curriculum vitae of the LOTOS-EUROS (v2.0) chemistry transport model, *Geosci. Model Dev.*, 10(11), doi:10.5194/gmd-10-4145-2017, 2017a.
- Manders, A. M. M., Builtjes, P. J. H., Curier, L., Denier van der Gon, H. A. C., Hendriks, C., Jonkers, S., Kranenburg, R., Kuenen, J., Segers, A. J., Timmermans, R. M. A., Visschedijk, A., Wichink Kruit, R. J., Van Pul, W. A. J., Sauter, F. J., van der Swaluw, E., Swart, D. P. J., Douros, J., Eskes, H., van Meijgaard, E., van Ulft, B., van Velthoven, P., Banzhaf, S., Mues, A., Stern, R., Fu, G., Lu, S., Heemink, A., van Velzen, N. and Schaap, M.: Curriculum Vitae of the LOTOS-EUROS (v2.0) chemistry transport model, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, 1–53, doi:10.5194/gmd-2017-88, 2017b.
- Mantau, U. and Sörgel, C.: Energieholzverwendung in privaten Haushalten, Marktvolumen und verwendete Holzsortimente –Abschlußbericht, Zentrum Holzwirtschaft, Universität Hamburg, Hamburg, 2006

- Martinsson, J., Abdul Azeem, H., Sporre, M. K., Bergström, R., Ahlberg, E., Öström, E., Kristensson, A., Swietlicki, E. and Eriksson Stenström, K.: Carbonaceous aerosol source apportionment using the Aethalometer model-evaluation by radiocarbon and levoglucosan analysis at a rural background site in southern Sweden, *Atmos. Chem. Phys.*, 17(6), 4265–4281, doi:10.5194/acp-17-4265-2017, 2017.
- Meroni, A., Pirovano, G., Gilardoni, S., Lonati, G., Colombi, C., Gianelle, V., Paglione, M., Poluzzi, V., Riva, G. M. and Toppetti, A.: Investigating the role of chemical and physical processes on organic aerosol modelling with CAMx in the Po Valley during a winter episode, *Atmos. Environ.*, 171, 126–142, doi:10.1016/j.atmosenv.2017.10.004, 2017.
- Milford, C., Fernández-Camacho, R., Sánchez de la Campa, A. M., Rodríguez, S., Castell, N., Marrero, C., Bustos, J. J., de la Rosa, J. D. and Stein, A. F.: Black Carbon aerosol measurements and simulation in two cities in south-west Spain, *Atmos. Environ.*, 126, 55–65, doi:https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.11.026, 2016.
- MLuS: Merkblatt über Luftverunreinigungen an Straßen ohne oder mit lockerer Randbebauung (MLuS) 02. Forschungsgesellschaft für Straßen- und Verkehrswesen e.V. (FGSV), 2002.
- MLuS: Merkblatt über Luftverunreinigungen an Straßen ohne oder mit lockerer Randbebauung (MLuS) 02. Geänderte Fassung 2005. Forschungsgesellschaft für Straßen- und Verkehrswesen e.V. (FGSV), 2005.
- Mues, A., Manders, A., Schaap, M., Kerschbaumer, A., Stern, R. and Builtjes, P.: Impact of the extreme meteorological conditions during the summer 2003 in Europe on particulate matter concentrations, *Atmos. Environ.*, 55, 377–391, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.03.002, 2012.
- Mues, A., Kuenen, J., Hendriks, C., Manders, A., Segers, A., Scholz, Y., Hueglin, C., Builtjes, P. and Schaap, M.: Sensitivity of air pollution simulations with LOTOS-EUROS to the temporal distribution of anthropogenic emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(2), 939–955, doi:10.5194/acp-14-939-2014, 2014.
- Myhre, G., Shindell, D., Bréon, F.-M., Collins, W., Fuglestad, J., Huang, J., Koch, D., Lamarque, J.-F., Lee, D., Mendoza, B., Nakajima, T., Robock, A., Stephens, G., Takemura, T. and Zhang, H.: Anthropogenic and Natural Radiative Forcing, in *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by V. B. and P. M. M. Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013.
- Nikolova, I., Janssen, S., Vos, P. V. and Berghmans, P.: Modelling the Mixing of Size Resolved Traffic Induced and Background Ultrafine Particles from an Urban Street Canyon to Adjacent Backyards, *Aerosol Air Qual. Res.*, 14(1), 145–155, doi:10.4209/aaqr.2013.06.0221, 2014.
- Nitzsche, E., Moldenhauer, A. and Düring, I.: Abschnitt Mittelrhein bei Köln/Bonn. Berechnungen der Luftschadstoffimmissionen von Binnenschiffen an Schifffahrtswegen. Kurzbericht. Auftraggeber: Bundesanstalt für Gewässerkunde., 2015a.
- Nitzsche, E., Moldenhauer, A. and Düring, I.: Abschnitt Niederrhein bei Wesel. Berechnungen der Luftschadstoffimmissionen von Binnenschiffen an Schifffahrtswegen. Kurzbericht. Auftraggeber: Bundesanstalt für Gewässerkunde., 2015b.
- Nitzsche, E., Moldenhauer, A. and Düring, I.: Abschnitt Oberrhein südlich Karlsruhe. Berechnungen der Luftschadstoffimmissionen von Binnenschiffen an Schifffahrtswegen. Kurzbericht. Auftraggeber: Bundesanstalt für Gewässerkunde., 2015c.

- Nitzsche, E., Moldenhauer, A. and Düring, I.: Abschnitt Spree, Berlin. Berechnungen der Luftschadstoffimmissionen von Binnenschiffen an Schifffahrtswegen. Kurzbericht. Auftraggeber: Bundesanstalt für Gewässerkunde., 2015d.
- Nordmann, S., Cheng, Y. F., Carmichael, G. R., Yu, M., Denier van der Gon, H. A. C., Zhang, Q., Saide, P. E., Pöschl, U., Su, H., Birmili, W. and Wiedensohler, A.: Atmospheric black carbon and warming effects influenced by the source and absorption enhancement in central Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 14(23), 12683–12699, doi:10.5194/acp-14-12683-2014, 2014.
- Nussbaumer, T., Czasch, C., Klippel, N., Johansson, L. and Tullin, C.: Particulate Emissions from Biomass Combustion in IEA Countries, Survey on Measurements and Emission Factors, International Energy Agency (IEA), Bioenergy Task 32, Zurich., 2008.
- Petzold, A. and Schönlinner, M.: Multi-angle absorption photometry—a new method for the measurement of aerosol light absorption and atmospheric black carbon, *J. Aerosol Sci.*, 35(4), 421–441, doi:10.1016/j.jaerosci.2003.09.005, 2004.
- Petzold, A., Ogren, J. A., Fiebig, M., Laj, P., Li, S.-M., Baltensperger, U., Holzer-Popp, T., Kinne, S., Pappalardo, G., Sugimoto, N., Wehrli, C., Wiedensohler, A., and Zhang, X.-Y.: Recommendations for reporting "black carbon" measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8365–8379, <https://doi.org/10.5194/acp-13-8365-2013>, 2013
- Pileci, R. E., Modini, R. L., Bertò, M., Yuan, J., Corbin, J. C., Marinoni, A., Henzing, B., Moerman, M. M., Putaud, J. P., Spindler, G., Wehner, B., Müller, T., Tuch, T., Trentini, A., Zanatta, M., Baltensperger, U., and Gysel-Beer, M.: Comparison of co-located refractory black carbon (rBC) and elemental carbon (EC) mass concentration measurements during field campaigns at several European sites, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 1379–1403, <https://doi.org/10.5194/amt-14-1379-2021>, 2021.
- Prank, M., Sofiev, M., Tsyro, S., Hendriks, C., Semeena, V., Vazhappilly Francis, X., Butler, T., Denier van der Gon, H., Friedrich, R., Hendricks, J., Kong, X., Lawrence, M., Righi, M., Samaras, Z., Sausen, R., Kukkonen, J. and Sokhi, R.: Evaluation of the performance of four chemical transport models in predicting the aerosol chemical composition in Europe in 2005, *Atmos. Chem. Phys.*, 16(10), 6041–6070, doi:10.5194/acp-16-6041-2016, 2016.
- Rauterberg-Wulff, A.: Beitrag des Reifen- und Bremsabriebs zur Rußimmission an Straßen. Fortschrittsberichte VDI, Reihe 15: Umwelttechnik, Nr. 202., 1998.
- Reddington, C. L., McMeeking, G., Mann, G. W., Coe, H., Frontoso, M. G., Liu, D., Flynn, M., Spracklen, D. V. and Carslaw, K. S.: The mass and number size distributions of black carbon aerosol over Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 13(9), 4917–4939, doi:10.5194/acp-13-4917-2013, 2013
- Roemer, M., M. Beekmann, R. Bergström, G. Boersen, H. Feldmann, F. Flatøy, C. Honore, J. Langner, J.E. Jonson, J. Matthijsen, M. Memmesheimer, D. Simpson, P. Smeets, S. Solberg, R. Stern, D. Stevenson, P. Zandveld, and Zlatev Z (2003). "Ozone trends according to ten dispersion models". In: Eurotrac report, Eurotrac-ISS. Garmisch-Partenkirchen, Germany.
- Russell, P. B., Bergstrom, R. W., Shinozuka, Y., Clarke, A. D., Decarlo, P. F., Jimenez, J. L., Livingston, J. M., Redemann, J., Dubovik, O. and Strawa, A.: Absorption Angstrom Exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 10(3), 1155–1169, doi:10.5194/acp-10-1155-2010, 2010.
- Sandradewi, J., Prévôt, A. S. H., Szidat, S., Perron, N., Alfarra, M. R., Lanz, V. A., Weingartner, E. and Baltensperger, U.: Using Aerosol Light Absorption Measurements for the Quantitative Determination of Wood Burning and Traffic Emission Contributions to Particulate Matter, *Environ. Sci. Technol.*, 42(9), 3316–3323, doi:10.1021/es702253m, 2008.

- Schaap, M., Denier Van Der Gon, H. A. C., Dentener, F. J., Visschedijk, A. J. H., Van Loon, M., ten Brink, H. M., Putaud, J. P., Guillaume, B., Liousse, C. and Builtjes, P. J. H.: Anthropogenic black carbon and fine aerosol distribution over Europe, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 109(18), doi:10.1029/2003JD004330, 2004.
- Schaap, M., Kranenburg, R., Curier, L., Jozwicka, M., Dammers, E. and Timmermans, R.: Assessing the sensitivity of the OMI-NO₂ product to emission changes across Europe, *Remote Sens.*, 5(9), 4187–4208, doi:10.3390/rs5094187, 2013.
- Schauer, J. J., Lough, G. C., Shafer, M. M., Christensen, W. F., Arndt, M. F., DeMinter, J. T. and Park, J.-S.: Characterization of metals emitted from motor vehicles., *Res. Rep. Health. Eff. Inst.*, (133), 1–76; discussion 77–88 [online] Available from: <http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/16669575> (Accessed 4 October 2019), 2006.
- Senat Berlin, 2019: Luftreinhalteplan für Berlin. 2. Fortschreibung. Senatsverwaltung für Umwelt, Verkehr und Klimaschutz Berlin. In Zusammenarbeit mit IVU Umwelt GmbH, Freiburg. 2019.
- Senat Berlin: Luftgütemessdaten, Jahresbericht 2019, Senatsverwaltung für Umwelt, Verkehr und Klimaschutz Berlin 2020.
- Simpson, D., Yttri, K. E., Klimont, Z., Kupiainen, K., Caseiro, A., Gelencsér, A., Pio, C. A., Puxbaum, H. and Legrand, M.: Modeling carbonaceous aerosol over Europe: Analysis of the CARBOSOL and EMEP EC/OC campaigns, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 112(23), doi:10.1029/2006JD008158, 2007.
- Staps, J. and Ligterink, N.E. : Diesel Particle Filters, TNO report 2018 R11468, TNO, 2018
- Stein, A.F., Draxler, R.R., Rolph, G.D., Stunder, B.J.B., Cohen, M.D., and Ngan, F., NOAA's HYSPLIT atmospheric transport and dispersion modeling system, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 96, 2059–2077, <http://dx.doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1>, 2015.
- Stern, R.: Ausbreitungsmodelle für Immissionsberechnungen nach § 40 Abs. 2 BImSchG. In: UBA; FGU (Hrsg.): Verkehrsbedingte Belastungen durch Benzol, Dieselruß und Stickoxide in städtischen Straßenräumen. 23. BImSchV seit 1. März in Kraft - was nun? 465. Seminar des , 1997.
- Stern, R., Builtjes, P. J. H., Schaap, M., Timmermans, R., Vautard, R., Hodzic, A., Memmesheimer, M., Feldmann, H., Renner, E., Wolke, R., and Kerschbaumer, A.: A model inter-comparison study focussing on episodes with elevated PM₁₀ concentrations, *Atmos. Environ.*, 42, 4567–4588, 2008
- Steven, H. . and Skrzipczyk, E.: Mobilev 1.3 Dokumentation und Benutzerhandbuch. FE-Vorhaben FKZ 105 06 044 “Erarbeitung von Grundlagen für die Umsetzung von § 40.2 BImSchG”. FiGE GmbH, Herzogenrath. Entwicklung im Auftrag des Umweltbundesamtes., 1997.
- Sturmlechner, R., Schmidl, C., Carlon, E., Reichert, G., Stresseler, H., Klauser, F., Kelz, J., Schwabl, M., Kirschsteiger, B., Kasper-Giebl, A., Höftberger, E., Haslinger, E., Real-life emission factor assessment for biomass heating appliances at a field measurement campaign in Styria, Austria., *Air Pollution XXVII*, WIT Transactions on Ecology and the Environment, Vol 236, doi:10.2495/AIR190221Thunis, P., C. Cuvelier, P. Roberts, L. White, Post, L. Tarrason, S. Tsyro, R. Stern, A. Kerschbaumer, L. Rouil, B. Bessagnet, P. Builtjes, M. Schaap, G. Boersen, and R. Bergstroem (2008). Evaluation of a Sectoral Approach to Integrated Assessment Modelling including the Mediterranean Sea. Tech. rep. Eurodelta II report. EUR 23444 EN. DOI: 10.2788/ 87066
- Thürkow, M., I. Kirchner, R. Kranenburg, R.M.A. Timmermans, M. SchaaA multi-meteorological comparison for episodes of PM₁₀ concentrations in the Berlinagglomeration area in

- Germany with the LOTOS-EUROS CTM, Atmospheric Environment, Volume 244, 2021, 117946, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.117946>.
- Timmermans, R., Kranenburg, R., Manders, A., Hendriks, C., Segers, A., Dammers, E., Denier van der Gon, H., Schaap, M., Dammers, E., Zhang, Q., Wang, L. and Liu, Z.: Source apportionment of PM_{2.5} across China using LOTOS-EUROS, Atmos. Environ., 164, doi:10.1016/j.atmosenv.2017.06.003, 2017.
- Tsyro, S., Simpson, D., Tarrasón, L., Klimont, Z., Kupiainen, K., Pio, C. A. and Yttri, K. E.: Modeling of elemental carbon over Europe, J. Geophys. Res. Atmos., 112(23), doi:10.1029/2006JD008164, 2007.
- UBA 2018: German Informative Inventory Report. <https://iir-de.wikidot.com>., 2018.
- UBA 2018a: Luftqualität 2017, <https://www.umweltbundesamt.de/publikationen/luftqualitaet-2017>, 2018a
- UBA: ArcGIS basierte Lösung zur detaillierten, deutschlandweiten Verteilung (Gridding) nationaler Emissionsjahreswerte auf Basis des Inventars zur Emissionsberichterstattung, UBA Texte 71/2016, 2016
- UFOPLAN: UFOPLAN-Vorhaben FKZ 3716 52 200 0. Einfluss eines Großflughafens auf zeitliche und räumliche Verteilungen der Außenluftkonzentrationen von Ultrafeinstaub < 100 nm, um die potentielle Belastung in der Nähe zu beschreiben - unter Einbeziehung weiterer Luft, 2018.
- Van Pinxteren, D., Mothes, F., Spindler, G., Wadinge Fomba, K., Cuesta, A., Tuch, T., Müller, T., Wiedensohler, A., Herrmann, H., Zusatzbelastung aus Holzheizungen, Schriftenreihe des LfULG, Heft 12/2020, 2020
- Visschedijk, A., H. Denier van der Gon, R. Dröge, H. Van der Brugh, A European high-resolution and size-differentiated emission inventory for elemental and organic carbon for the year 2005, TNO Report TNO-034-UT-2009-00688_RPT-ML, 2009
- Visschedijk, A., Meesters, J.A.J, Nijkamp, M.M., Koch, W.W.R., Jansen, B.I., Dröge, R., Methodology for the calculation of emissions from product usage by consumers, construction and services. RIVM report 2020-0041, DOI 10.21945/RIVM-2020-0041, 2020
- Walcek, C. J.: Minor flux adjustment near mixing ratio extremes for simplified yet highly accurate monotonic calculation of tracer advection, J. Geophys. Res. Atmos., 105(D7), 9335–9348 [online] Available from: <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-0033792225&partnerID=tZOtx3y1>, 2000.
- WHO, Janssen, N. A., Gerlofs-Nijland, M. E., Lanki, T., Salonen, R. O., Cassee, F., Hoek, G., Fischer, P., Brunekreef, B. and Krzyzanowski, M.: Health effects of black carbon, World Health Organization, Regional Office for Europe., 2012.
- Wichink Kruit, R. J., Schaap, M., Sauter, F. J., van Zanten, M. C. and van Pul, W. A. J.: Modeling the distribution of ammonia across Europe including bi-directional surface-atmosphere exchange, Biogeosciences, 9(12), 5261–5277, doi:10.5194/bg-9-5261-2012, 2012.
- Van Zanten, M. C., Sauter, F. J., Wichink Kruit, R. J., Van Jaarsveld, J. A. and Van Pul, W. A. J.: Description of the DEPAC module: Dry deposition modelling with DEPAC GCN2010, RIVM Rep. 680180001/2010 [online] Available from: <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84871391562&partnerID=tZOtx3y1>, n.d.
- Yuan, J., Modini, R. L., Zanatta, M., Herber, A., Müller, T., Wehner, B., Poulain, L., Tuch, T., Baltensperger, U. and Gysel-Beer, M.: Variability in the mass absorption cross-section of black carbon (BC) aerosols is driven by BC internal mixing state at a central European

- background site (Melpitz, Germany) in winter, *Atmos. Chem. Phys.*, (January), 1–36, doi:10.5194/acp-2020-41, 2020.
- Zanatta, M., Gysel, M., Bukowiecki, N., Müller, T., Weingartner, E., Areskoug, H., Fiebig, M., Yttri, K. E., Mihalopoulos, N., Kouvarakis, G., Beddows, D., Harrison, R. M., Cavalli, F., Putaud, J. P., Spindler, G., Wiedensohler, A., Alastuey, A., Pandolfi, M., Sellegri, K., Swietlicki, E., Jaffrezo, J. L., Baltensperger, U. and Laj, P.: A European aerosol phenomenology-5: Climatology of black carbon optical properties at 9 regional background sites across Europe, *Atmos. Environ.*, 145, 346–364, doi:10.1016/j.atmosenv.2016.09.035, 2016.
- Zhang, L.: A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module, *Atmos. Environ.*, 35(3), 549–560, doi:10.1016/S1352-2310(00)00326-5, 2001.

A Anhang Übersicht Messungen

Tabelle 21: Übersicht Messungen

Tabelle 21a: PM2.5 Stündlich

| Database | Station ID | Latitude | Longitude | Altitude | Station name | Airbase station type | Airbase station type of area | Instrument | Period |
|----------|------------|----------|-----------|----------|-----------------------------|----------------------|------------------------------|------------|-----------|
| UBA | DERP007 | 50.0171 | 8.2165 | 120 | Mainz-Mombach | background | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DERP010 | 50.0010 | 8.2613 | 85 | Mainz-Parcusstrasse | traffic | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DERP041 | 49.4787 | 8.4437 | 94 | Ludwigshafen-Heinigstrasse | traffic | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DERP045 | 50.3596 | 7.5925 | 70 | Koblenz-Hohenfelder Strasse | traffic | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DERP046 | 50.4314 | 7.4608 | 65 | Neuwied-Hermannstrasse | traffic | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DERP047 | 49.7839 | 6.6905 | 131 | Trier-Pfalzel | industrial | suburban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DERP060 | 49.1920 | 7.6146 | 378 | Pirmasens-Innenstadt | background | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DEST050 | 51.496 | 11.9791 | 116 | Halle/Nord | background | urban | AE33 | 2018 |
| UBA | DEST077 | 52.1279 | 11.6115 | 58 | Magdeburg/West | background | urban | AE33 | 2017-2018 |
| UBA | DEST089 | 52.5931 | 11.1723 | 95 | Zartau/Waldstation | background | rural | AE33 | 2017-2018 |
| UBA | DEST103 | 52.1208 | 11.6327 | 53 | Magdeburg Schleinufer | traffic | urban | AE33 | 2017-2018 |
| UBA | DEUB005 | 52.8008 | 10.7567 | 74 | Waldhof | background | rural | MAAP | 2017-2018 |

Tabelle 21b: PM10 Stündlich

| Database | Station ID | Latitude | Longitude | Altitude | Station name | Airbase station type | Airbase station type of area | Instrument | Periode |
|----------|------------|----------|-----------|----------|------------------------------------|----------------------|------------------------------|------------|-----------|
| UBA | DETH020 | 50.9795 | 11.0379 | 195 | Erfurt Krampferstr. | background | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DETH036 | 50.6559 | 12.2052 | 265 | Greiz Mollbergstr. | background | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DETH043 | 50.9849 | 11.0194 | 195 | Erfurt Bergstr. | traffic | urban | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DEUB004 | 47.9133 | 7.9080 | 1205 | Schauinsland | background | rural | MAAP | 2017-2018 |
| UBA | DEUB030 | 53.1413 | 13.0317 | 65 | Neuglobsow | background | rural | MAAP | 2017-2018 |
| | MC042 | 52.489 | 13.431 | 35 | B Neukolln-Nansenstrasse | background | urban | AE33 | 2018 |
| | MC174 | 52.514 | 13.470 | 40 | B Friedrichshain-Frankfurter Allee | traffic | urban | AE33 | 2018 |
| NRW | DENW021 | 51.5260 | 6.9769 | 40 | Bottrop-Welheim | industrial | urban | AE33 | 2017-2018 |
| NRW | DENW038 | 51.4534 | 6.8651 | 37 | Mulheim-Styrum | background | urban | AE33 | 2017-2018 |
| NRW | DENW064 | 50.6532 | 6.2811 | 572 | Simmerath (Eifel) | background | rural | AE33 | 2017-2018 |
| NRW | DENW112 | 51.4377 | 6.7718 | 34 | Duisburg Kardinal-Galen-Strasse | traffic | urban | AE33 | 2017-2018 |
| NRW | DENW381 | 51.2196 | 6.7041 | 30 | Neuss (Rheinhafen) | background | urban | AE33 | 2017-2018 |
| NRW | DENW382 | 51.4607 | 6.7275 | 28 | Duisburg (Rheinhafen) | background | urban | AE33 | 2017-2018 |

Tabelle 21c: PM10 24Stunden TOT Protokoll

| Database | Station ID | Latitude | Longitude | Altitude | Station name | Airbase station type | Airbase station type of area | Instrument | Periode |
|----------|------------|----------|-----------|----------|-------------------------|----------------------|------------------------------|------------|-----------|
| UBA | DEBB053 | 52.5638 | 14.0153 | 88 | Hasenholz | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DEBB054 | 52.3939 | 13.0375 | 31 | Potsdam Zeppelinstr. | traffic | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DEBB064 | 51.7463 | 14.3346 | 75 | Cottbus | background | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DEMV012 | 53.5205 | 14.2574 | 17 | Locknitz | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DESN020 | 51.1558 | 14.9740 | 210 | Gorlitz | traffic | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DESN025 | 51.3442 | 12.3772 | 110 | Leipzig-Mitte | traffic | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DESN051 | 51.1195 | 13.6750 | 246 | Radebeul-Wahnsdorf | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DESN059 | 51.3179 | 12.2974 | 115 | Leipzig-West | background | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DESN061 | 51.0649 | 13.7414 | 112 | Dresden-Nord | traffic | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DESN074 | 50.6591 | 13.4651 | 785 | Schwartenberg | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DESN076 | 51.3038 | 13.0094 | 313 | Collmberg | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DESN077 | 51.3359 | 12.3347 | 113 | Leipzig Lutzner Str. 36 | traffic | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DESN079 | 51.2854 | 14.7497 | 148 | Niesky | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DESN083 | 50.8457 | 12.9034 | 327 | Chemnitz-Leipziger Str. | traffic | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DESN084 | 51.0263 | 13.7316 | 150 | Dresden-Bergstr. | traffic | urban | | 2016-2017 |

| Database | Station ID | Latitude | Longitude | Altitude | Station name | Airbase station type | Airbase station type of area | Instrument | Periode |
|----------|------------|----------|-----------|----------|------------------------------------|----------------------|------------------------------|------------|-----------|
| UBA | DESN092 | 51.0361 | 13.7302 | 112 | Dresden-Winckelmannstr. | background | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DESN093 | 50.6081 | 12.2111 | 430 | Brockau | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DEBE034 | 52.4894 | 13.4308 | 35 | B Neukolln-Nansenstrasse | background | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DEBE065 | 52.5141 | 13.4699 | 40 | B Friedrichshain-Frankfurter Allee | traffic | urban | | 2016-2017 |
| UBA | DEUB030 | 53.1413 | 13.0316 | 65 | Neuglobsow | background | rural | | 2016-2017 |
| UBA | DE0044 | 51.5301 | 12.9339 | | Melpitz | Background | rural | PM2.5 | 2015-2018 |

Tabelle 22: Messungen die nicht verwendet wurden, alle VDI Protokoll, Täglich

| Database | Station ID | Latitude | Longitude | Altitude | Station name | Airbase station type | Airbase station type of area | Period |
|----------|------------|----------|-----------|----------|---------------------------|----------------------|------------------------------|-----------------|
| UBA | DEBB044 | 51.75648 | 14.328 | 70 | Cottbus | traffic | | 2014,2017 |
| UBA | DEBB045 | 52.33734 | 14.5386 | 56 | Frankfurt (Oder) | | traffic | 2016 |
| UBA | DEBB049 | 52.40931 | 12.54838 | 33 | Brandenburg | | traffic | 2016 |
| UBA | DEBB054 | 52.39393 | 13.03747 | 31 | Potsdam Zeppelinstr. | urban | traffic | 2014, 2016 |
| UBA | DEBB055 | 52.42044 | 12.5523 | 33 | Brandenburg a.d. Havel | suburban | background | 2017 |
| UBA | DEBB060 | 52.83247 | 13.82221 | 20 | Eberswalde Breite Strasse | urban | traffic | 2016-2017 |
| UBA | DEBB086 | 52.3497 | 13.4243 | 43 | Blankenfelde-Mahlow | suburban | background | 2014, 2016-2017 |
| UBA | DEBB087 | 51.75413 | 14.32555 | 75 | Cottbus | urban | traffic | 2014 |
| UBA | DESN020 | 51.1558 | 14.97396 | 210 | Gorlitz | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DESN025 | 51.34416 | 12.37716 | 110 | Leipzig-Mitte | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DESN051 | 51.11951 | 13.67501 | 246 | Radebeul-Wahnsdorf | rural | background | 2014-2015 |
| UBA | DESN059 | 51.31791 | 12.29741 | 115 | Leipzig-West | urban | background | 2014-2015 |
| UBA | DESN061 | 51.06493 | 13.7414 | 112 | Dresden-Nord | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DESN076 | 51.30377 | 13.00941 | 313 | Collnberg | rural | background | 2014-2015 |
| UBA | DESN077 | 51.33587 | 12.33469 | 113 | Leipzig Lutzner Str. 36 | urban | traffic | 2014-2015 |

| Database | Station ID | Latitude | Longitude | Altitude | Station name | Airbase station type | Airbase station type of area | Period |
|----------|------------|----------|-----------|----------|-----------------------------|----------------------|------------------------------|-----------|
| UBA | DESN083 | 50.84574 | 12.90337 | 327 | Chemnitz-Leipziger Str. | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DESN084 | 51.02629 | 13.73161 | 150 | Dresden-Bergstr. | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DESN092 | 51.0361 | 13.7302 | 112 | Dresden-Winckelmannstr. | urban | background | 2014-2015 |
| UBA | DEST002 | 52.26835 | 11.86476 | 47 | Burg | suburban | background | 2014-2015 |
| UBA | DEST050 | 51.49618 | 11.97906 | 116 | Halle/Nord | urban | background | 2014-2015 |
| UBA | DEST075 | 51.47516 | 11.98341 | 113 | Halle/Merseburger Strasse | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DEST077 | 52.1279 | 11.61146 | 58 | Magdeburg/West | urban | background | 2014-2015 |
| UBA | DEST092 | 51.86747 | 12.59827 | 73 | Wittenberg/Dessauer Strasse | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DEST099 | 52.1312 | 11.63116 | 59 | Magdeburg/Reuterallee | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DEST102 | 51.49476 | 11.98131 | 118 | Halle/Paracelsustr. | urban | traffic | 2014-2015 |
| UBA | DEST104 | 51.83731 | 11.89141 | 72 | Domane Bobbe | rural | background | 2014-2015 |

B Statistische Auswertung der Läufe

Stationen, die als Industrienah oder Straßenstation gekennzeichnet sind als kursiv gekennzeichnet

Stündliche Messwerte sind separat ausgewertet als stündliche und als tägliche Messungen um den Vergleich zu täglichen EC Messungen zu vereinfachen und um den Einfluss des Tagesgang auf die Korrelation zu reduzieren, um somit besser die Variabilität aufgrund von großräumiger Meteorologie und die Emissionen, die damit zusammen hängen, zu analysieren können.

B.1 Grundlage

Tabelle 23: Stündliche PM2.5 Grundlage

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.69 | -0.36 | 0.96 | 0.45 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | 0.69 | -1.75 | 2.31 | 0.33 |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | 0.8 | -1.89 | 2.47 | 0.3 |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | 0.34 | -1.42 | 1.87 | 0.24 |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | 0.51 | -0.87 | 1.27 | 0.13 |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | 0.55 | -0.84 | 1.43 | 0.33 |
| <i>DERP047</i> | <i>1.16</i> | 0.4 | -0.76 | 1.25 | 0.31 |
| DERP060 | 1.05 | 0.31 | -0.73 | 1.04 | 0.22 |
| DEST077 | 0.8 | 0.34 | -0.46 | 0.88 | 0.47 |
| DEST089 | 0.55 | 0.2 | -0.36 | 0.64 | 0.56 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.19 | -0.3 | 0.59 | 0.65 |

Tabelle 24: Tägliche PM2.5 Grundlage

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.69 | -0.36 | 0.81 | 0.64 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | 0.69 | -1.75 | 2.05 | 0.54 |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | 0.8 | -1.89 | 2.19 | 0.49 |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | 0.34 | -1.41 | 1.6 | 0.43 |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | 0.51 | -0.86 | 1.07 | 0.2 |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | 0.55 | -0.84 | 1.2 | 0.57 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|----------|----------|-------|------|------|
| <i>DERP047</i> | 1.16 | 0.4 | -0.76 | 1.05 | 0.57 |
| DERP060 | 1.05 | 0.31 | -0.73 | 0.9 | 0.47 |
| DEST077 | 0.8 | 0.34 | -0.46 | 0.73 | 0.69 |
| DEST089 | 0.55 | 0.2 | -0.36 | 0.58 | 0.69 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.19 | -0.3 | 0.55 | 0.77 |

Tabelle 25: Stündliche PM10 Grundlage

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.25 | 0.05 | 0.25 | 0.08 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.18 | -0.34 | 0.67 | 0.58 |
| DETH020 | 1.02 | 0.33 | -0.69 | 1.19 | 0.51 |
| DETH036 | 1.26 | 0.24 | -1.02 | 1.7 | 0.41 |
| <i>DETH043</i> | <i>1.63</i> | 0.33 | -1.29 | 1.79 | 0.38 |
| <i>DENW021</i> | <i>1.19</i> | 0.55 | -0.65 | 1.13 | 0.33 |
| DENW382 | 1.29 | 0.6 | -0.64 | 0.94 | 0.46 |
| DENW064 | 0.41 | 0.26 | -0.08 | 0.35 | 0.24 |
| DENW038 | 1.04 | 0.65 | -0.4 | 0.83 | 0.44 |
| <i>DENW112</i> | <i>0.96</i> | 0.62 | -0.35 | 0.63 | 0.53 |

Tabelle 26: Tägliche PM10 Grundlage

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.25 | 0.05 | 0.19 | 0.12 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.18 | -0.35 | 0.64 | 0.72 |
| DETH020 | 1.02 | 0.33 | -0.69 | 1.08 | 0.72 |
| DETH036 | 1.26 | 0.24 | -1.02 | 1.44 | 0.68 |
| <i>DETH043</i> | <i>1.63</i> | 0.33 | -1.3 | 1.56 | 0.65 |
| <i>DENW021</i> | <i>1.19</i> | 0.55 | -0.64 | 0.89 | 0.56 |
| DENW382 | 1.29 | 0.6 | -0.63 | 0.77 | 0.7 |
| DENW064 | 0.41 | 0.26 | -0.08 | 0.26 | 0.37 |
| DENW038 | 1.04 | 0.65 | -0.4 | 0.6 | 0.69 |
| <i>DENW112</i> | <i>0.96</i> | 0.62 | -0.35 | 0.49 | 0.77 |

Tabelle 27: PM10 TOT Grundlage

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|----------|----------|-------|------|------|
| <i>DESN020</i> | 0.95 | 0.42 | -0.52 | 0.7 | 0.31 |
| <i>DESN025</i> | 0.96 | 0.38 | -0.58 | 0.68 | 0.18 |
| DESN051 | 0.36 | 0.35 | 0.01 | 0.22 | 0.72 |
| DESN059 | 0.36 | 0.33 | -0.04 | 0.23 | 0.63 |
| <i>DESN061</i> | 0.74 | 0.47 | -0.27 | 0.4 | 0.51 |
| DESN074 | 0.2 | 0.24 | 0.05 | 0.19 | 0.68 |
| DESN076 | 0.24 | 0.24 | 0.01 | 0.11 | 0.8 |
| <i>DESN077</i> | 1.02 | 0.38 | -0.64 | 0.74 | 0.38 |
| DESN079 | 0.35 | 0.31 | -0.05 | 0.26 | 0.62 |
| <i>DESN083</i> | 0.99 | 0.35 | -0.64 | 0.83 | 0.24 |
| <i>DESN084</i> | 1.16 | 0.45 | -0.69 | 0.84 | 0.2 |
| DESN092 | 0.41 | 0.45 | 0.06 | 0.29 | 0.58 |
| DESN093 | 0.24 | 0.26 | 0.02 | 0.11 | 0.76 |
| DE0044R | 0.37 | 0.23 | -0.14 | 0.26 | 0.72 |

Tabelle 28: PMOst Grundlage

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|----------|----------|-------|------|------|
| <i>DEBE065</i> | 1.57 | 0.72 | -0.86 | 1.15 | 0.31 |
| DEBE034 | 0.89 | 0.64 | -0.25 | 0.51 | 0.41 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.45 | -0.37 | 0.6 | 0.31 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.38 | -0.1 | 0.27 | 0.58 |
| <i>DEBB054</i> | 1.29 | 0.41 | -0.88 | 1.04 | 0.29 |
| DEUB030 | 0.45 | 0.27 | -0.18 | 0.29 | 0.52 |
| DEMV012 | 0.68 | 0.49 | -0.18 | 0.51 | 0.49 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.32 | -0.3 | 0.44 | 0.71 |
| DESN093 | 0.48 | 0.36 | -0.12 | 0.22 | 0.61 |
| DESN079 | 0.69 | 0.48 | -0.21 | 0.43 | 0.65 |

B.2 Schritt 1

Tabelle 29: Stündliche PM2.5 Schritt1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.92 | -0.13 | 0.88 | 0.45 |
| DERP010 | 2.43 | 0.92 | -1.52 | 2.12 | 0.29 |
| DERP041 | 2.69 | 1.25 | -1.44 | 2.21 | 0.25 |
| DEST103 | 1.76 | 0.42 | -1.34 | 1.81 | 0.19 |
| DERP045 | 1.38 | 0.63 | -0.76 | 1.24 | 0.09 |
| DERP046 | 1.39 | 0.66 | -0.73 | 1.31 | 0.37 |
| DERP047 | 1.16 | 0.48 | -0.68 | 1.17 | 0.35 |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.98 | 0.25 |
| DEST077 | 0.8 | 0.42 | -0.38 | 0.82 | 0.43 |
| DEST089 | 0.55 | 0.22 | -0.34 | 0.62 | 0.52 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.28 | 0.57 | 0.66 |

Tabelle 30: Tägliche PM2.5 Schritt1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.92 | -0.13 | 0.65 | 0.61 |
| DERP010 | 2.43 | 0.92 | -1.52 | 1.82 | 0.46 |
| DERP041 | 2.69 | 1.25 | -1.45 | 1.83 | 0.4 |
| DEST103 | 1.76 | 0.42 | -1.33 | 1.53 | 0.36 |
| DERP045 | 1.38 | 0.63 | -0.75 | 1.01 | 0.13 |
| DERP046 | 1.39 | 0.66 | -0.73 | 1.07 | 0.58 |
| DERP047 | 1.16 | 0.48 | -0.68 | 0.95 | 0.59 |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.83 | 0.5 |
| DEST077 | 0.8 | 0.42 | -0.38 | 0.65 | 0.63 |
| DEST089 | 0.55 | 0.22 | -0.33 | 0.57 | 0.65 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.28 | 0.53 | 0.79 |

Tabelle 31: Stündliche PM10 Schritt1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.14 | 0.39 | 0.05 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.19 | -0.33 | 0.65 | 0.61 |
| DETH020 | 1.02 | 0.45 | -0.56 | 1.06 | 0.47 |
| DETH036 | 1.26 | 0.3 | -0.96 | 1.62 | 0.45 |
| DETH043 | 1.63 | 0.45 | -1.17 | 1.67 | 0.32 |
| DENW021 | 1.19 | 0.62 | -0.57 | 1.07 | 0.35 |
| DENW382 | 1.29 | 0.67 | -0.56 | 0.89 | 0.44 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.35 | 0.27 |
| DENW038 | 1.04 | 0.71 | -0.33 | 0.78 | 0.47 |
| DENW112 | 0.96 | 0.69 | -0.28 | 0.58 | 0.55 |

Tabelle 32: Tägliche PM10 Schritt 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.31 | 0.06 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.19 | -0.33 | 0.62 | 0.76 |
| DETH020 | 1.02 | 0.45 | -0.56 | 0.94 | 0.66 |
| DETH036 | 1.26 | 0.3 | -0.96 | 1.35 | 0.72 |
| DETH043 | 1.63 | 0.45 | -1.17 | 1.42 | 0.56 |
| DENW021 | 1.19 | 0.62 | -0.57 | 0.8 | 0.57 |
| DENW382 | 1.29 | 0.67 | -0.56 | 0.72 | 0.64 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.25 | 0.41 |
| DENW038 | 1.04 | 0.71 | -0.33 | 0.52 | 0.71 |
| DENW112 | 0.96 | 0.69 | -0.28 | 0.4 | 0.8 |

Tabelle 33: PM10 TOT Schritt 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN020 | 0.95 | 0.46 | -0.49 | 0.68 | 0.34 |
| DESN025 | 0.96 | 0.43 | -0.53 | 0.65 | 0.19 |
| DESN051 | 0.36 | 0.42 | 0.08 | 0.29 | 0.74 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DESN059 | 0.36 | 0.37 | 0 | 0.21 | 0.67 |
| <i>DESN061</i> | <i>0.74</i> | <i>0.54</i> | <i>-0.2</i> | <i>0.38</i> | <i>0.52</i> |
| DESN074 | 0.2 | 0.27 | 0.07 | 0.21 | 0.67 |
| DESN076 | 0.24 | 0.27 | 0.04 | 0.13 | 0.82 |
| <i>DESN077</i> | <i>1.02</i> | <i>0.43</i> | <i>-0.59</i> | <i>0.7</i> | <i>0.35</i> |
| DESN079 | 0.35 | 0.33 | -0.03 | 0.26 | 0.63 |
| <i>DESN083</i> | <i>0.99</i> | <i>0.44</i> | <i>-0.55</i> | <i>0.76</i> | <i>0.26</i> |
| <i>DESN084</i> | <i>1.16</i> | <i>0.53</i> | <i>-0.61</i> | <i>0.81</i> | <i>0.18</i> |
| DESN092 | 0.41 | 0.53 | 0.14 | 0.39 | 0.59 |
| DESN093 | 0.24 | 0.34 | 0.09 | 0.16 | 0.75 |
| DE0044R | 0.37 | 0.26 | -0.11 | 0.23 | 0.77 |

Tabelle 34: PMOst Schritt 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|----------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| <i>DEBE065</i> | 1.57 | <i>0.95</i> | <i>-0.63</i> | <i>1.03</i> | <i>0.26</i> |
| DEBE034 | 0.89 | 0.81 | -0.08 | 0.54 | 0.32 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.54 | -0.29 | 0.56 | 0.33 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.44 | -0.05 | 0.26 | 0.59 |
| <i>DEBB054</i> | 1.29 | <i>0.52</i> | <i>-0.76</i> | <i>0.96</i> | <i>0.24</i> |
| DEUB030 | 0.45 | 0.3 | -0.15 | 0.26 | 0.56 |
| DEMVO12 | 0.68 | 0.51 | -0.16 | 0.5 | 0.5 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.38 | -0.25 | 0.39 | 0.75 |
| DESN093 | 0.48 | 0.49 | 0 | 0.21 | 0.62 |
| DESN079 | 0.69 | 0.51 | -0.18 | 0.41 | 0.66 |

B.3 Szenario 1

Tabelle 35: Stündliche PM2.5 Szenario 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DERP007 | 1.05 | 0.87 | -0.18 | 0.89 | 0.45 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | <i>0.87</i> | <i>-1.56</i> | <i>2.16</i> | <i>0.29</i> |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | <i>1.15</i> | <i>-1.54</i> | <i>2.25</i> | <i>0.26</i> |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | <i>0.44</i> | <i>-1.32</i> | <i>1.79</i> | <i>0.19</i> |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | <i>0.6</i> | <i>-0.78</i> | <i>1.25</i> | <i>0.09</i> |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | <i>0.63</i> | <i>-0.76</i> | <i>1.33</i> | <i>0.38</i> |
| <i>DERP047</i> | <i>1.16</i> | <i>0.47</i> | <i>-0.69</i> | <i>1.18</i> | <i>0.36</i> |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.98 | 0.25 |
| DEST077 | 0.8 | 0.44 | -0.36 | 0.8 | 0.44 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.61 | 0.52 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.27 | 0.56 | 0.68 |

Tabelle 36: Tägliche PM2.5 Szenario 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DERP007 | 1.05 | 0.87 | -0.18 | 0.67 | 0.61 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | <i>0.87</i> | <i>-1.57</i> | <i>1.86</i> | <i>0.46</i> |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | <i>1.15</i> | <i>-1.55</i> | <i>1.9</i> | <i>0.4</i> |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | <i>0.44</i> | <i>-1.31</i> | <i>1.51</i> | <i>0.37</i> |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | <i>0.6</i> | <i>-0.77</i> | <i>1.03</i> | <i>0.14</i> |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | <i>0.63</i> | <i>-0.76</i> | <i>1.09</i> | <i>0.58</i> |
| <i>DERP047</i> | <i>1.16</i> | <i>0.47</i> | <i>-0.69</i> | <i>0.96</i> | <i>0.59</i> |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.83 | 0.5 |
| DEST077 | 0.8 | 0.44 | -0.36 | 0.64 | 0.64 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.56 | 0.65 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.27 | 0.53 | 0.8 |

Tabelle 37: Stündliche PM10 Szenario1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.38 | 0.05 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.32 | 0.65 | 0.61 |
| DETH020 | 1.02 | 0.46 | -0.55 | 1.06 | 0.47 |
| DETH036 | 1.26 | 0.3 | -0.95 | 1.62 | 0.45 |
| DETH043 | 1.63 | 0.46 | -1.16 | 1.67 | 0.32 |
| DENW021 | 1.19 | 0.6 | -0.59 | 1.08 | 0.35 |
| DENW382 | 1.29 | 0.65 | -0.58 | 0.9 | 0.44 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.35 | 0.27 |
| DENW038 | 1.04 | 0.7 | -0.35 | 0.78 | 0.47 |
| DENW112 | 0.96 | 0.68 | -0.29 | 0.59 | 0.55 |

Tabelle 38: Tägliche PM10 Szenario 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.3 | 0.06 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.33 | 0.61 | 0.76 |
| DETH020 | 1.02 | 0.46 | -0.56 | 0.93 | 0.66 |
| DETH036 | 1.26 | 0.3 | -0.96 | 1.35 | 0.72 |
| DETH043 | 1.63 | 0.46 | -1.16 | 1.41 | 0.56 |
| DENW021 | 1.19 | 0.6 | -0.59 | 0.81 | 0.58 |
| DENW382 | 1.29 | 0.65 | -0.58 | 0.73 | 0.64 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.25 | 0.41 |
| DENW038 | 1.04 | 0.7 | -0.35 | 0.53 | 0.71 |
| DENW112 | 0.96 | 0.68 | -0.29 | 0.41 | 0.8 |

Tabelle 39: PM10 TOT Szenario 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN020 | 0.95 | 0.46 | -0.49 | 0.68 | 0.34 |
| DESN025 | 0.96 | 0.44 | -0.52 | 0.64 | 0.19 |
| DESN051 | 0.36 | 0.43 | 0.09 | 0.29 | 0.74 |
| DESN059 | 0.36 | 0.38 | 0.02 | 0.2 | 0.68 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN061 | 0.74 | 0.53 | -0.21 | 0.39 | 0.52 |
| DESN074 | 0.2 | 0.27 | 0.08 | 0.21 | 0.67 |
| DESN076 | 0.24 | 0.28 | 0.05 | 0.14 | 0.82 |
| DESN077 | 1.02 | 0.44 | -0.58 | 0.69 | 0.36 |
| DESN079 | 0.35 | 0.34 | -0.03 | 0.26 | 0.63 |
| DESN083 | 0.99 | 0.45 | -0.54 | 0.75 | 0.26 |
| DESN084 | 1.16 | 0.54 | -0.61 | 0.81 | 0.18 |
| DESN092 | 0.41 | 0.54 | 0.14 | 0.39 | 0.59 |
| DESN093 | 0.24 | 0.34 | 0.09 | 0.16 | 0.75 |
| DE0044R | 0.37 | 0.27 | -0.1 | 0.22 | 0.78 |

Tabelle 40: PMOst Szenario 1

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------|----------|----------|-------|------|------|
| DEBE065 | 1.57 | 0.93 | -0.64 | 1.03 | 0.27 |
| DEBE034 | 0.89 | 0.83 | -0.07 | 0.54 | 0.32 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.55 | -0.28 | 0.55 | 0.33 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.45 | -0.04 | 0.26 | 0.59 |
| DEBB054 | 1.29 | 0.53 | -0.76 | 0.95 | 0.24 |
| DEUB030 | 0.45 | 0.31 | -0.15 | 0.26 | 0.57 |
| DEMV012 | 0.68 | 0.53 | -0.15 | 0.49 | 0.51 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.39 | -0.24 | 0.38 | 0.76 |
| DESN093 | 0.48 | 0.49 | 0 | 0.21 | 0.62 |
| DESN079 | 0.69 | 0.52 | -0.17 | 0.41 | 0.66 |

B.4 Szenario 2

Tabelle 41: Stündliche PM2.5 Szenario 2

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DERP007 | 1.05 | 0.88 | -0.16 | 0.89 | 0.45 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | <i>0.88</i> | <i>-1.55</i> | <i>2.15</i> | <i>0.29</i> |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | <i>1.16</i> | <i>-1.53</i> | <i>2.24</i> | <i>0.26</i> |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | <i>0.44</i> | <i>-1.31</i> | <i>1.78</i> | <i>0.2</i> |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | <i>0.61</i> | <i>-0.78</i> | <i>1.25</i> | <i>0.09</i> |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | <i>0.64</i> | <i>-0.75</i> | <i>1.34</i> | <i>0.36</i> |
| <i>DERP047</i> | <i>1.16</i> | <i>0.47</i> | <i>-0.69</i> | <i>1.18</i> | <i>0.34</i> |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.98 | 0.25 |
| DEST077 | 0.8 | 0.44 | -0.36 | 0.8 | 0.44 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.61 | 0.52 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.28 | 0.56 | 0.68 |

Hier steht eine Tabellenunterschrift

Tabelle 42: Tägliche PM2.5 Szenario 2

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DERP007 | 1.05 | 0.88 | -0.16 | 0.67 | 0.6 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | <i>0.88</i> | <i>-1.55</i> | <i>1.85</i> | <i>0.47</i> |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | <i>1.16</i> | <i>-1.53</i> | <i>1.88</i> | <i>0.41</i> |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | <i>0.44</i> | <i>-1.31</i> | <i>1.5</i> | <i>0.4</i> |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | <i>0.61</i> | <i>-0.77</i> | <i>1.02</i> | <i>0.15</i> |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | <i>0.64</i> | <i>-0.75</i> | <i>1.08</i> | <i>0.58</i> |
| <i>DERP047</i> | <i>1.16</i> | <i>0.47</i> | <i>-0.69</i> | <i>0.96</i> | <i>0.59</i> |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.83 | 0.5 |
| DEST077 | 0.8 | 0.44 | -0.36 | 0.63 | 0.64 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.56 | 0.65 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.27 | 0.52 | 0.8 |

Tabelle 43: Stündliche PM10 Szenario 2

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.39 | 0.05 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.32 | 0.65 | 0.61 |
| DETH020 | 1.02 | 0.46 | -0.55 | 1.06 | 0.47 |
| DETH036 | 1.26 | 0.3 | -0.95 | 1.62 | 0.44 |
| DETH043 | 1.63 | 0.46 | -1.16 | 1.66 | 0.33 |
| DENW021 | 1.19 | 0.61 | -0.58 | 1.07 | 0.35 |
| DENW382 | 1.29 | 0.67 | -0.58 | 0.89 | 0.46 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.35 | 0.27 |
| DENW038 | 1.04 | 0.71 | -0.34 | 0.78 | 0.47 |
| DENW112 | 0.96 | 0.69 | -0.28 | 0.58 | 0.56 |

Tabelle 44: Tägliche PM10 Szenario 2

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.3 | 0.06 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.33 | 0.61 | 0.76 |
| DETH020 | 1.02 | 0.46 | -0.55 | 0.93 | 0.66 |
| DETH036 | 1.26 | 0.3 | -0.95 | 1.35 | 0.72 |
| DETH043 | 1.63 | 0.46 | -1.16 | 1.4 | 0.58 |
| DENW021 | 1.19 | 0.61 | -0.58 | 0.8 | 0.57 |
| DENW382 | 1.29 | 0.67 | -0.58 | 0.72 | 0.68 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.25 | 0.42 |
| DENW038 | 1.04 | 0.71 | -0.34 | 0.52 | 0.71 |
| DENW112 | 0.96 | 0.69 | -0.28 | 0.39 | 0.82 |

Tabelle 45: PM10 TOT Szenario 2

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN020 | 0.95 | 0.46 | -0.49 | 0.68 | 0.34 |
| DESN025 | 0.96 | 0.45 | -0.52 | 0.63 | 0.22 |
| DESN051 | 0.36 | 0.43 | 0.09 | 0.29 | 0.74 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DESN059 | 0.36 | 0.39 | 0.02 | 0.2 | 0.68 |
| <i>DESN061</i> | <i>0.74</i> | <i>0.53</i> | <i>-0.21</i> | <i>0.38</i> | <i>0.53</i> |
| DESN074 | 0.2 | 0.27 | 0.08 | 0.21 | 0.67 |
| DESN076 | 0.24 | 0.28 | 0.05 | 0.14 | 0.82 |
| <i>DESN077</i> | <i>1.02</i> | <i>0.45</i> | <i>-0.58</i> | <i>0.68</i> | <i>0.39</i> |
| DESN079 | 0.35 | 0.34 | -0.03 | 0.26 | 0.62 |
| <i>DESN083</i> | <i>0.99</i> | <i>0.45</i> | <i>-0.54</i> | <i>0.75</i> | <i>0.27</i> |
| <i>DESN084</i> | <i>1.16</i> | <i>0.54</i> | <i>-0.6</i> | <i>0.8</i> | <i>0.2</i> |
| DESN092 | 0.41 | 0.54 | 0.15 | 0.39 | 0.6 |
| DESN093 | 0.24 | 0.34 | 0.09 | 0.16 | 0.75 |
| DE0044R | 0.37 | 0.27 | -0.1 | 0.22 | 0.77 |

Tabelle 46: PMOst Szenario 2

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|----------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| <i>DEBE065</i> | 1.57 | <i>0.94</i> | <i>-0.64</i> | <i>1.02</i> | <i>0.28</i> |
| DEBE034 | 0.89 | 0.83 | -0.06 | 0.54 | 0.33 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.55 | -0.28 | 0.55 | 0.33 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.45 | -0.04 | 0.26 | 0.59 |
| <i>DEBB054</i> | 1.29 | <i>0.53</i> | <i>-0.75</i> | <i>0.94</i> | <i>0.25</i> |
| DEUB030 | 0.45 | 0.31 | -0.15 | 0.26 | 0.57 |
| DEMV012 | 0.68 | 0.53 | -0.15 | 0.49 | 0.51 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.39 | -0.24 | 0.38 | 0.75 |
| DESN093 | 0.48 | 0.49 | 0 | 0.22 | 0.61 |
| DESN079 | 0.69 | 0.52 | -0.17 | 0.41 | 0.66 |

B.5 Szenario 3

Tabelle 47: Stündliche PM2.5 Szenario 3

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.9 | -0.15 | 0.9 | 0.44 |
| DERP010 | 2.43 | 0.9 | -1.53 | 2.14 | 0.29 |
| DERP041 | 2.69 | 1.18 | -1.51 | 2.25 | 0.25 |
| DEST103 | 1.76 | 0.45 | -1.31 | 1.78 | 0.2 |
| DERP045 | 1.38 | 0.62 | -0.77 | 1.25 | 0.08 |
| DERP046 | 1.39 | 0.66 | -0.74 | 1.32 | 0.35 |
| DERP047 | 1.16 | 0.48 | -0.68 | 1.17 | 0.34 |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.66 | 0.98 | 0.25 |
| DEST077 | 0.8 | 0.45 | -0.35 | 0.8 | 0.43 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.61 | 0.51 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.27 | 0.56 | 0.68 |

Tabelle 48: Tägliche PM2.5 Szenario 3

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.9 | -0.15 | 0.67 | 0.59 |
| DERP010 | 2.43 | 0.9 | -1.54 | 1.84 | 0.45 |
| DERP041 | 2.69 | 1.18 | -1.52 | 1.89 | 0.4 |
| DEST103 | 1.76 | 0.45 | -1.3 | 1.49 | 0.38 |
| DERP045 | 1.38 | 0.62 | -0.75 | 1.02 | 0.13 |
| DERP046 | 1.39 | 0.66 | -0.74 | 1.07 | 0.57 |
| DERP047 | 1.16 | 0.48 | -0.68 | 0.95 | 0.59 |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.66 | 0.82 | 0.49 |
| DEST077 | 0.8 | 0.45 | -0.35 | 0.63 | 0.62 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.56 | 0.64 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.21 | -0.27 | 0.52 | 0.8 |

Tabelle 49: Stündliche PM10 Szenario 3

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.4 | 0.05 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.32 | 0.65 | 0.62 |
| DETH020 | 1.02 | 0.47 | -0.55 | 1.05 | 0.46 |
| DETH036 | 1.26 | 0.31 | -0.95 | 1.62 | 0.44 |
| DETH043 | 1.63 | 0.47 | -1.15 | 1.65 | 0.33 |
| DENW021 | 1.19 | 0.62 | -0.57 | 1.07 | 0.34 |
| DENW382 | 1.29 | 0.68 | -0.56 | 0.88 | 0.45 |
| DENW064 | 0.41 | 0.28 | -0.03 | 0.35 | 0.27 |
| DENW038 | 1.04 | 0.72 | -0.32 | 0.78 | 0.46 |
| DENW112 | 0.96 | 0.7 | -0.27 | 0.57 | 0.57 |

Tabelle 50: Tägliche PM10 Szenario 3

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.31 | 0.06 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.33 | 0.61 | 0.77 |
| DETH020 | 1.02 | 0.47 | -0.55 | 0.92 | 0.64 |
| DETH036 | 1.26 | 0.31 | -0.95 | 1.34 | 0.72 |
| DETH043 | 1.63 | 0.47 | -1.15 | 1.4 | 0.56 |
| DENW021 | 1.19 | 0.62 | -0.57 | 0.8 | 0.56 |
| DENW382 | 1.29 | 0.68 | -0.56 | 0.71 | 0.66 |
| DENW064 | 0.41 | 0.28 | -0.03 | 0.25 | 0.42 |
| DENW038 | 1.04 | 0.72 | -0.32 | 0.52 | 0.69 |
| DENW112 | 0.96 | 0.7 | -0.27 | 0.38 | 0.81 |

Tabelle 51: PM10 TOT Szenario 3

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN020 | 0.95 | 0.46 | -0.49 | 0.68 | 0.34 |
| DESN025 | 0.96 | 0.45 | -0.51 | 0.63 | 0.22 |
| DESN051 | 0.36 | 0.44 | 0.1 | 0.31 | 0.74 |
| DESN059 | 0.36 | 0.39 | 0.02 | 0.2 | 0.68 |
| DESN061 | 0.74 | 0.54 | -0.2 | 0.39 | 0.53 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|----------|-------|------|------|
| DESN074 | 0.2 | 0.27 | 0.07 | 0.21 | 0.67 |
| DESN076 | 0.24 | 0.29 | 0.05 | 0.14 | 0.82 |
| <i>DESN077</i> | <i>1.02</i> | 0.45 | -0.57 | 0.68 | 0.38 |
| DESN079 | 0.35 | 0.34 | -0.03 | 0.26 | 0.63 |
| <i>DESN083</i> | <i>0.99</i> | 0.46 | -0.54 | 0.75 | 0.27 |
| <i>DESN084</i> | <i>1.16</i> | 0.55 | -0.6 | 0.81 | 0.19 |
| DESN092 | 0.41 | 0.55 | 0.15 | 0.41 | 0.6 |
| DESN093 | 0.24 | 0.34 | 0.09 | 0.16 | 0.74 |
| DE0044R | 0.37 | 0.27 | -0.1 | 0.22 | 0.78 |

Tabelle 52: PMOst Szenario3

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|----------|-------------|-------|-------------|-------------|
| <i>DEBE065</i> | 1.57 | <i>0.97</i> | -0.61 | <i>1.01</i> | <i>0.27</i> |
| DEBE034 | 0.89 | 0.86 | -0.03 | 0.57 | 0.3 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.55 | -0.27 | 0.55 | 0.33 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.45 | -0.03 | 0.26 | 0.58 |
| <i>DEBB054</i> | 1.29 | <i>0.54</i> | -0.74 | <i>0.94</i> | <i>0.24</i> |
| DEUB030 | 0.45 | 0.31 | -0.14 | 0.25 | 0.58 |
| DEMV012 | 0.68 | 0.53 | -0.14 | 0.49 | 0.51 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.4 | -0.23 | 0.37 | 0.75 |
| DESN093 | 0.48 | 0.5 | 0.01 | 0.23 | 0.6 |
| DESN079 | 0.69 | 0.52 | -0.17 | 0.41 | 0.66 |

B.6 Szenario 4

Tabelle 53: Stündliche PM2.5 Szenario 4

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DERP007 | 1.05 | 0.9 | -0.15 | 0.9 | 0.43 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | <i>0.9</i> | <i>-1.54</i> | <i>2.14</i> | <i>0.29</i> |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | <i>1.18</i> | <i>-1.51</i> | <i>2.24</i> | <i>0.25</i> |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | <i>0.45</i> | <i>-1.31</i> | <i>1.78</i> | <i>0.19</i> |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | <i>0.62</i> | <i>-0.77</i> | <i>1.25</i> | <i>0.09</i> |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | <i>0.66</i> | <i>-0.74</i> | <i>1.33</i> | <i>0.34</i> |
| <i>DERP047</i> | <i>1.16</i> | <i>0.48</i> | <i>-0.68</i> | <i>1.18</i> | <i>0.33</i> |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.98 | 0.25 |
| DEST077 | 0.8 | 0.45 | -0.35 | 0.8 | 0.42 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.61 | 0.53 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.22 | -0.27 | 0.56 | 0.64 |

Tabelle 54: Tägliche PM2.5 Szenario 4

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|-------------|--------------|-------------|-------------|
| DERP007 | 1.05 | 0.9 | -0.15 | 0.67 | 0.59 |
| <i>DERP010</i> | <i>2.43</i> | <i>0.9</i> | <i>-1.54</i> | <i>1.84</i> | <i>0.45</i> |
| <i>DERP041</i> | <i>2.69</i> | <i>1.18</i> | <i>-1.52</i> | <i>1.88</i> | <i>0.4</i> |
| <i>DEST103</i> | <i>1.76</i> | <i>0.45</i> | <i>-1.3</i> | <i>1.49</i> | <i>0.39</i> |
| <i>DERP045</i> | <i>1.38</i> | <i>0.62</i> | <i>-0.76</i> | <i>1.02</i> | <i>0.14</i> |
| <i>DERP046</i> | <i>1.39</i> | <i>0.66</i> | <i>-0.74</i> | <i>1.08</i> | <i>0.56</i> |
| <i>DERP047</i> | <i>1.16</i> | <i>0.48</i> | <i>-0.68</i> | <i>0.95</i> | <i>0.58</i> |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.83 | 0.49 |
| DEST077 | 0.8 | 0.45 | -0.35 | 0.63 | 0.61 |
| DEST089 | 0.55 | 0.23 | -0.32 | 0.55 | 0.68 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.22 | -0.27 | 0.53 | 0.78 |

Tabelle 55: Stündliche PM10 Szenario 4

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.39 | 0.05 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.32 | 0.65 | 0.59 |
| DETH020 | 1.02 | 0.47 | -0.55 | 1.06 | 0.45 |
| DETH036 | 1.26 | 0.31 | -0.95 | 1.63 | 0.41 |
| DETH043 | 1.63 | 0.47 | -1.15 | 1.66 | 0.32 |
| DENW021 | 1.19 | 0.62 | -0.57 | 1.07 | 0.34 |
| DENW382 | 1.29 | 0.68 | -0.57 | 0.89 | 0.45 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.35 | 0.27 |
| DENW038 | 1.04 | 0.72 | -0.32 | 0.78 | 0.46 |
| DENW112 | 0.96 | 0.7 | -0.27 | 0.57 | 0.56 |

Tabelle 56: Tägliche PM10 Szenario 4

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.34 | 0.13 | 0.3 | 0.07 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.2 | -0.33 | 0.62 | 0.74 |
| DETH020 | 1.02 | 0.47 | -0.55 | 0.93 | 0.64 |
| DETH036 | 1.26 | 0.31 | -0.95 | 1.35 | 0.68 |
| DETH043 | 1.63 | 0.47 | -1.15 | 1.4 | 0.57 |
| DENW021 | 1.19 | 0.62 | -0.57 | 0.8 | 0.55 |
| DENW382 | 1.29 | 0.68 | -0.57 | 0.72 | 0.66 |
| DENW064 | 0.41 | 0.27 | -0.04 | 0.25 | 0.41 |
| DENW038 | 1.04 | 0.72 | -0.32 | 0.52 | 0.69 |
| DENW112 | 0.96 | 0.7 | -0.27 | 0.38 | 0.81 |

Tabelle 57: PM10 TOT Szenario4

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN020 | 0.95 | 0.46 | -0.48 | 0.67 | 0.34 |
| DESN025 | 0.96 | 0.45 | -0.51 | 0.63 | 0.21 |
| DESN051 | 0.36 | 0.44 | 0.1 | 0.3 | 0.72 |
| DESN059 | 0.36 | 0.39 | 0.02 | 0.22 | 0.63 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN061 | 0.74 | 0.54 | -0.2 | 0.38 | 0.52 |
| DESN074 | 0.2 | 0.27 | 0.08 | 0.21 | 0.66 |
| DESN076 | 0.24 | 0.29 | 0.05 | 0.14 | 0.79 |
| DESN077 | 1.02 | 0.45 | -0.57 | 0.68 | 0.39 |
| DESN079 | 0.35 | 0.34 | -0.02 | 0.27 | 0.6 |
| DESN083 | 0.99 | 0.46 | -0.53 | 0.75 | 0.27 |
| DESN084 | 1.16 | 0.55 | -0.6 | 0.8 | 0.2 |
| DESN092 | 0.41 | 0.55 | 0.15 | 0.4 | 0.59 |
| DESN093 | 0.24 | 0.34 | 0.09 | 0.16 | 0.72 |
| DE0044R | 0.37 | 0.27 | -0.1 | 0.24 | 0.73 |

Tabelle 58: PMOst Szenario 4

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------|----------|----------|-------|------|------|
| DEBE065 | 1.57 | 0.96 | -0.62 | 1.01 | 0.27 |
| DEBE034 | 0.89 | 0.85 | -0.04 | 0.56 | 0.31 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.54 | -0.28 | 0.56 | 0.33 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.44 | -0.05 | 0.25 | 0.6 |
| DEBB054 | 1.29 | 0.53 | -0.75 | 0.94 | 0.25 |
| DEUB030 | 0.45 | 0.3 | -0.15 | 0.27 | 0.55 |
| DEMV012 | 0.68 | 0.51 | -0.16 | 0.5 | 0.49 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.38 | -0.25 | 0.39 | 0.72 |
| DESN093 | 0.48 | 0.48 | 0 | 0.22 | 0.61 |
| DESN079 | 0.69 | 0.51 | -0.18 | 0.42 | 0.65 |

B.7 Szenario 5

Tabelle 59: Stündliche PM2.5 Szenario 5

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.76 | -0.29 | 0.94 | 0.42 |
| DERP010 | 2.43 | 0.76 | -1.68 | 2.26 | 0.28 |
| DERP041 | 2.69 | 0.79 | -1.9 | 2.5 | 0.26 |
| DEST103 | 1.76 | 0.43 | -1.32 | 1.8 | 0.2 |
| DERP045 | 1.38 | 0.65 | -0.73 | 1.24 | 0.08 |
| DERP046 | 1.39 | 0.69 | -0.7 | 1.31 | 0.33 |
| DERP047 | 1.16 | 0.45 | -0.7 | 1.19 | 0.33 |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.98 | 0.26 |
| DEST077 | 0.8 | 0.43 | -0.37 | 0.81 | 0.44 |
| DEST089 | 0.55 | 0.25 | -0.3 | 0.6 | 0.51 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.23 | -0.26 | 0.55 | 0.64 |

Tabelle 60: Tägliche PM2.5 Szenario 5

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.76 | -0.29 | 0.76 | 0.57 |
| DERP010 | 2.43 | 0.76 | -1.68 | 1.98 | 0.47 |
| DERP041 | 2.69 | 0.79 | -1.91 | 2.21 | 0.45 |
| DEST103 | 1.76 | 0.43 | -1.32 | 1.51 | 0.42 |
| DERP045 | 1.38 | 0.65 | -0.72 | 1 | 0.13 |
| DERP046 | 1.39 | 0.69 | -0.7 | 1.04 | 0.54 |
| DERP047 | 1.16 | 0.45 | -0.7 | 0.97 | 0.59 |
| DERP060 | 1.05 | 0.38 | -0.67 | 0.83 | 0.5 |
| DEST077 | 0.8 | 0.43 | -0.37 | 0.64 | 0.64 |
| DEST089 | 0.55 | 0.25 | -0.3 | 0.54 | 0.65 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.23 | -0.26 | 0.52 | 0.78 |

Tabelle 61: Stündliche PM10 Szenario 5

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.26 | 0.05 | 0.26 | 0.09 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.21 | -0.31 | 0.65 | 0.6 |
| DETH020 | 1.02 | 0.41 | -0.6 | 1.11 | 0.47 |
| DETH036 | 1.26 | 0.34 | -0.92 | 1.59 | 0.42 |
| DETH043 | 1.63 | 0.41 | -1.21 | 1.71 | 0.34 |
| DENW021 | 1.19 | 0.69 | -0.5 | 1.03 | 0.34 |
| DENW382 | 1.29 | 0.67 | -0.58 | 0.89 | 0.45 |
| DENW064 | 0.41 | 0.28 | -0.03 | 0.36 | 0.27 |
| DENW038 | 1.04 | 0.73 | -0.32 | 0.77 | 0.47 |
| DENW112 | 0.96 | 0.69 | -0.28 | 0.58 | 0.57 |

Tabelle 62: Tägliche PM10 Szenario 5

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.26 | -0.05 | 0.2 | 0.14 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.21 | -0.31 | 0.61 | 0.75 |
| DETH020 | 1.02 | 0.41 | -0.6 | 0.99 | 0.67 |
| DETH036 | 1.26 | 0.34 | -0.92 | 1.32 | 0.68 |
| DETH043 | 1.63 | 0.41 | -1.21 | 1.46 | 0.61 |
| DENW021 | 1.19 | 0.69 | -0.5 | 0.75 | 0.53 |
| DENW382 | 1.29 | 0.67 | -0.58 | 0.72 | 0.65 |
| DENW064 | 0.41 | 0.28 | -0.03 | 0.26 | 0.41 |
| DENW038 | 1.04 | 0.73 | -0.32 | 0.51 | 0.69 |
| DENW112 | 0.96 | 0.69 | -0.28 | 0.39 | 0.81 |

Tabelle 63: PM10 TOT Szenario 5

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN020 | 0.95 | 0.47 | -0.47 | 0.66 | 0.35 |
| DESN025 | 0.96 | 0.48 | -0.49 | 0.61 | 0.22 |
| DESN051 | 0.36 | 0.48 | 0.13 | 0.33 | 0.73 |
| DESN059 | 0.36 | 0.42 | 0.05 | 0.21 | 0.66 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|-------------|----------|-------|------|------|
| <i>DESN061</i> | <i>0.74</i> | 0.55 | -0.19 | 0.38 | 0.52 |
| DESN074 | 0.2 | 0.28 | 0.09 | 0.21 | 0.65 |
| DESN076 | 0.24 | 0.31 | 0.08 | 0.16 | 0.8 |
| <i>DESN077</i> | <i>1.02</i> | 0.48 | -0.55 | 0.66 | 0.4 |
| DESN079 | 0.35 | 0.35 | -0.01 | 0.27 | 0.6 |
| <i>DESN083</i> | <i>0.99</i> | 0.44 | -0.55 | 0.76 | 0.26 |
| <i>DESN084</i> | <i>1.16</i> | 0.56 | -0.58 | 0.79 | 0.2 |
| DESN092 | 0.41 | 0.56 | 0.17 | 0.41 | 0.59 |
| DESN093 | 0.24 | 0.37 | 0.11 | 0.19 | 0.7 |
| DE0044R | 0.37 | 0.3 | -0.07 | 0.21 | 0.76 |

Tabelle 64: PMOst Szenario 5

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------------|----------|----------|-------|------|------|
| <i>DEBE065</i> | 1.57 | 0.78 | -0.79 | 1.09 | 0.33 |
| DEBE034 | 0.89 | 0.7 | -0.19 | 0.5 | 0.39 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.54 | -0.28 | 0.55 | 0.33 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.44 | -0.05 | 0.25 | 0.59 |
| <i>DEBB054</i> | 1.29 | 0.5 | -0.78 | 0.96 | 0.27 |
| DEUB030 | 0.45 | 0.31 | -0.14 | 0.25 | 0.56 |
| DEMV012 | 0.68 | 0.53 | -0.14 | 0.49 | 0.5 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.42 | -0.21 | 0.36 | 0.76 |
| DESN093 | 0.48 | 0.52 | 0.04 | 0.25 | 0.6 |
| DESN079 | 0.69 | 0.53 | -0.16 | 0.41 | 0.65 |

B.8 Endergebnis

Tabelle 65: Stündliche PM2.5 Endergebnis

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.87 | -0.18 | 0.92 | 0.46 |
| DERP010 | 2.43 | 0.87 | -1.56 | 2.13 | 0.33 |
| DERP041 | 2.69 | 1.07 | -1.62 | 2.25 | 0.33 |
| DEST103 | 1.76 | 0.5 | -1.25 | 1.73 | 0.18 |
| DERP045 | 1.38 | 0.68 | -0.71 | 1.24 | 0.12 |
| DERP046 | 1.39 | 0.7 | -0.69 | 1.35 | 0.26 |
| DERP047 | 1.16 | 0.6 | -0.56 | 1.11 | 0.28 |
| DERP060 | 1.05 | 0.59 | -0.46 | 0.82 | 0.35 |
| DEST077 | 0.8 | 0.5 | -0.29 | 0.74 | 0.45 |
| DEST089 | 0.55 | 0.36 | -0.19 | 0.50 | 0.51 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.33 | -0.15 | 0.42 | 0.69 |

Tabelle 66: Tägliche PM2.5 Endergebnis

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DERP007 | 1.05 | 0.87 | -0.18 | 0.59 | 0.69 |
| DERP010 | 2.43 | 0.87 | -1.57 | 1.79 | 0.59 |
| DERP041 | 2.69 | 1.07 | -1.62 | 1.86 | 0.59 |
| DEST103 | 1.76 | 0.5 | -1.24 | 1.42 | 0.39 |
| DERP045 | 1.38 | 0.68 | -0.7 | 0.97 | 0.21 |
| DERP046 | 1.39 | 0.7 | -0.69 | 1.03 | 0.49 |
| DERP047 | 1.16 | 0.6 | -0.56 | 0.82 | 0.56 |
| DERP060 | 1.05 | 0.59 | -0.46 | 0.6 | 0.64 |
| DEST077 | 0.8 | 0.5 | -0.29 | 0.52 | 0.68 |
| DEST089 | 0.55 | 0.36 | -0.19 | 0.42 | 0.63 |
| DEUB005 | 0.49 | 0.33 | -0.15 | 0.36 | 0.85 |

Tabelle 67: Stündliche PM10 Endergebnis

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.42 | 0.22 | 0.66 | 0.06 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.34 | -0.19 | 0.46 | 0.70 |
| DETH020 | 1.02 | 0.47 | -0.55 | 1.05 | 0.41 |
| DETH036 | 1.26 | 0.43 | -0.82 | 1.51 | 0.35 |
| DETH043 | 1.63 | 0.47 | -1.15 | 1.65 | 0.30 |
| DENW021 | 1.19 | 0.79 | -0.41 | 1.05 | 0.28 |
| DENW382 | 1.29 | 0.83 | -0.27 | 0.85 | 0.35 |
| DENW064 | 0.41 | 0.4 | 0.09 | 0.41 | 0.37 |
| DENW038 | 1.04 | 0.84 | -0.21 | 0.80 | 0.40 |
| DENW112 | 0.96 | 0.83 | -0.14 | 0.62 | 0.51 |

Tabelle 68: Tägliche PM10 Endergebnis

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DEUB004 | 0.21 | 0.42 | 0.22 | 0.42 | 0.10 |
| DEUB030 | 0.53 | 0.34 | -0.19 | 0.39 | 0.83 |
| DETH020 | 1.02 | 0.47 | -0.55 | 0.89 | 0.66 |
| DETH036 | 1.26 | 0.43 | -0.83 | 1.20 | 0.61 |
| DETH043 | 1.63 | 0.47 | -1.15 | 1.37 | 0.62 |
| DENW021 | 1.19 | 0.79 | -0.4 | 0.72 | 0.47 |
| DENW382 | 1.29 | 0.83 | -0.27 | 0.57 | 0.54 |
| DENW064 | 0.41 | 0.4 | 0.09 | 0.28 | 0.55 |
| DENW038 | 1.04 | 0.84 | -0.21 | 0.50 | 0.59 |
| DENW112 | 0.96 | 0.83 | -0.14 | 0.38 | 0.72 |

Tabelle 69: PM10 TOT Endergebnis

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN020 | 0.95 | 0.71 | -0.33 | 0.62 | 0.27 |
| DESN025 | 0.96 | 0.57 | -0.42 | 0.64 | 0.22 |
| DESN051 | 0.36 | 0.57 | 0.21 | 0.47 | 0.70 |
| DESN059 | 0.36 | 0.52 | 0.14 | 0.30 | 0.71 |

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|---------|----------|----------|-------|------|------|
| DESN061 | 0.74 | 0.63 | -0.13 | 0.50 | 0.38 |
| DESN074 | 0.2 | 0.41 | 0.22 | 0.41 | 0.65 |
| DESN076 | 0.24 | 0.43 | 0.17 | 0.28 | 0.81 |
| DESN077 | 1.02 | 0.57 | -0.48 | 0.65 | 0.39 |
| DESN079 | 0.35 | 0.58 | 0.15 | 0.43 | 0.41 |
| DESN083 | 0.99 | 0.47 | -0.54 | 0.79 | 0.14 |
| DESN084 | 1.16 | 0.6 | -0.57 | 0.81 | 0.15 |
| DESN092 | 0.41 | 0.6 | 0.18 | 0.44 | 0.54 |
| DESN093 | 0.24 | 0.45 | 0.21 | 0.32 | 0.70 |
| DE0044R | 0.37 | 0.45 | 0.08 | 0.34 | 0.77 |

Tabelle 70: PMOst, Endergebnis

| Station | mean_obs | mean_mod | bias | rmse | cor |
|----------|----------|----------|-------|------|------|
| DEBE065 | 1.57 | 1.12 | -0.45 | 0.98 | 0.30 |
| DEBE034 | 0.89 | 1.04 | 0.15 | 0.72 | 0.35 |
| DEBB064 | 0.82 | 0.87 | 0.05 | 0.74 | 0.34 |
| DEBB053 | 0.49 | 0.77 | 0.28 | 0.66 | 0.49 |
| DEBB054 | 1.29 | 0.76 | -0.53 | 0.86 | 0.23 |
| DEUB030 | 0.45 | 0.55 | 0.10 | 0.43 | 0.55 |
| DEMV012 | 0.68 | 0.89 | 0.22 | 0.95 | 0.51 |
| EMEPDE44 | 0.63 | 0.70 | 0.08 | 0.41 | 0.75 |
| DESN093 | 0.48 | 0.69 | 0.21 | 0.43 | 0.51 |
| DESN079 | 0.69 | 0.94 | 0.25 | 0.78 | 0.55 |