

TEXTE

58/2013

Einfluss der Randbedingungen aus dem globalen Chemie-Transport-Modell TM5 auf das regionale Aerosol-Chemie-Transport-Modell REM-CALGRID

UMWELTFORSCHUNGSPLAN DES
BUNDESMINISTERIUMS FÜR UMWELT,
NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT

Forschungskennzahl 206 43 200/01
UBA-FB 001524/ANH,26

Einfluss der Randbedingungen aus dem globalen Chemie-Transport-Modell TM5 auf das regionale Aerosol-Chemie- Transport-Modell REM-CALGRID

**Teilbericht zum F&E-Vorhaben „Strategien zur
Verminderung der Feinstaubbelastung - PAREST“**

von

**Andreas Kerschbaumer
Katrin Hannig**

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

Im Auftrag des Umweltbundesamtes

UMWELTBUNDESAMT

Diese Publikation ist ausschließlich als Download unter
<http://www.uba.de/uba-info-medien/4533.html>
verfügbar.

Die in der Studie geäußerten Ansichten
und Meinungen müssen nicht mit denen des
Herausgebers übereinstimmen.

ISSN 1862-4804

Durchführung der Studie:	Freie Universität Berlin Institut für Meteorologie Troposphärische Umweltforschung Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10 12165 Berlin
Abschlussdatum:	August 2010
Herausgeber:	Umweltbundesamt Wörlitzer Platz 1 06844 Dessau-Roßlau Tel.: 0340/2103-0 Telefax: 0340/2103 2285 E-Mail: info@umweltbundesamt.de Internet: http://www.umweltbundesamt.de http://fuer-mensch-und-umwelt.de/
Redaktion:	Fachgebiet II 4.1 Grundsatzfragen der Luftreinhaltung Johanna Appelhaus

Dessau-Roßlau, Juni 2013

1.	EINLEITUNG.....	1
2.	MODELLBESCHREIBUNG	3
2.1.	RCG	3
2.1.1.	Numerische Struktur – Gitterstruktur	3
2.1.2.	Gasphasenchemie.....	5
2.1.3.	Aerosole	6
2.1.4.	Trockene und nasse Depositionen	6
2.1.5.	Meteorologie	7
2.1.6.	Emissionen.....	7
2.1.7.	Anfangs- und Randbedingungen der Standard-RCG-Version.....	8
2.2.	TM5.....	9
2.2.1.	Numerische Struktur – Gitterstruktur	9
2.2.2.	Gasphasenchemie.....	10
2.2.3.	Aerosole	10
2.2.4.	Trockene und nasse Depositionen	11
2.2.5.	Meteorologie	11
2.2.6.	Emissionen.....	11
3.	KOPPLUNG TM5-RCG.....	12
3.1.1.	Horizontale Interpolation	12
3.1.2.	Vertikale Interpolation	14
3.1.3.	Zuordnung der Spezies: TM5 – RCG	15
4.	RESULTATE.....	19
4.1.	RCG mit Null-Randbedingungen	19
4.2.	Vergleich der beiden Modellversionen für Ozon: RCG-Standard vs. RCG- TM5	23
4.3.	Winter vs. Sommer	27
4.4.	Tagesgang	28
5.	FALLSTUDIE	31
6.	ZUSAMMENFASSUNG	38
7.	BIBLIOGRAPHIE.....	40

Abbildung 1: Das in dieser Studie verwendete RCG Rechengebiet mit horizontaler Auflösung von 0.5° in Ost-West-Richtung und 0.25° in Nord-Süd-Richtung.	4
Abbildung 2: Schematische Darstellung der Vertikalkoordinate: x-Achse: Stunde pro Tag, y-Achse: Höhe [m] über Grund. Mixing-layer: Mischungsschicht; mid-layer: Schicht zwischen Modellobergrenze und Mischungsschichtobergrenze. Top-layer: Reservoirschicht.....	5
Abbildung 3: TM5-Gitterstruktur: horizontal (links) und vertikal (rechts). Blaues Gitter: horizontale Auflösung von $6^\circ \times 4^\circ$, grünes Gitter: $3^\circ \times 2^\circ$ und rotes Gitter $1^\circ \times 1^\circ$	10
Abbildung 4: die in dieser Studie verwendete TM5-Gitterstruktur: horizontal (links) und vertikal (rechts). Grobes graues Gitter: horizontale Auflösung von $3^\circ \times 2^\circ$, feines graues Gitter: $1^\circ \times 1^\circ$ und rotes Gitter RCG-Horizontalauflösung von $0.5^\circ \times 0.25^\circ$	13
Abbildung 5: RCG Rechengebiet mit verwendetem horizontalem Rechengitter; Auflösung ist 0.5° in Ost-West-Richtung und 0.25° in Nord-Süd-Richtung. Die rot-markierten Zellen zeigen die Randzellen in der Simulation.	13
Abbildung 6: Schematische Darstellung der Vertikalkoordinate in RCG (links) und der Vertikalkoordinate in TM5 (rechts).	14
Abbildung 7: Mittlere Ozonbelastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005 aus dem Standardlauf (links) und angetrieben mit Null-Randbedingungen (rechts).	19
Abbildung 8: Mittlere NO_2 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005 aus dem Standardlauf (links) und angetrieben mit Null-Randbedingungen (rechts).	20
Abbildung 9: Differenz zwischen der mittleren NO_2 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005 aus dem Standardlauf und aus dem Lauf mit Null-Randbedingungen.	21
Abbildung 10: Mittlere SO_2 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005 aus dem Standardlauf (links) und angetrieben mit Null-Randbedingungen (rechts).	22
Abbildung 11: Mittlere O_3 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005, berechnet mit RCG (Standardversion) (links) und mit der gekoppelten RCG-TM5-Version (rechts).	23
Abbildung 12: Differenz der Ozonjahresmittelwerte [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] zwischen der gekoppelten RCG-TM5-Version und der RCG-Standard-Version.	24
Abbildung 13: Sommermittel (Juni, Juli, August) der O_3 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005, berechnet mit RCG (Standardversion) (links) und mit der gekoppelten RCG-TM5-Version (rechts).	25
Abbildung 14: Differenz der Ozonsommermittelwerte [%] zwischen der gekoppelten RCG-TM5-Version und der RCG-Standard-Version.	25
Abbildung 15: Wintermittel (Januar, Februar, März) der O_3 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005, berechnet mit RCG (Standardversion) (links) und mit der gekoppelten RCG-TM5-Version (rechts).	26
Abbildung 16: Differenz der Ozonwintermittelwerte [%] zwischen der gekoppelten RCG-TM5-Version und der RCG-Standard-Version.	26
Abbildung 17: NOAA-Index von 1900 bis 2005.	28
Abbildung 18: Tagesmittel (22. Juni 2005) der O_3 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, berechnet mit TM5 (Standardversion) (links) und mit RCG (Standardversion) (rechts).	28
Abbildung 19: Differenz der Ozontagesmittelwerte [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] zwischen der gekoppelten RCG-Standard-Version und der TM5-Standard-Version für den 22. Juni 2005.	29
Abbildung 20: Vergleich der Stundenmittel zwischen gemessenen Ozonwerten (orange Linie mit Dreiecken), simulierten Werten aus der RCG-Standard-Version (blaue	

Linie mit Rombus), aus der TM5-Standard-Version (magenta Linie mit Quadraten) und der gekoppelten RCG-TM5-Version (grüne Linie mit Rombus).	30
Abbildung 21: Satellitenaufnahme einer Staubwolke auf dem Weg aus der Sahara nach Europa, 28.07.2005. Quelle: http://earthobservatory.nasa.gov/NaturalHazards	31
Abbildung 22: Darstellung der Bodenwetterkarte, 28.07.2005, 00 UTC.	32
Abbildung 23: Darstellung der Bodenwetterkarte, 29.07.2005, 00 UTC.	33
Abbildung 24: Darstellung der Bodenwetterkarte, 30.07.2005, 00 UTC.	33
Abbildung 25: gemessene Feinstaubkonzentrationen an der Station Wien-Neustadt in [ug/m ³].	34
Abbildung 26: gemessene Feinstaubkonzentrationen an der Station Innsbruck-Reichenau in [ug/m ³].	34
Abbildung 27: Tagesmittelwert an mineralischem Feinstaub aus dem TM5-Modell: RCG-Ausschnitt (links) und erweiterter Ausschnitt (rechts).	35
Abbildung 28: Tagesmittelwerte an mineralischem Feinstaub, simuliert mit RCG-TM5, für den Zeitraum 22.Juli 2005 (oben links) bis 30. Juli 2005 (unten rechts).	36
Abbildung 29: Darstellung der wichtigsten Entstehungsgebiete von mineralischem Staub nach dem IPCC-Bericht).....	37

Tabelle 1: CBM-IV-und Aerosol-Spezies, wie sie in der Standardversion RCG als Anfangsbedingungen einfließen	15
Tabelle 2: CBM-IV- und Aerosol-Spezies, die im TM5-Modell berechnet werden.	17
Tabelle 3: Zuordnung der TM5-Spezies zu den RCG-Spezies.....	18

1. EINLEITUNG

Der Ferntransport von Schadstoffen über unterschiedliche Distanzen kann zu erhöhten Schadstoffkonzentrationen führen, die nicht unmittelbar mit lokalen Verursachern in Verbindung zu setzen sind. Dieser Transport kann nicht nur auf der kontinentalen sondern auch auf der hemisphärischen oder sogar der globalen Skala stattfinden. Die quantitative Bestimmung des Einflusses überregionaler und hemisphärischer Hintergrundkonzentrationen auf lokale Luftbeimengungen ist wichtig, will man realistische Minderungsstrategien für einzelne Gebiete ausarbeiten. In den letzten Jahren ist neben den kontinentaleuropäischen Transporten vor allem auch der interkontinentale Transport von Schadstoffen in den Mittelpunkt des wissenschaftlichen Interesses gerückt. Sowohl Beobachtungen als auch Modellrechnungen haben gezeigt, dass interkontinentaler Transport Ozon und dessen Vorläuferstoffe, feine Staubpartikel, Versäuerungssubstanzen, Quecksilber und schwer abbaubare organische Schadstoffe betrifft.

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

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

Bei Ozon scheint eher die allgemeine Zunahme des hemisphärischen Hintergrunds als der Beitrag einzelner Transportphänomene eine Rolle zu spielen. Die hemisphärischen Ozonkonzentrationen haben sich verglichen mit den vorindustriellen Konzentrationsniveaus um 50 bis 100% erhöht und auf Basis der gegenwärtig zur Verfügung stehenden Beobachtungen kann davon ausgegangen werden, dass die mittlere hemisphärische Ozonbelastung weiter ansteigen wird. Bei den Aerosolen und deren Vorläuferstoffen scheinen im Gegensatz zum Ozon episodisch auftretende Transportlagen den größten Beitrag zu den interkontinentalen Transporten zu liefern, da die hemisphärische Aerosolverteilung wegen der episodischen Emissionscharakteristik der Hauptverursacher (Waldbrände, Sandstürme) und der örtlich- und zeitlich stark variablen Wirkung der

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

nassen Entfernung sehr viel inhomogener als die von Ozon ist. Die Abschätzung dieser Transporte ist wegen der großen Kenntnislücken im Wissenstand zur Entstehung und des Transports von Aerosolen noch sehr viel unsicherer als für Ozon.

Sandstürme in der Sahara können bei entsprechenden Wetterlagen zur Erhöhung der Aerosolbelastung in Europa beitragen. Nach Modellrechnungen (Buitjes, 2005) beträgt der Beitrag von Saharastaub zum PM₁₀ im Jahresmittel circa 1 µg/m³, in Frühjahr circa 3 µg/m³. Nach dem Überblick von Buitjes (2005) lassen sich in Europa von den beobachteten 15 bis 30 µg/m³ PM_{2.5} circa 3% auf den transatlantischen Einfluss (US Quellen und internationaler Schiffsverkehr) und circa 1 % auf asiatische Quellen zurückführen.

Die meisten kontinentaleuropäischen Modellrechnungen benutzen als seitliche und obere Randbedingungen beobachtete mittlere Konzentrationsverteilungen und in manchen Fällen die Ergebnisse hemisphärischer oder globaler Transportmodelle (siehe dazu van Loon et al., 2004). Mit klimatologischen Randbedingungen lassen sich Transportphänomene naturgemäß nicht abbilden, der generelle hemisphärische Anstieg der Ozonkonzentrationen kann aber berücksichtigt werden. Auch Modellrechnungen, die als Randbedingungen auf hemisphärische Modellergebnisse zurückgreifen, benutzen diese oft nur als Mittelwert über Ort und Zeit (z.B. Monatsmittel). Mit der fortschreitenden Entwicklung der Globalmodellierung gewinnt die Koppelung von großräumigen Modellen mit Regionalmodellen eine immer größere Bedeutung, da die Auswirkungen globaler Minderungsstrategien auf die regionale Luftqualität nur mit Hilfe solcher Koppelungen untersucht werden können.

In diesem Bericht wird die Koppelung eines Globalmodells mit einem kontinentalen Modell vorgestellt. Es wird untersucht, wie weit die Prognosen der regionalen Luftqualität in Europa von der Wahl der Randbedingungen beeinflusst werden. Das mit Unterstützung des Umweltbundesamts entwickelte REM-CALGRID-Modell (RCG), das von der europäischen bis zur urbanen Skala eingesetzt werden kann (Stern, 2003; Stern, 2004) wurde dazu mit dem globalen TM5-Modell (Krol et al., 2005) koppelt. Beide Modelle sind dreidimensionale Gittermodelle, die alle für die Ozon- und Aerosolbildung wesentlichen physikalisch-chemischen Prozesse simulieren.

Das RCG-Modell wird normalerweise mit aus Beobachtungen abgeleiteten seitlichen und oberen Randbedingungen betrieben. Diese Randbedingungen sind für alle Spezies außer Ozon aus klimatologischen Standardwerten abgeleitet. Lediglich für Ozon werden aus einer von Logan (1998) erstellten Ozonklimatologie zeitlich (Monatsmittel) und räumlich variierende Randbedingungen benutzt.

Der Schwerpunkt des vorliegenden Berichts liegt in der Analyse des Einflusses der verschiedenen Randbedingungen auf die berechneten Bodenkonzentrationen von Ozon und PM₁₀. Eine Modellevaluierung hingegen war nicht Ziel dieser Studie.

Diese Studie baut auf die Diplomarbeit von Katrin Hannig auf, die am Institut für Meteorologie der Freien Universität Berlin durchgeführt worden ist. Die TM5-Modellergebnisse hingegen wurden von Arjo Segers an der TNO – Niederlande erzielt und der FU-Berlin freundlicherweise zur Verfügung gestellt.

2. MODELLBESCHREIBUNG

2.1. RCG

Das REM-CALGRID-Modell (RCG) ist ein dreidimensionales chemisches Transportmodell. Das Modell entstand aus der Verschmelzung des ursprünglich für die großräumige Skala entwickelten REM3 (Stern, 1994) und des für die urbane Skala entwickelten CALGRID-Modells (Yamartino et al., 1992). Das RCG-Modell kann zur Bestimmung der Luftqualität und des Eintrags von Schadstoffen in den Boden in der europaweiten und der nationalen Raumskala (Auflösungen von ca. 30x30 km² bis circa 7x7 km²) und in der urbanen Raumskala (Ballungsgebiet, Auflösung von ca. 1x1 km² und höher) verwendet werden. Die aus höher-skaligen Modellanwendungen abgeleitete Hintergrundbelastung wird als Randbedingung für kleiner skalige Berechnungen verwendet („one-way-nesting“). Die Berechnung erfolgt auf Stundenbasis für das ganze Jahr. Betrachtet werden alle relevanten Spurenstoffe in der Gasphase und deren chemische Reaktionen sowie die Feinstaubproblematik. Bei den Partikeln können neben der Gesamtsumme der Partikel < 10 µm (PM10) auch die Einzelkomponenten PM10-PM2.5, PM2.5, EC, OC, die anorganischen Sekundäraerosole SO₄, NH₄, und NO₃ sowie einige organische Aerosole getrennt ausgewiesen werden. Die Parametrisierungen der physikalisch/chemischen Prozesse erfolgten mit Modellierungsansätzen mittlerer Komplexität, um die auf Langfristberechnungen abzielende Anwendung des Modells gewährleisten zu können. In der praktischen Anwendung bedeutet dies, dass die physikalisch-chemischen Parametrisierungen so gewählt wurden, dass einerseits eine dem Problem angemessene Darstellung der relevanten Prozesse gewährleistet ist und andererseits der Rechenzeitbedarf des Modells eine Erstellung von Jahresläufen auf einem modernen PC gestattet.

2.1.1. Numerische Struktur – Gitterstruktur

Das RCG-Modell ist ein Eulersches Gittermodell in dem der Ausbreitungsraum mit einem dreidimensionalen Gitter überzogen wird an dessen Knotenpunkten die Massenkonzentrationen der Spurengase und Partikel berechnet werden.

Das Koordinatensystem ist flexibel und hat folgende Optionen für den Aufbau des Vertikalgitters:

- Dynamische Schichten mit einer beliebigen Anzahl von Schichten unterhalb und oberhalb der Mischungsschichthöhe. Die Schichtbewegung wird durch die Änderung der Mischungsschichthöhe gesteuert.
- Feste Schichten mit einer beliebigen Anzahl von Schichten.

In dieser Studie wurde das dynamische Vertikalkoordinatensystem gewählt.

Im Modell erfolgt eine numerische Lösung der dreidimensionalen Advektions-Diffusionsgleichung in der folgenden Form:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla \left[\left(\vec{v} C_i - \vec{k} \rho \nabla \left(\frac{1}{\rho} C_i \right) \right) \right] = 0$$

mit C_i der Schadstoffkonzentration der betrachteten Spezies i , \vec{v} dem Windvektorfeld, \vec{k} dem Diffusionstensor und ρ der atmosphärischen Dichte. Der Horizontaltransport wird mit dem von Walcek (2000) entwickeltem numerischen Verfahren berechnet, während der Vertikaltransport nach Yamartino et al. (2004) erfolgt.

Die horizontale Auflösung des RCG-Gitters in dieser hier beschriebenen Anwendung beträgt im europäischen Bereich rund 30x30 km², also 0,5° in West-Ost Richtung und 0,25° in Nord-Süd Richtung. Dabei entstehen zwischen Skandinavien, dem Atlantik, dem Mittelmeer sowie den osteuropäischen Staaten 82x125 Gitterkästen (Abbildung 1). Das Ausbreitungsgebiet erstreckt sich von 10,5° West bis 35° Ost sowie von 41,75° Nord bis 62,5° Süd über Mitteleuropa. Wie bereits erläutert, können in das großräumige europaweite Gebiet für regionale Untersuchungen ausgelegte kleinräumige Gitternetze genestet werden. Die Auflösung kann bis zu 1 x 1 km² erhöht werden. Die Hintergrundkonzentrationen des großräumigen Gitters liefern dabei die Randbedingungen für die regionale Skala.

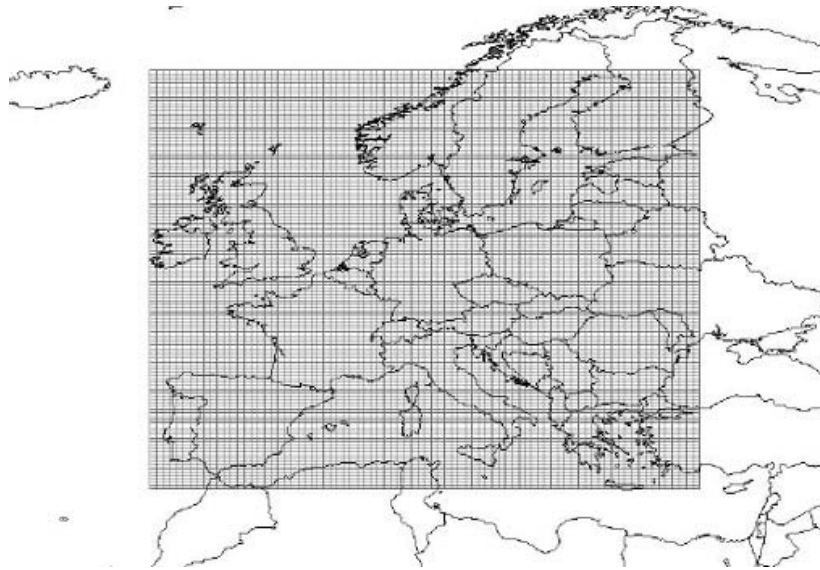


Abbildung 1: Das in dieser Studie verwendete RCG Rechengebiet mit horizontaler Auflösung von 0,5° in Ost-West-Richtung und 0,25° in Nord-Süd-Richtung.

In der Vertikalen wurden in der verwendeten Modellversion fünf Schichten festgelegt. Die erste Schicht erstreckt sich bis zu einer Höhe von konstant 20 m, die zweite bis zu 60 m. Die dritte Schicht wird zwischen 60 m und der variablen tageszeitabhängigen Mischungsschichthöhe eingeordnet. Oberhalb der Mischungsschichthöhe befindet sich die vierte Schicht mit einer variablen Obergrenze von maximal 3480 m. Die fünfte Schicht erreicht mit 3500 m die Obergrenze des Modells. In Abbildung 2 wird schematisch die Wahl der Vertikalschichtung dargestellt. Der Vorteil der gewählten Vertikalkoordinate liegt in der verminderten Anzahl an vertikalen Schichten, was die Rechenzeit erheblich mindert. Grundannahme dieser Koordinatenwahl muss aber sein, dass sich die Schadstoffe in der Mischungsschicht („mixing layer“) sehr schnell verteilen.

Die Untersuchung ist auf die ersten 3500 m limitiert, was für Schadstoffsimulationen in Bodennähe ausreicht. Die Reservoirschicht wird dabei zwischen Modellobergrenze und einer zwischen Mischungsschichtobergrenze und Modellobergrenze gelegten Schicht angenommen.

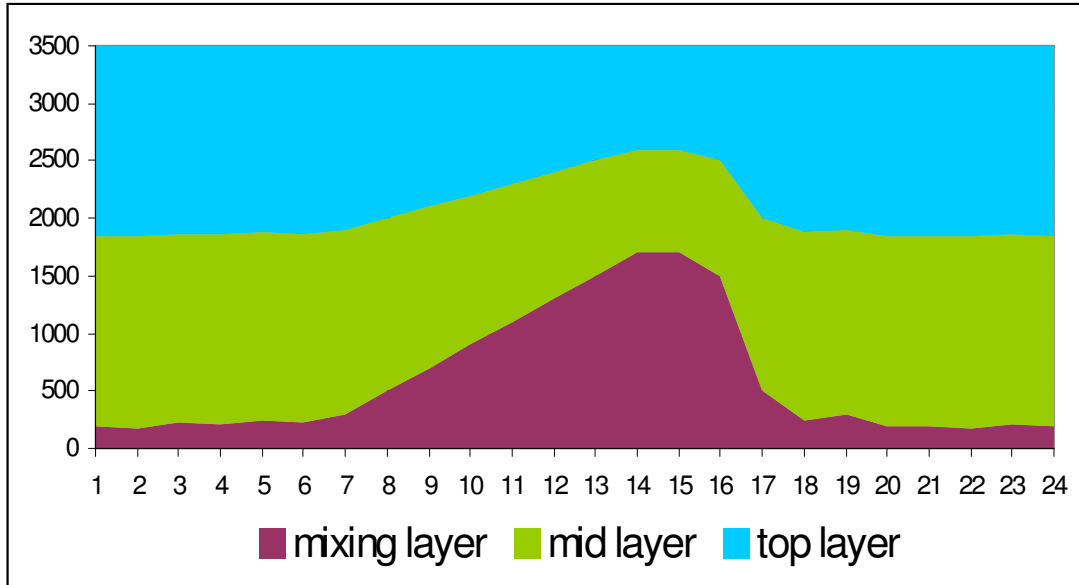


Abbildung 2: Schematische Darstellung der Vertikalkoordinate: x-Achse: Stunde pro Tag, y-Achse: Höhe [m] über Grund. Mixing-layer: Mischungsschicht; mid-layer: Schicht zwischen Modellobergrenze und Mischungsschichtobergrenze. Top-layer: Reservoirschicht.

2.1.2. Gasphasenchemie

Das RCG-Modell berechnet die chemischen Umwandlungen der gasförmigen Luftschadstoffe mit dem von Gery et al. (1989) entwickelten und von Carter (1996) um die Isopren-Komponente erweiterten CBMIV-Mechanismus. Der CBM-IV-Mechanismus umfasst als Schema unter anderem die Chemie der höheren Kohlenwasserstoffe. Die Kohlenwasserstoffe werden in Gruppen untergliedert, die sich aufgrund der Bindungseigenschaften der C-Atome unterscheiden. Der Lösungsansatz wird dabei auf ein iteratives Verfahren, der Euler-Rückwärts-Integration (EBI) zurückgeführt. Der photochemische Gasphasenmechanismus enthält auch die Gasphasenoxidation des Schwefeldioxids zu Schwefelsäure und eine einfache Parametrisierung der Nassphasenoxidation unter Berücksichtigung der O_3 - und H_2O_2 -Reaktionen in der Nassphase (Beekmann et al., 2007).

2.1.3. Aerosole

Die Aerosolbehandlung im RCG wird relativ einfach gehandhabt, um den Charakter eines operationell einsetzbaren Langfristmodells nicht zu verlieren. Das RCG-Modell unterscheidet folgende Partikelarten in dem Größenbereich kleiner 10 µm:

- a) primär emittierte anthropogene und natürliche Partikel (organisch und anorganisch),
- b) über chemisch/physikalische Prozesse aus anthropogenen und natürlichen Vorläuferstoffen sekundär gebildete organische und anorganische Partikel.

Die Emissionsdatenbasis liefert die primären PM10-Emissionen aufgeteilt in zwei Kategorien, PM10 gesamt und Partikel mit einem Durchmesser kleiner 2.5 µm (PM2.5). Die PM2.5-Emissionen werden mit Hilfe verursacherspezifischer Faktoren in die Untergruppen EC (Elementarer Kohlenstoff) und OC (Organischer Kohlenstoff) und einen mineralischen Rest (PM2.5prim) aufgeteilt (Beekmann et al., 2007). Diese Emissionen werden den vier Modellspezies PMCO = PM10 – PM2.5, EC, OC und RPM25 = PM2.5-EC-OC zugeordnet.

Das anorganische Aerosolmodul (ISORROPIA, Nenes et al., 1998) behandelt die thermodynamischen Gleichgewichtsreaktionen der Sulfat-, Nitrat-, Ammoniumaerosolkomponenten SO₄, NO₃, NH₄, sowie von Na und Cl in Abhängigkeit von Temperatur, Feuchte und den Gasphasenkonzentrationen von Salpetersäure, Schwefelsäure und Ammoniak. Das organische Modul (SORGAM, Schell et al., 2001) liefert die Konzentrationen der organischen Aerosole. Damit setzt sich das PM10 zusammen aus:

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

RPM25, PMCO, EC und OC bezeichnen die primären Aerosole, SIA und SOA die sekundären anorganischen und organischen Aerosole. Na und Cl sind die betrachteten Seesalzkomponenten. Dynamische Prozesse, die zur Größenänderung von Aerosolen beitragen, wie die Koagulation und die Kondensation, werden nicht betrachtet. Es zeigten Experimente mit dem EURAD-Modell, dass sich die PM10-Masse bei Vernachlässigung der Aerosol-Dynamik nur in geringem Maße ändert (Feldmann et al., 2006). Alle PM10-Komponenten werden transportiert und unterliegen der nassen und trockenen Deposition.

2.1.4. Trockene und nasse Depositionen

Die Entfernung von Schadstoffen aus der Atmosphäre wird im RCG-Modell über die Prozesse der trockenen und nassen Deposition behandelt. Betrachtet wird das Auswaschen mit dem Regenniederschlag (nasse Deposition) und die trockene Ablagerung von Partikeln und Gasen auf Pflanzen und anderen Oberflächen (trockene Deposition).

Die trockene Ablagerung von Gasen und Partikeln erfolgt durch Transport aus der atmosphärischen Grenzschicht zur Oberfläche, wo die Schadstoffe aufgenommen werden. Die Entfernung der Luftbeimengungen aus der Atmosphäre wird mit Hilfe der so genannten Depositionsgeschwindigkeit v_d beschrieben, die als das Verhältnis des in

Bodennähe höhenkonstanten Flusses der Luftbeimengung F_i zu deren Konzentration C_i in der Höhe z definiert ist:

$$v_d = F_i / C_i(z).$$

Konzeptionell wird die trockene Ablagerung im RCG-Modell damit analog zum Stromfluss durch einen elektrischen Schaltkreis über Widerstandsgesetze behandelt. Der Transport von Gasen durch die bodennahe Atmosphäre zu einer Oberfläche wird danach durch einen "atmosphärischen Widerstand" und einen "Oberflächenwiderstand" bestimmt.

Die nasse Deposition hingegen wird durch einfache Auswaschkoeffizienten parametrisiert, die von der Regenmenge abhängen. Die Auswaschkoeffizienten für Gase hängen des Weiteren von der Löslichkeit des Schadstoffes ab, die mit der Henry-Konstanten berechnet wird. Für Partikel werden konstante Auswaschkoeffizienten verwendet.

2.1.5. Meteorologie

Das RCG-Modell benötigt für das Modellgebiet in der gewählten Maschenweite folgende meteorologischen Größen:

Dreidimensionale Felder:

u,v-Komponenten des Windes

Temperatur

Feuchte

Dichte

Zweidimensionale Felder:

Bodentemperatur

Bodenwindgeschwindigkeit

Monin-Obukhov-Länge

Schubspannungsgeschwindigkeit

Mischungsschichthöhe

Der meteorologische Antrieb des Modells wird routinemäßig aus meteorologischen Beobachtungen mit dem am Institut für Meteorologie betriebenen Programmsystem TRAMPER (Tropospheric Realtime Applied Meteorological Procedures for Environmental Research) erstellt (Kerschbaumer und Reimer, 2003). Alternativ existieren Schnittstellen zu dem Output der prognostischen Modelle MM5 und COSMO_EU.

2.1.6. Emissionen

RCG benötigt Jahressummen an anthropogenen VOC-, NO_x-, CO-, SO₂-, NH₃-, PM₁₀- und PM_{2.5} – Emissionen, aufgeteilt auf Punkt- und Flächenquellen. VOC-Emissionen werden auf Massensbasis in CBMIV-Klassen aufgeteilt. Alle Emissionen werden im

RCG-Modell auf Stundenwerte skaliert. Dies ist sektoren-, wochentags- und stundenabhängig.

Die im RCG verwendeten Emissionsdaten für 2005 wurden aus dem EMEP-Länderdatensatz genommen und von der TNO nachbearbeitet.

2.1.7. Anfangs- und Randbedingungen der Standard-RCG-Version

Anfangs- und Randbedingungen werden entweder extern vorgegeben oder intern abgeleitet. Bei der internen Ableitung werden breitenabhängige und saisonabhängige klimatologische Hintergrundkonzentrationen verwendet. Die dazu verwendete Methodik entspricht der Vorgehensweise im EMEP-Modell (EMEP, 2003).

Anfangs- und Randbedingungen für Ozon werden aus der Ozon-Klimatologie von Logan (1998) abgeleitet. Bei genesteten Anwendungen können die Randbedingungen direkt aus den Berechnungen für die übergeordnete Skala übernommen werden.

2.2. TM5

Das TM5 (Krol et al., 2005) ist ein globales Chemie-Transportmodell. Entwickelt wurde die erste Version unter dem Namen TM2 von Heimann (1988). Danach folgten Veränderungen, wie z.B. die Einführung von Sigma-Druck-Flächen im TM3. In der neuesten Version, dem TM5, gibt es im Gegensatz zu den Vorgängern die Möglichkeit, in verschiedene Regionen hineinzuzoomen. Die TM5-Modellläufe wurden von A. Segers bei TNO für diese Studie in der nachfolgend beschriebenen Konfiguration durchgeführt und der FU-Berlin, Institut für Meteorologie, zur Verfügung gestellt.

2.2.1. Numerische Struktur – Gitterstruktur

Die Advektion von Schadstoffen wird mit einer Transportmethode berechnet, die ein Schema zweiter Ordnung beinhaltet. Die Methode ist in Russel and Lerner, 1981, beschrieben. Da das TM5 ein globales Gittermodell mit einer Längen-Breiten-Gitterstruktur ist, müssen in Polregionen Näherungen eingeführt werden. In Polnähe werden deshalb Gitterzellen in der Advektionsroutine massenerhaltend zusammengefasst. Das gesamte Gitternetz des TM5Modells hat eine globale Auflösung von $6^{\circ} \times 4^{\circ}$. Sechs Regionen darunter Europa, Afrika, Nord- und Südamerika, Australien und der Süden Asiens lassen sich bis zu einem $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ -Gitter auflösen (siehe zum Beispiel Abbildung 3). Dazwischen gibt es Regionen mit einer Auflösung von $3^{\circ} \times 2^{\circ}$. Die mittlere Auflösung ist dabei nur von geringem Interesse, sorgt aber für einen besseren Übergang zwischen der gröberen zur feineren Auflösung. Beim TM5 spricht man zudem von einem „zweifach-genesteten“ Modell. D.h., dass Hintergrundkonzentrationen einerseits die Randbedingungen für die höher aufgelösten Regionen darstellen, andererseits aber auch die Konzentrationen dieser höher aufgelösten Gebiete Werte für die globale Struktur liefern.

In der vertikalen Schichtung (Abbildung 3 – rechts) liefert das Modell des ECMWF 60 Sigma-Druckflächen. Alle Regionen teilen sich dabei die Vertikalschichten. Gearbeitet wird in der vorliegenden Modellversion mit 25 Hybrid-Sigma-Druck-Schichten, die aus den 60 Schichten des ECMWF-Modells transformiert wurden. Fünf Schichten befinden sich dabei in der Grenzschicht, jeweils zehn in der Troposphäre und Stratosphäre.

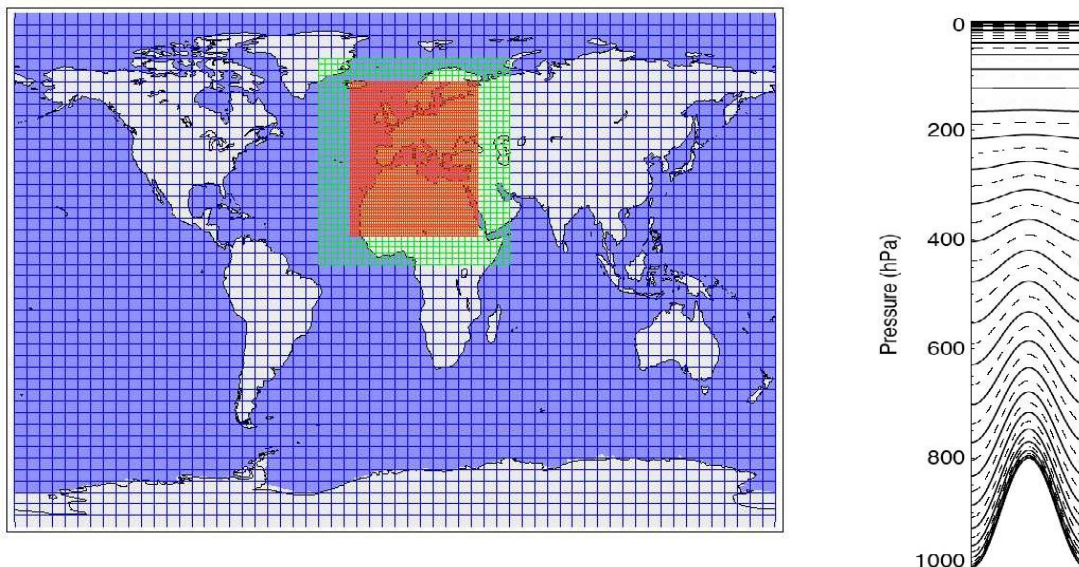


Abbildung 3: TM5-Gitterstruktur: horizontal (links) und vertikal (rechts). Blaues Gitter: horizontale Auflösung von $6^\circ \times 4^\circ$, grünes Gitter: $3^\circ \times 2^\circ$ und rotes Gitter $1^\circ \times 1^\circ$.

2.2.2. Gasphasenchemie

Chemische Spurengase, die in TM5 unter anderem berücksichtigt werden sind Ox ($\text{O}_3 + \text{O}$), NOx ($\text{NO}_2 + \text{NO}$), NOy (NO_x , HNO_3 , HNO_2 , NO_3 , N_2O_5 , PAN), SO_2 , und eine für den CBMIV-Mechanismus notwendige Unterklasse aller Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe (NMHC). Insgesamt werden 144 Gasphasen-Reaktionen und 48 Photolyse-Reaktionen gerechnet. Über look-up-tables werden temperaturabhängige Absorptionskoeffizienten und Quantenausbeute modifiziert. Dabei wird der gleiche CBM-IV-Mechanismus (Gery et al., 1989) wie in RCG verwendet, der wiederum mit der „Eulerian Backward Iterative“-Methode (Hertel et al., 1993) numerisch integriert wird.

2.2.3. Aerosole

In TM5 werden folgende Aerosolkomponenten behandelt: BC (black carbon – elementarer Kohlenstoff), POM (partikelförmige organische Materie), Mineralstaub, Seesalz, Sulfat, Nitrat und Ammonium. Die Mineralstäube sowie die Seesalzpartikel werden in einer log-normalen Verteilung in 2 Klassen (für Mineralstaub) bzw. 3 Klassen (für Seesalze) beschrieben (Vignati et al., 2005). Für die sekundären Aerosole NO_3 , SO_4 und NH_4 wird ein Gleichgewichtsmodell zwischen Gasphase und fester Phase unter Einbeziehung von Wasseraufnahme nach Metzger et al. (2002) benutzt. Sekundäre organische Aerosole werden mit so genannten Pseudoemissionen an organischen Aerosolen parametrisiert.

2.2.4. Trockene und nasse Depositionen

Die trockene Deposition wird nach Ganzeveld et al. (1998) parametrisiert. Die Nassdepositionen hingegen unterscheiden zwischen Prozessen, die in der Wolke vor sich gehen und Auswaschprozessen unterhalb der Wolke aufgrund der Niederschläge. Des Weiteren wird zwischen konvektiven und stratiformen Niederschlagsereignissen unterschieden. Details können in Guelle et al. (1998) und Jeuken et al. (2001) gefunden werden.

2.2.5. Meteorologie

Meteorologische Felder wurden vom Europäischen Zentrum für Mittelfristvorhersagen (EZMW) für das TM5 aufbereitet. Eine detaillierte Beschreibung der Methodik kann in Segers et al. (2002) nachgelesen werden. Des Weiteren kann TM5 nun auch über den am EZMW laufenden meteorologischen Koppler OASIS mit Chemie-Transport-Modellen verbunden werden (Flemming et al., 2007).

2.2.6. Emissionen

Als Datenbasis für anthropogene Emissionen diene in dieser Anwendung der globale EDGAR3.2 Datensatz (Olivier et al., 2001). Innerhalb des EDGAR-Systems können globale, regionale und nationale Emissionen in unterschiedlichen Formaten generiert werden. Dabei finden folgende Stoffe und Verursacher Verwendung:

- (a) fossile Brennstoffe und damit betriebene Quellen auf nationaler Ebene,
- (b) Biobrennstoffe und deren Quellen auf nationaler Basis,
- (c) industrielle Produktionsprozesse und gesamtwirtschaftlicher Verbrauch (auch Lösemittelproduktion) auf Länderbasis,
- (d) landnutzungsabhängige Quellen wie beispielsweise Abfallwirtschaft, zum Teil auf Gitterbasis, zum Teil auf Länderbasis und
- (e) natürliche Emissionen auf Gitterbasis.

3. KOPPLUNG TM5-RCG

Um die seitlichen und oberen Randbedingungen des RCG-Modells dynamisch zu gestalten und so die Darstellung von globalen Zusammenhängen zu verbessern, werden die Stoffkonzentrationen der Randgitterboxen verändert. Entlang der rot markierten Boxen in Abbildung 5 werden statt der im Standardmodell des RCG verwendeten Werte, die des TM5 eingelesen. Die Koppelung des globalen mit dem europaweiten Modell gelingt dabei durch verschiedene Interpolationen.

Als horizontaler Interpolationsansatz wurde die 4fach abstandsgewichtete Interpolation durchgeführt. Dabei werden die beiden Gitter „übereinander gelegt“. In jeder Schicht des RCG-Modells werden zu jeder Gitterbox die vier nächstgelegenen Kästchen des TM5-Modells gesucht und je nach Abstand mit der prozentualen Konzentrationsmenge des TM5-Modells gefüllt. Um vertikal zu interpolieren, wurden für die fünf Schichten des RCG-Modells jeweils die Schichtmittelpunkte sowie die Schichtdicken berechnet. Die der Höhe zugeordneten Schicht im TM5 wurde dann für das RCG übernommen. Eine zeitliche Interpolation war insofern nicht nötig, da das TM5 dreistündige Werte liefert (00.00h, 03.00h, 06.00h, 09.00h, 12.00h, 15.00h, 18.00h, 21.00h) und das RCG in der Lage ist, dreistündige Werte einzulesen. Es wurden chemisch aktive und inerte Spezies aus einem TM5-Lauf für das Jahr 2005 den RCG-Spezies molar-gewichtet zugewiesen.

3.1.1. Horizontale Interpolation

Das gesamte Gitternetz des TM5-Modells hat eine globale Auflösung von $6^\circ \times 4^\circ$. Sechs Regionen darunter Europa, Afrika, Nord- und Südamerika, Australien und der Süden Asiens lassen sich bis zu einem $1^\circ \times 1^\circ$ Gitter auflösen. Dazwischen gibt es Regionen mit einer Auflösung von $3^\circ \times 2^\circ$.

Abbildung 4 zeigt die in dieser Studie verwendete Modellgitterwahl. Da die Luftzusammensetzung in Nordamerika häufig Einfluss auf die Schadstoffkonzentrationen in Europa hat, wurde das $1^\circ \times 1^\circ$ -TM5-Gitter bis in diese Region erweitert. Des Weiteren sind in der hochaufgelösten TM5-Version auch die Wüstenregionen Nordafrikas und Zentralasiens beinhaltet. Die Randbedingungen für dieses $1^\circ \times 1^\circ$ -TM5-Gitter wurden von dem übergeordneten TM5-Lauf übernommen, der mit einer Auflösung von $3^\circ \times 2^\circ$ durchgeführt worden ist.

Der von TNO bereitgestellte $1^\circ \times 1^\circ$ -aufgelöste TM5-Lauf hat seinen süd-westlichsten Gitterpunkt bei -71.50° Länge und 20.50° Breite und umfasst 132 Gitterpunkte in West-Ost-Richtung und 56 Gitterpunkte in Süd-Nord-Richtung. Der RCG-Lauf hingegen war im Süd-Westen vom Gittermittelpunkt -10.5° Länge und 35° Breite begrenzt und hatte bei einer Auflösung von 0.5° in West-Ost-Richtung und 0.25° in Süd-Nord-Richtung 82 Gitterpunkte entlang eines Breitengrades und 125 Gitterpunkte entlang eines Längengrades. Die Zuordnung erfolgte über eine abstandsgewichtete Interpolation der 4 am nächsten liegenden TM5-Zellen zu jeder RCG-Zelle.

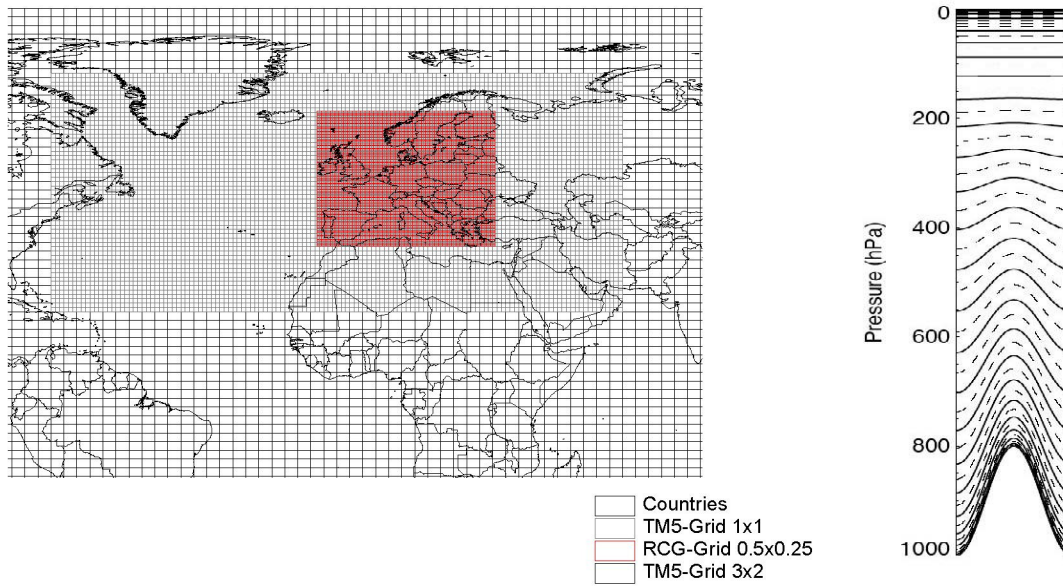


Abbildung 4: die in dieser Studie verwendete TM5-Gitterstruktur: horizontal (links) und vertikal (rechts). Grobes graues Gitter: horizontale Auflösung von 3°x2°, feines graues Gitter: 1°x1° und rotes Gitter RCG-Horizontalaufklärung von 0.5°x0.25°.

Die RCG-Randzellen sind in Abbildung 5 rot markiert. Für die Anfangsbedingungen wurden mit der selben Interpolationsroutine für die erste Simulationsstunde 1.1.2005, 0 Uhr nicht nur für die Randzellen, sondern für alle RCG-Zellen die TM5-Schadstoffkonzentrationen berechnet.

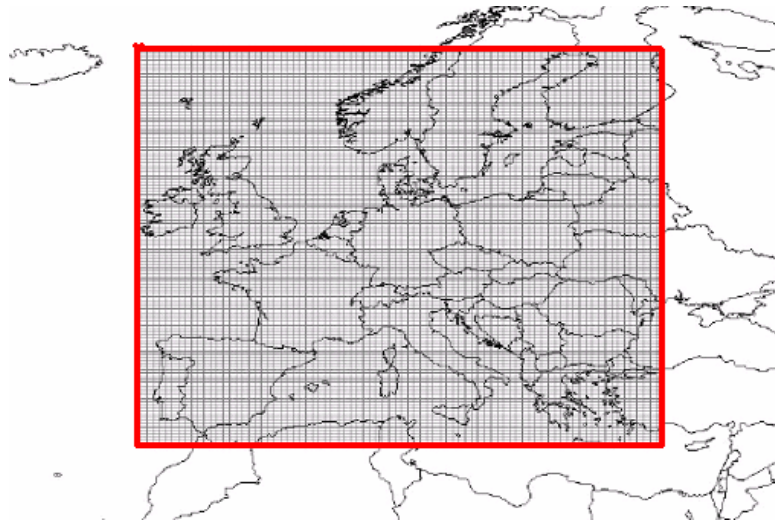


Abbildung 5: RCG Rechengebiet mit verwendetem horizontalem Rechengitter; Auflösung ist 0.5° in Ost-West-Richtung und 0.25° in Nord-Süd-Richtung. Die rot-markierten Zellen zeigen die Randzellen in der Simulation.

3.1.2. Vertikale Interpolation

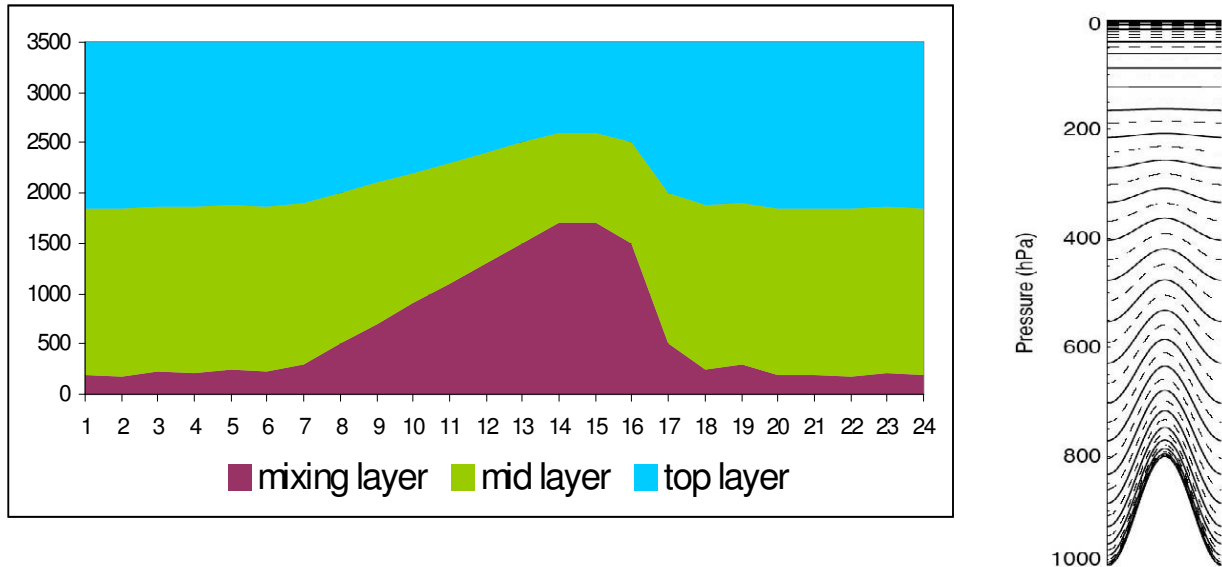


Abbildung 6: Schematische Darstellung der Vertikalkoordinate in RCG (links) und der Vertikalkoordinate in TM5 (rechts).

In Abbildung 6 wird nochmals die Problematik der unterschiedlichen Vertikalkoordinaten der beiden verwendeten Modelle dargestellt. RCG verwendet eine zeitlich variable Höhenschichtung, die von der Mischungsschichthöhe abhängt, TM5 hingegen verwendet eine dem EZMW-Modell konforme Hybrid-Sigma-Druckflächen angepasste Vertikalkoordinate. Um von TM5-Schichten auf RCG-Schichten interpolieren zu können, wurde entschieden, dass die TM5-Schadstoffkonzentrationen repräsentativ für die TM5-Schicht angesehen werden kann. Auch die Schadstoffkonzentrationen im RCG-System wurden repräsentativ für die jeweilige Schicht angenommen. Dies erlaubte eine Schadstoffzuordnung über die Vertikalschichtenmittelpunkte. Da aber RCG ein zeitlich variables System benutzt, das wiederum von der Meteorologie abhängt, musste für jeden TM5-Zeitschritt (3-stündlich) die dazugehörige Mischungsschichthöhe eingelesen werden. Die TM5-Sigma-Flächen mussten in z-orographie-folgende Koordinaten unter Berücksichtigung des Druckes und der Temperatur umgewandelt werden. Danach konnte eine Eins-zu-Eins-Zuordnung der Schadstoffkonzentrationen erfolgen.

3.1.3. Zuordnung der Spezies: TM5 – RCG

Tabelle 1 gibt die Anfangskonzentrationen der in der Standardversion RCG verwendeten Spezies wieder. Des Weiteren werden für bestimmte Spezies in der Kommentarspalte sowohl die Konzentrationen in ppb als auch in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ angegeben, da diese aus unterschiedlichen Datenbasen abgeleitet worden.

Tabelle 1: CBM-IV-und Aerosol-Spezies, wie sie in der Standardversion RCG als Anfangsbedingungen einfließen

Spezies	Molekulargewicht	Standardwert [ppb]	Kommentar
NO2	46	0.0001	
NO	30	0.0001	
O	16	1.00E-20	
O3	48	0.035	
NO3	62	1.00E-20	
O1D	16	1.00E-20	
OH	17	1.00E-20	
HO2	33	1.00E-20	
N2O5	108	1.00E-20	
HNO3	63	0.0001	
HONO	47	1.00E-20	
PNA	79	1.00E-20	
H2O2	34	1.00E-20	
CO	28	0.125	
FORM	30	1.00E-20	
ALD2	44	1.00E-20	
C2O3	75	1.00E-20	
XO2	1	1.00E-20	
PAN	121	1.00E-20	
PAR	14	0.001	
XO2N	1	1.00E-20	
ROR	31	1.00E-20	
NTR	130	1.00E-20	
OLE	27	1.00E-20	
ETH	28	1.00E-20	
TOL	92	1.00E-20	
CRES	108	1.00E-20	
TO2	109	1.00E-20	
TOLAER	92	1.00E-20	
OPEN	84	1.00E-20	
CRO	139	1.00E-20	
CSLAER	108	1.00E-20	
XYL	106	1.00E-20	
MGLY	72	1.00E-20	
XYLAER	106	1.00E-20	

ISOP	68	1.00E-20	
ISPD	70	1.00E-20	
SO2	64	3.80E-07	0.001 ug/m3 => 0.376e-6 ppm
SULF	96	1.25E-04	0.5 ug/m3 => 1.2537e-4 ppm
SULAER	96	1.00E-20	
TERP	56	1.00E-10	
TERPAER	56	1.00E-20	
PMCO	100	2.41E-06	0.01 ug/m3 => 2.40716e-6 ppm
PM25	100	2.41E-06	0.01 ug/m3 => 2.40716e-6 ppm
NH3	17	1.42E-05	0.01 ug/m3 => 1.41597e-5 ppm
NO3A	62	3.88E-06	0.01 ug/m3 => 3.88e-6 ppm
NH4A	18	1.42E-05	0.01 ug/m3 => 1.42e-5 ppm
SODA	23	1.00E-10	
CHLA	36.5	1.00E-10	
HCL	36.5	0.001	
BENZ	78	1.00E-10	
EC	100	2.41E-06	0.01 ug/m3 => 2.40716e-6 ppm
OC	100	2.41E-06	0.01 ug/m3 => 2.40716e-6 ppm
GAR1	150	1.60E-06	0.01 ug/m3 => 1.60477e-6 ppm
GAR2	140	1.72E-05	0.1 ug/m3 => 1.71939e-5 ppm
GOL1	193	1.23E-05	0.1 ug/m3 => 1.23444e-5 ppm
GAP1	198	1.23E-05	0.1 ug/m3 => 1.23444e-5 ppm
GAP2	193	1.23E-05	0.1 ug/m3 => 1.23444e-5 ppm
AAR1	150	1.72E-05	0.1 ug/m3 => 1.71939e-5 ppm
AAR2	140	1.72E-05	0.1 ug/m3 => 1.71939e-5 ppm
AOL1	193	1.23E-05	0.1 ug/m3 => 1.23444e-5 ppm
AAP1	198	1.23E-05	0.1 ug/m3 => 1.23444e-5 ppm
AAP2	193	1.23E-05	0.1 ug/m3 => 1.23444e-5 ppm
WBF1	100	1.00E-20	
WBCO	100	1.00E-20	
AERW	18	1.00E-20	
NO3C	62	1.00E-20	

Tabelle 2 listet die in TM5 berechneten und an die FU-Berlin übermittelten Schadstoffspezies in der Gasphase und in der festen Phase auf. Wie aus den beiden Tabellen ersichtlich wird, sind bei weitem nicht alle in RCG benutzten Spezies von TM5 berechnet worden. Deshalb wurde entschieden, für die nicht vorhandenen Spezies die Werte aus dem RCG-Standardlauf beizubehalten. Wie bereits erwähnt, berechnet TM5 die Seesalz- und die Mineralstaubkonzentrationen in unterschiedlichen 3 bzw. 2 log-normal-verteilten Klassen. Dabei werden Seesalze kleiner als 0.05 µm innerhalb einer Standardabweichung von 1.59 µm als SS1 gekennzeichnet, Seesalze größer als 0.05 µm und kleiner als 0.5 µm mit einer Standardabweichung von 1.59 µm als SS2 und Seesalze größer als 0.5 µm und einer Standardabweichung von 2 µm als SS3. Die Mineralstäube hingegen werden in DUST2 (Durchmesser zwischen 0.05 µm und 0.5 µm bei einer Standardabweichung von 1.59 µm) und in DUST3 (Durchmesser größer als 0.5 µm bei einer Standardabweichung von 2 µm) unterteilt.

Tabelle 2: CBM-IV- und Aerosol-Spezies, die im TM5-Modell berechnet werden.

Spezies	Molekulargewicht	Kommentar
NO2	46	
NO	30	
O3	48	
OH	16	
HNO3	47	
H2O2	34	
CO	28	
CH2O	30	
PAN	121	
PAR	14	
OLE	27	
ETH	28	
ISOP	68	
SO2	64	
SO4	96	Sulfataerosol
NH3	17	
NO3_A	62	Nitrataerosol
NH4	18	Ammoniumaerosol
SS1_M	23	$0.005 < r \leq 0.05 \mu\text{m}$, $\sigma = 1.59$
SS2_M	59	$0.05 < r \leq 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 1.59$
SS3_M	59	$r \geq 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 2.0$
BC	100	Elem. Kohlenstoff
POM	100	Primärer organ. Kohlenstoff
DUST2_M	100	$0.05 < r \leq 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 1.59$
DUST3_M	100	$r \geq 0.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 2.0$

In Tabelle 3 werden die in dieser Studie verwendeten Zuordnungen der TM5-Spezies zu den RCG-Spezies aufgelistet. Da beide Modelle in der Gasphase mit dem CBMIV-Mechanismus arbeiten, war die Zuordnung für die gasförmigen Schadstoffe eindeutig. Die Aerosolpartikel hingegen mussten für die Seesalze und die Mineralstäube auf die RCG-Klassen aufgeteilt werden. Da in TM5 sowohl alle Seesalz- als auch alle Mineralstaubklassen von der Größenverteilung her in die feine RCG-Fraktion ($< 2.5 \mu\text{m}$) fallen würden, wurde entschieden, die TM5-Größenverteilung, auch unter Berücksichtigung der Standardabweichungen, auf die beiden RCG-Größenverteilungen aufzuteilen. Des Weiteren werden in RCG alle Seesalze in der groben Fraktion (aerodynamischer Durchmesser zwischen $2.5 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$) angesiedelt, und es wird zwischen Chlorteilchen und Natriumteilchen unterschieden. Diese Unterscheidung gibt es in TM5 nicht. Deshalb wurde entschlossen 2/3 der Gesamtseesalzmasse Na-Partikeln zuzuweisen und 1/3 Cl-Partikeln. Diese Entscheidung wurde aufgrund der unterschiedlichen Größen der Seesalzkomponenten getroffen. Na-Partikel sind um ca. 1/3 größer (180 pm Atomradius) als Cl-Partikel (100 pm Atomradius). Bei den Mineralstäuben hingegen wurde beschlossen, dass DUST2 (Durchmesser $< 0.5 \mu\text{m}$) zur RCG-Klasse WBF1 (mineralische Feinstäube kleiner als $2.5 \mu\text{m}$) gerechnet, DUST3 hingegen (Durchmesser $> 0.5 \mu\text{m}$) zur RCG-Klasse WBCO (mineralische Feinstäube

größer als 2.5 µm) gezählt werden. Diese Entscheidung ist sicherlich physikalisch nicht genau, soll aber einer Unterscheidung zwischen feinen und groben TM5-Partikeln gerecht werden.

Tabelle 3: Zuordnung der TM5-Spezies zu den RCG-Spezies

TM5-Spezies	RCG-Spezies
NO2	NO2
NO	NO
O3	O3
OH	OH
HNO3	HNO3
H2O2	H2O2
CO	CO
CH2O	FORM
PAN	PAN
PAR	PAR
OLE	OLE
ETH	ETH
ISOP	ISOP
SO2	SO2
SO4	SULF
NH3	NH3
NO3_A	NO3A
NH4	NH4A
SS1m + SS2m + SS3m	(2/3)*SODA
SS1m + SS2m + SS3m	(1/3)*CHLA
BC	EC
POM	OC
DUST2m	WBF1
DUST3m	WBCO

4. RESULTATE

4.1. RCG mit Null-Randbedingungen

Um die Abhängigkeit unterschiedlicher Luftschadstoffe von den Randbedingungen zu untersuchen, wurde eine Studie mit dem RCG-Nulllauf durchgeführt. Beim so genannten RCG-Nulllauf wurden die seitlichen und die oberen Randbedingungen des RCG-Gitters auf Werte um annähernd Null gesetzt. Nur die meteorologischen Parameter sowie die Emissionen haben damit noch Einwirkungen auf die Konzentrationen der Stoffe im Untersuchungsgebiet. Dieser hypothetische Rechenlauf zeigt in der anschließenden grafischen Auswertung die lokalen Konzentrationen der verschiedenen Stoffe. Der Versuch der Darstellung der Realität rückt dabei in den Hintergrund. Wenn Stoffe aus dem Modellgitter heraustransportiert werden, dann senkt sich die Konzentration des Stoffes. Gleichzeitig werden aber keine Stoffe herantransportiert, so dass die Hintergrundkonzentration weiter sinkt. Zur Darstellung der Abhängigkeit eignet sich der Vergleich der Jahresmittelkonzentrationen. Die Versuchsreihe umfasst dabei die Stoffe Ozon, Stickstoffdioxid und Schwefeldioxid.

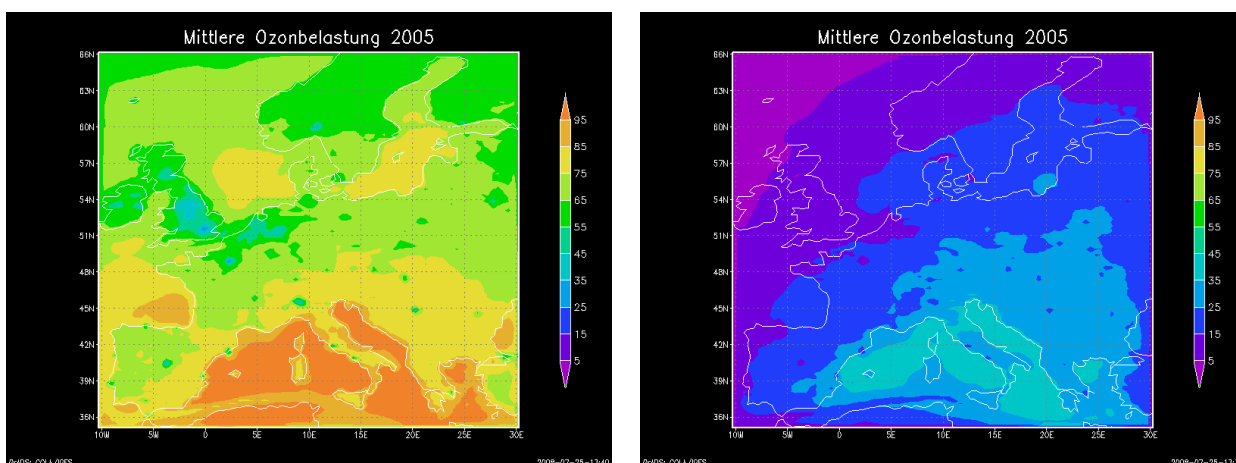


Abbildung 7: Mittlere Ozonbelastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005 aus dem Standardlauf (links) und angetrieben mit Null-Randbedingungen (rechts).

Abbildung 7 stellt die mittlere Jahreskonzentration an Ozon dar, die zum einen (links) mit Standard-Randbedingungen, zum anderen (rechts) mit Null-Randbedingungen berechnet worden ist. Das Ozonniveau sinkt von der standardmäßigen Berechnung von über $90 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über den Meeren auf maximale 30 bis $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über dem Mittelmeer. Vor allem über der Nordsee nimmt die berechnete Ozonkonzentration bei Vernachlässigung der Randbedingungen drastisch ab. Werden mit der Standard-Version dort Werte von über $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Jahresmittel berechnet und stellen dort ein räumliches Maximum dar, so werden diese Werte mit der RCG-Version mit Null-Randbedingungen minimal simuliert und liegen bei ca. $5\text{--}10 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Die Flächenverteilung ist dabei zum größten Teil unabhängig von der Jahreszeit. Sowohl im Sommer als auch im Winter werden die be-

rechneten Ozonwerte über der Nordsee minimal berechnet, wenn keine Ozonwerte über die seitlichen und oberen Randbedingungen in das Simulationsgebiet fließen. Die Niveaus zwischen den Jahreszeiten sind sehr unterschiedlich. Im Winter reicht der Einfluss der westlichen und nördlichen seitlichen Randbedingungen weiter in das zentrale Simulationsgebiet als im Sommer. Dies wird vor allem in den prozentualen Änderungen der berechneten Ozonwerte deutlich. Im Jahresmittel ist der Einfluss der Randbedingungen vor allem im Nordwesten des Simulationsgebietes, d.h. über der Nordsee, am stärksten und bedingt dort fast vollständig den Ozonaufbau. Am schwächsten ist der Einfluss in der Poebene, wo er auf ca. 50% im Jahresmittel geschätzt werden kann. Die Ozonbildung in Deutschland wird zu ca. 60% von den Ozonwerten an den Modellrändern bedingt. Es wird daran erinnert, dass auch die Randbedingungen am oberen Modellrand auf Null gesetzt worden sind. Es lässt sich jedoch ein klarer West-Ost-Gradient in der Einflussbedeutung der Randbedingungen auf das Ozonniveau erkennen. Des Weiteren lässt sich sehr deutlich eine Unterscheidung zwischen Land und Meer erkennen: über den Meeren ist der Einfluss größer als über Land. Dies ist vor allem im Winter ausgeprägt: während der kalten Jahreszeit tragen fast nur die Randbedingungen zu dem Ozonaufbau über Wasser bei. Die geringste Bedeutung haben die Randwerte auf die Poebene, die weitgehend abgeschirmt von maritimem Einfluss, infolge ihrer hohen Emissionen verbunden mit starker sommerlicher Einstrahlung eine autarke Ozonbildung zulässt.

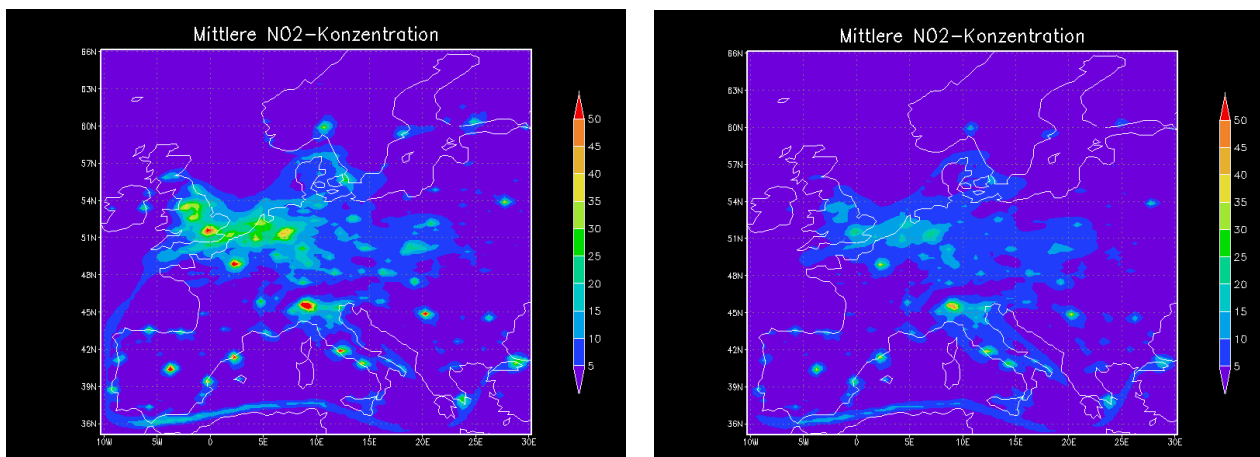


Abbildung 8: Mittlere NO_2 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005 aus dem Standardlauf (links) und angetrieben mit Null-Randbedingungen (rechts).

Abbildung 8 zeigt den Einfluss der Randbedingungen auf die NO_2 -Jahresmittelwerte, links mit den Standardwerten, rechts mit den Null-Werten. Die absolute Flächenverteilung der Stickstoffdioxide ist unabhängig von den Randbedingungen auf die Ballungsgebiete Europas konzentriert. Die maximale Höhe der jährlichen NO_2 -Werte wird von den Randwerten im Bereich der NO_x -Emissionsgebiete im Vergleich zu dem Lauf ohne Randwerte angehoben, was ein indirekter, vom Ozon verursachter Effekt ist. Die NO_2 -Randbedingungen sind für sich gesehen sehr niedrig (Größenordnung $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ oder weniger) und können die Anhebung alleine nicht verursachen. Der Lauf mit Null-Randbedingungen zeigt räumliche Maxima nur über den Ballungsgebieten, mit einem starken Konzentrationsgradienten zwischen Stadt und Land. Dieser Gradient wird über die Randwerte abgeschwächt, da die über die seitlichen und oberen Ränder

einströmenden Ozonmassen mehr NO in NO₂ umwandeln, was vor allem im Winter der dominierende Mechanismus der NO₂-Produktion ist. Auf eine Darstellung der prozentualen Änderungen wurde verzichtet, da für große Teile des Modellgebiets sehr geringe NO₂-Konzentrationen berechnet wurden, die aber sehr große, nicht interpretierbare relative Änderungen bewirken. Deshalb wurden nur die absoluten Differenzen dargestellt. Es ist deutlich ersichtlich (Abbildung 9), dass die absoluten Differenzen im Bereich der Ballungsgebiete am höchsten sind. Hier werden Änderungen aufgrund des Einflusses der Randwerte von über 20 µg/m³ berechnet. Dies sind bezogen auf die maximalen Jahresmittelwerte in den Ballungsgebieten Paris, London und Mailand von über 50 µg/m³ circa 20 bis 30% der berechneten Jahresmittelwerte des RCG-Standardlaufs.

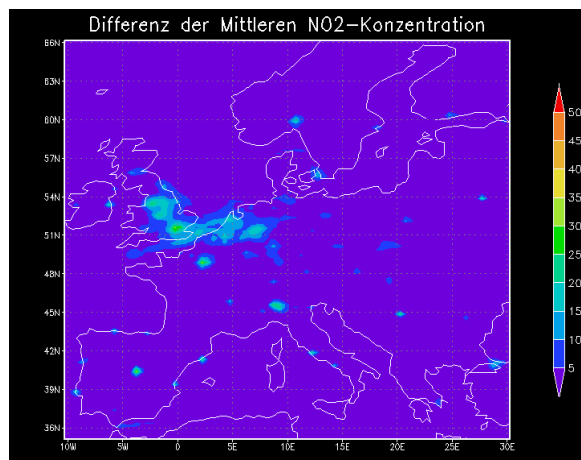


Abbildung 9: Differenz zwischen der mittleren NO₂-Belastung in µg/m³ für 2005 aus dem Standardlauf und aus dem Lauf mit Null-Randbedingungen.

Abbildung 10 zeigt den Einfluss der Randbedingungen auf die SO₂-Jahresmittelwerte, links mit den Standardwerten als Randbedingungen, rechts mit den Null-Randbedingungen. Es wird sehr deutlich, dass die seitlichen und oberen Randbedingungen einen sehr geringen Einfluss auf die Jahresmittelwerte an Schwefeldioxid im Untersuchungsgebiet haben. Die Maximalwerte liegen bei beiden Läufen im Süden von Bulgarien, lokal erhöhte Werte werden des Weitern in Serbien, Westrumänien, Südpolen, Mailand und im Nordwesten Spaniens simuliert, unabhängig von den Randbedingungen. SO₂ wird vor allem anthropogen aus Kohlekraftwerken und bei der Erdölverbrennung in die Luft eingespeist. Die Verweildauer von SO₂ in der Luft liegt bei ca. einer Woche, Abbauprozesse sind vor allem trockene Deposition oder Umwandlung zu SO₄ in der Nassphase. Die natürlichen Hintergrundkonzentrationen von SO₂ sind wie die von NO₂ sehr niedrig. Dies macht die Stoffe sehr lokal begrenzt. Im Unterschied zu NO₂ ist die Abhängigkeit von Ozon bei SO₂ sehr viel niedriger. Wurden die Stickstoffoxidabhängigkeiten von den Randbedingungen indirekt über die Ozonänderungen erklärt, so ist dies bei den Schwefeldioxidkonzentrationen nicht möglich.

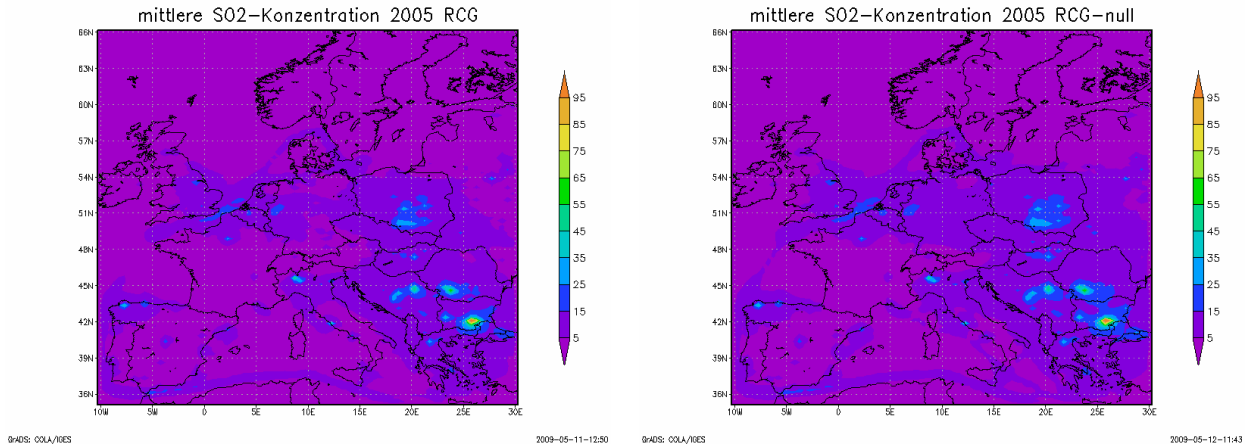


Abbildung 10: Mittlere SO₂-Belastung in µg/m³ für 2005 aus dem Standardlauf (links) und angetrieben mit Null-Randbedingungen (rechts).

Zusammenfassend lässt sich aus der Sensitivitätsstudie mit Null-Randbedingungen feststellen, dass Ozon bei Weitem die höchste Abhängigkeit von Randwerten zeigt, NO₂ deutlich weniger und diese Abhängigkeit lässt sich über die chemischen Reaktionen mit Ozon erklären, und SO₂ zeigte die geringste Abhängigkeit von den Randwerten. Dabei konnte auch gezeigt werden, dass prozentual im Winter die Einflüsse stärker sind als im Sommer, die Absolutwerte hingegen sind im Sommer für Ozon ausgeprägter als im Winter. Dies ist auf die schwächere Einstrahlung und deshalb auf die niedrigere Ozonproduktion im europäischen Winter zurückzuführen, wenn die überregionalen Phänomene sich deutlicher zeigen als die lokalen Episoden. Des Weiteren konnte auch festgestellt werden, dass die Schadstoffverteilung weitgehend unabhängig von den Randwerten ist. Bei SO₂ und NO₂ zeigen sich sehr deutlich die Abhängigkeiten der lokalen Emissionsquellen, bei Ozon hingegen lässt sich ein allgemeiner Trend von höheren Werten im Süden und niedrigeren Werten im Norden, sowie aufgrund des Titrationseffektes niedrigere Werte in NO₂-belasteten Gebieten ersehen. Nur über der Nordsee konnte eine Umverteilung der räumlichen O₃-Struktur aufgrund der Randbedingungen beobachtet werden: dies lässt sich auf die fehlenden Vorläuferstoffe über den Meeren und bei Null-Randbedingungen auch auf die fehlende Zufuhr von Ozon über die seitlichen und oberen Modellränder erklären.

4.2. Vergleich der beiden Modellversionen für Ozon: RCG-Standard vs. RCG-TM5

Wie in der Vorläuferstudie gezeigt, sind die höchsten Abhängigkeiten von Randwerten bei der Ozonsimulation zu erwarten. NO_2 wurde indirekt über die Ozonrandwerte beeinflusst, SO_2 hat keine Abhängigkeit von den Randwerten gezeigt. Deshalb wird sich die weitere Analyse auf O_3 beschränken. PM_{10} besteht im RCG-Modellsystem aus primären und sekundär-gebildeten Partikeln. In einer Fallstudie zum Einfluss von primären Saharastaubpartikeln auf die Luftgüte in Mitteleuropa wird auch auf diesen Luftschadstoff eingegangen.

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

- Standard-RCG-Modell mit den Randbedingungen aus klimatologisch abgeleiteten, monatlichen, höhen- und breitengradabhängigen Ozonwerten und den zeitlich interpolierten Werten aus den Anfangsbedingungen nach dem EMEP-Ansatz (EMEP, 2003) für alle anderen simulierten Spezies, im Weiteren als RCG-Standard-Version geführt, und
- RCG-Modell mit den seitlichen und oberen Randbedingungen abgeleitet aus den Ergebnissen der TM5-Rechnungen (RCG-TM5-Simulation).

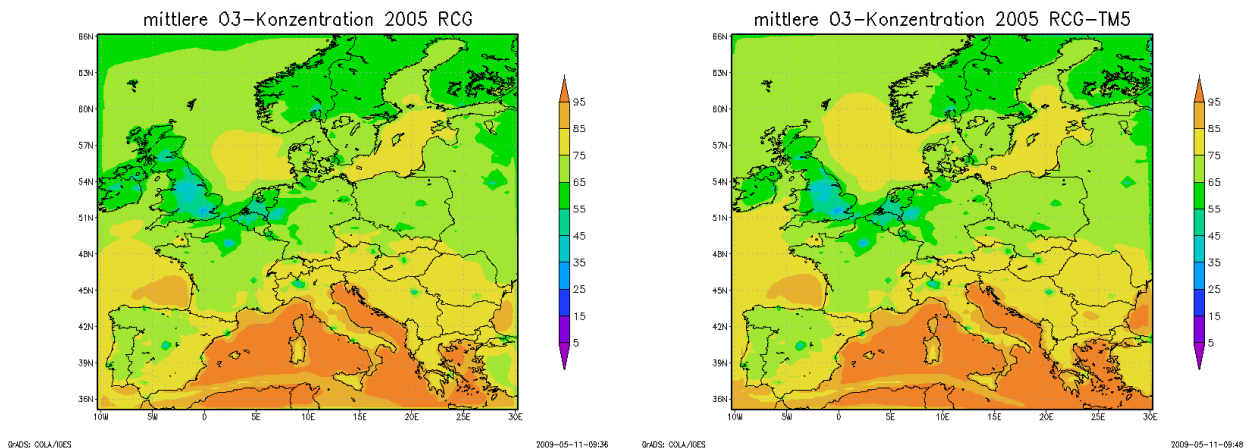


Abbildung 11: Mittlere O_3 -Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005, berechnet mit RCG (Standardversion) (links) und mit der gekoppelten RCG-TM5-Version (rechts).

Abbildung 11 zeigt die mittlere Ozonbelastung im Jahre 2005, berechnet mit der Standardversion des RCG (links) und mit RCG-TM5 (rechts). Die räumliche Verteilung ist bei beiden Läufen gleich: es werden erhöhte Ozonkonzentrationen vor allem über dem Mittelmeer und über Süd- und Südosteuropa berechnet. Da Ozon nicht auf Wasserflächen deponiert wird, sind über den Meeren Ozonanhäufungen zu verzeichnen. Des Weiteren

wird Ozon über die Strahlung produziert, wobei Stickoxide und flüchtige Kohlenwasserstoffverbindungen als Vorläuferstoffe erhöhte Ozonwerte im bodennahen Bereich zu verantworten haben. Dies wird sehr deutlich in den Modellsimulationen. Der sonnenreiche Süden Europas begünstigt die Ozonproduktion. Stickstoffmonoxid wird jedoch von dem starken Oxidansstoff Ozon zu Stickstoffdioxid umgewandelt, was für die Ozonbilanz einen Verlustterm bedeutet. Dies ist bei beiden RCG-Läufen vor allem in der emissionsstarken Po-Ebene zu sehen. Auch in den Ballungsgebieten von Paris, London und Mittelengland sowie im Ruhrgebiet fallen die Ozonkonzentrationen niedriger aus als in ländlich geprägten Gegenden. Diese Verteilung ist unabhängig von den Randwerten. Dass Stickoxide über den Titrationseffekt Ozon abbauen, wird auch sehr deutlich, sieht man sich das Mittelmeergebiet an. Auffallend ist der Streifen niedriger Ozonwerte entlang der Hauptschiffahrtslinien zwischen Gibraltar und dem Suez-Kanal.

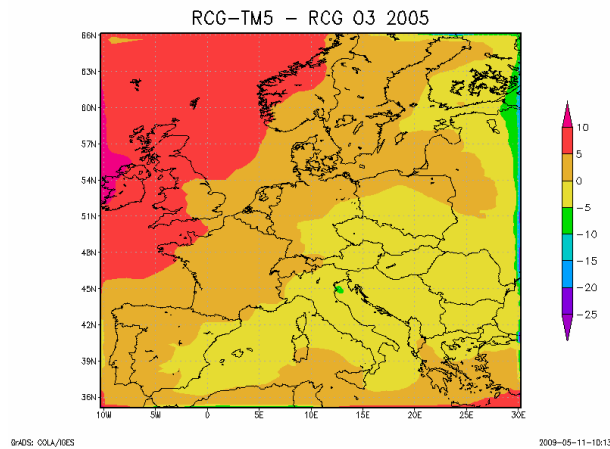


Abbildung 12: Differenz der Ozonjahresmittelwerte [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] zwischen der gekoppelten RCG-TM5-Version und der RCG-Standard-Version.

Vergleicht man nun die beiden Modellläufe miteinander (Abbildung 12), so sieht man, dass im Jahresmittel die höchsten Ozonzunahmen aufgrund der TM5-Randbedingungen im Nordwesten des Simulationsgebietes zu finden sind, und dass die niedrigsten Änderungen aufgrund unterschiedlicher Randbedingungen über dem Mittelmeerraum und über dem Südosten Europas zu finden sind. Im Osten des Modellgebietes werden niedrigere Ozonwerte mit RCG simuliert, wenn anstatt der Standard-Randwerte TM5-Werte verwendet werden. Die absoluten Änderungen betragen dabei im Nordwesten des Rechengebietes zwischen $+5$ und $+10 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die absoluten Änderungen an den östlichen Randgebieten betragen hingegen ca. $-5 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Der Einfluss auf Deutschland im Jahresmittel ist vernachlässigbar. Vergewegen wir uns nochmals, dass RCG-Standard seine Ozon-Randwerte aus dem Logan-Datensatz bezieht, der zu einem großen Teil auf die jahrelangen Messungen in Macehead (Irland) beruht, so lässt sich aus dieser Differenzdarstellung ableiten, dass das Jahr 2005 eher überdurchschnittliche Ozonwerte im Nordwesten Europas erfahren hat. Gehen wir davon aus, dass TM5 die allgemeine Jahresmittelkonzentration von Ozon zufrieden stellend für das Jahr 2005 simuliert hat, so muss festgestellt werden, dass die Logan-Ozonwerte nicht allgemeingültig als Randwerte eingesetzt werden können. Im Osten des Modellgebietes weichen die Ozonwerte zwischen klimatologisch-abgeleiteten Konzentrationen und von TM5-simulierten

Konzentrationen deutlich von einander ab. Hier gehen aber in den Logan-Datensatz weniger Messdaten ein. Auch ist der Einfluss sehr viel geringer auf benachbarte Gebiete. Dies liegt vor allem an der synoptischen Wettersituation in den mittleren Breiten, zu denen Europa gehört, die vor allem von Westwinden gekennzeichnet sind. Deshalb werden auch Schadstoffe im Jahresmittel eher von Westen nach Osten als umgekehrt transportiert.

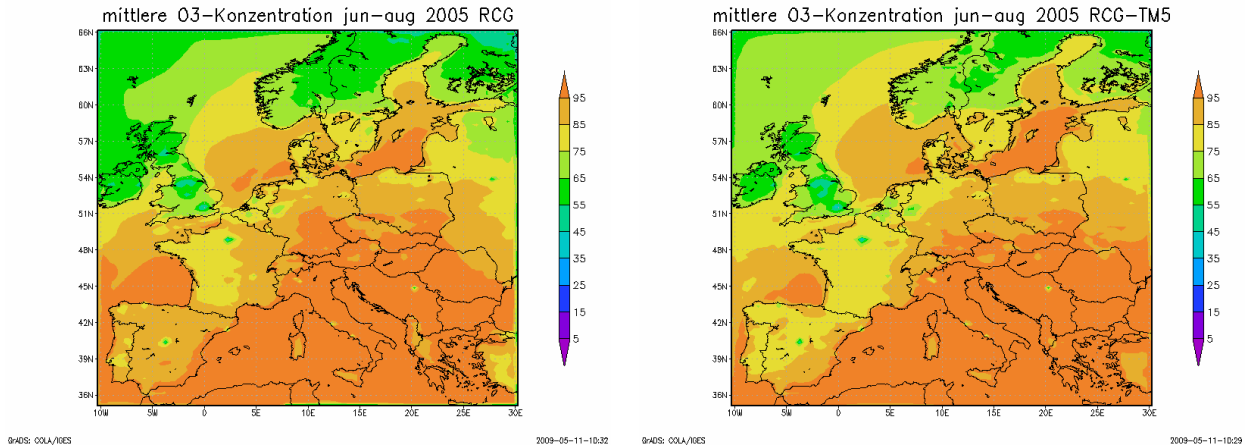


Abbildung 13: Sommermittel (Juni, Juli, August) der O₃-Belastung in µg/m³ für 2005, berechnet mit RCG (Standardversion) (links) und mit der gekoppelten RCG-TM5-Version (rechts).

Abbildung 13 zeigt die Ozonwerte für die Sommermonate Juni, Juli und August, die mit RCG-Standard (links) und mit RCG-TM5 (rechts) simuliert worden sind. Auffallend hier ist, dass es kaum Unterschiede zwischen den beiden Läufen gibt. Sowohl die räumliche Struktur als auch die Absolutwerte sind in den beiden Läufen sehr ähnlich. Maximale Ozonwerte werden über dem Mittelmeerbereich, Italien und Südosteuropa simuliert, Minima hingegen werden über Paris, Ruhrgebiet und im Allgemeinen über Nord- und Nordwesteuropa berechnet.

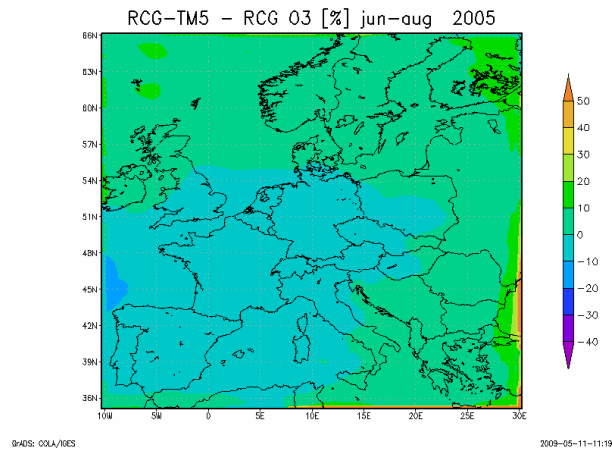


Abbildung 14: Differenz der Ozonsommermittelwerte [%] zwischen der gekoppelten RCG-TM5-Version und der RCG-Standard-Version.

Abbildung 14 zeigt die prozentualen Änderungen in den Ozonsimulationen aufgrund der unterschiedlichen Randbedingungen während der Sommermonate. Die Differenzen in den Sommermittelwerten für Ozon bewegen sich zwischen $\pm 10\%$ im gesamten Untersuchungsgebiet. Über Deutschland und Mitteleuropa sind die Änderungen noch kleiner, wenn unterschiedliche Randbedingungen das RCG-Modell antreiben.

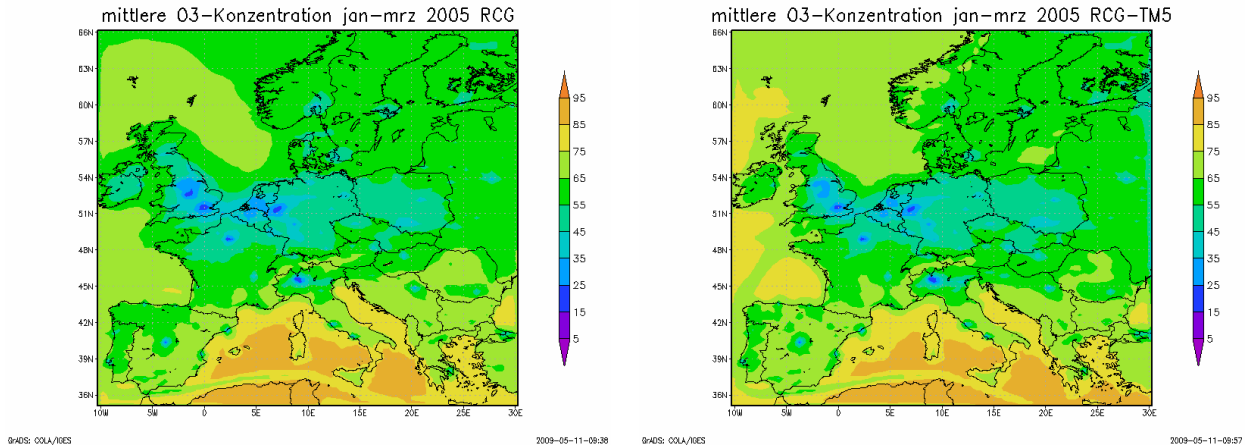


Abbildung 15: Wintermittel (Januar, Februar, März) der O₃-Belastung in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ für 2005, berechnet mit RCG (Standardversion) (links) und mit der gekoppelten RCG-TM5-Version (rechts).

Auch die Wintermonate Januar, Februar und März (Abbildung 15) scheinen sowohl von RCG-Standard als auch von RCG-TM5 sehr ähnlich simuliert zu werden, wenn es um den Luftschadstoff Ozon geht. Niedrigste Werte werden in den städtischen und emissionsreichen Ballungsgebieten Europas simuliert, Höchstwerte hingegen wiederum im Mittelmeerraum, und das unabhängig von den Werten, die als obere und seitliche Randbedingungen benutzt werden.

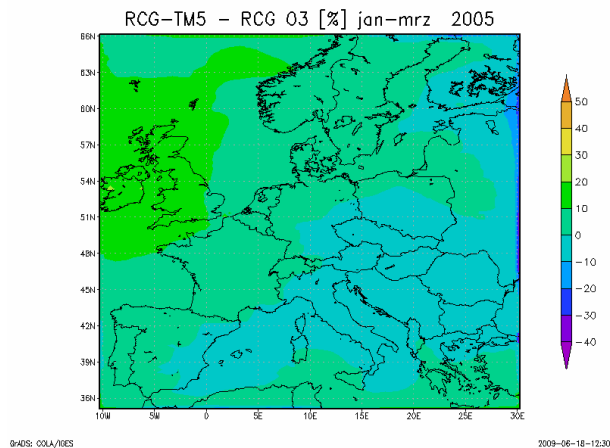


Abbildung 16: Differenz der Ozonwintermittelwerte [%] zwischen der gekoppelten RCG-TM5-Version und der RCG-Standard-Version.

Abbildung 16 zeigt die prozentuale Änderung der Ozonwintermittelwerte aufgrund der unterschiedlichen Randwerte. Im Winter ist prozentual der Einfluss im Westen höher als

im Sommer. Des Weiteren kann im Winter auch ein räumlicher Gradient zwischen Westen mit höheren O₃-Werten aus der RCG-TM5-Version und Osten mit niedrigeren O₃-Konzentrationen aus der RCG-TM5-Version im Vergleich zur RCG-Standard-Version festgestellt werden. Dies liegt an der stärkeren Westströmung im Winter als im Sommer. Mitteleuropa wird vor allem im Winter von Westwinden und Winterstürmen betroffen. Diese Luftmassen transportieren dann auch Schadstoffe, die in entfernten Gebieten ihren Ursprung haben können. Dass die Änderungen prozentual so akzentuiert sind mit bis zu 30% höheren Ozonkonzentrationen über dem Nordwesten des Rechengebietes hat auf der anderen Seite mit den absolut niedrigeren Ozonwerten im Winter gegenüber den Sommerwerten zu tun. Aufgrund der Tatsache, dass Ozon vor allem auch als Oxidans in der Atmosphäre Einfluss auf andere Komponenten hat, sei es auf NO₂ oder auch als Produzent von OH-Radikalen über luftchemische Reaktionen, sind auch die Winterwerte von Bedeutung, auch wenn sie niedrig sind. Deshalb ist es wichtig, auch im Winter die Ozonkonzentrationen so gut wie möglich zu simulieren. Dass dabei die Randbedingungen einen Einfluss haben, wurde mit dieser Studie gezeigt. Das Globalmodell TM5 ist dabei in der Lage, dem Regionalmodell RCG zeitlich variable Felder zu liefern, was wiederum zeitlich begrenzte Transportepisoden modellierbar macht. Werden hingegen Ozonrandwerte aus Klimareihen abgeleitet, können Episoden natürlich nie wiedergegeben werden. Aus der Unterscheidung zwischen Winter- und Sommermonaten ist klar geworden, dass prozentual der Winter mehr von Randwerten im Nordwesten Europas abhängt als der Sommer.

4.3. Winter vs. Sommer

Beim saisonalen Vergleich zeigten sich in Abbildung 14 und Abbildung 16 ähnliche Differenzen der beiden Modellversionen. Die Konzentrationen lagen in weiten Teilen des europäischen Kontinents bei Unterschieden um maximal 5%. Über dem Atlantik wurden dagegen Konzentrationsdifferenzen bis zu 10% dargestellt. Im Winter wurden die Unterschiede allerdings über einem weitaus größeren Gebiet festgestellt. Das deutet auf einen höheren Einfluss der hemisphärischen Bedingungen hin. Ein Grund für diesen Einfluss könnte die saisonal recht unterschiedliche Stärke der Westwinddrift sein. Im Sommer ist diese Strömung deutlich schwächer ausgeprägt als im Winter. Im nordhemisphärischen Winter 2005 herrschte außerdem eine positive NAO-Phase (siehe Abbildung 17). Die Nordatlantische Oszillation beschreibt die Schwankung des Luftdruckgegensatzes zwischen dem Islandtief im Norden und dem Azorenhoch im Süden. Diese Oszillationsbewegung beeinflusst die Wetter- und Klimabedingungen zwischen Nordamerika und Europa, ihre Auswirkungen reichen allerdings auch bis Sibirien. Einen besonders großen Einfluss hat die NAO auf die winterlichen Wetterbedingungen Europas. Unter anderem werden dabei die Westwinde verstärkt. Eine Verstärkung der Westwinde hätte damit auch einen Einfluss auf die Heranführung amerikanischen Ozons nach Europa.

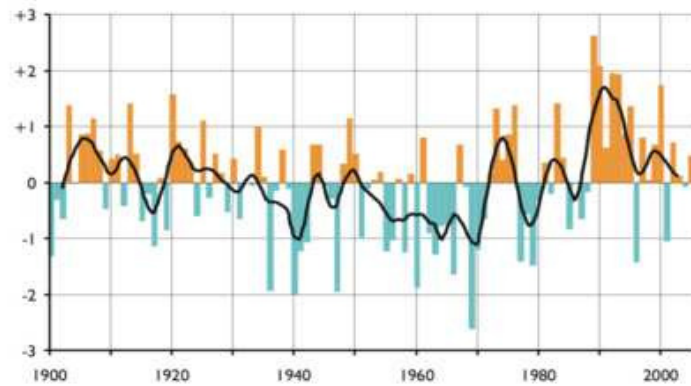


Abbildung 17: NOA-Index von 1900 bis 2005

4.4. Tagesgang

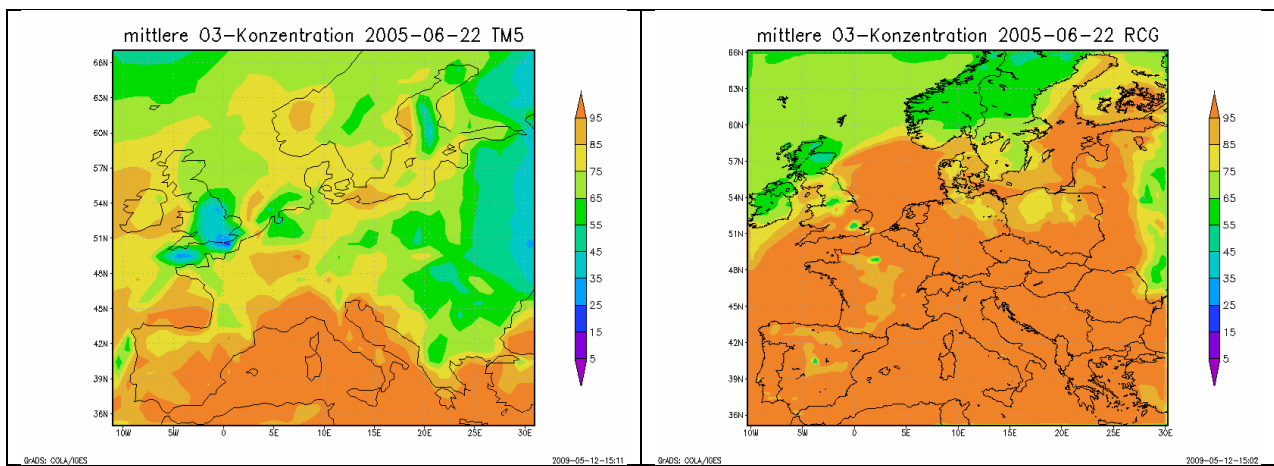


Abbildung 18: Tagesmittel (22. Juni 2005) der O₃-Belastung in µg/m³, berechnet mit TM5 (Standardversion) (links) und mit RCG (Standardversion) (rechts).

Abbildung 18 zeigt einen Tagesmittelwert (22. Juni 2005) für bodennahes Ozon, zum einen simuliert mit dem globalen TM5-Modell allein (rechts), zum anderen mit dem RCG-Standard-Modell, also mit den Randbedingungen aus dem Logan-Datensatz. Deutlich wird, dass TM5 weit niedrigere Ozonwerte über weiten Gebieten Europas simuliert als RCG. Dies ist zum einen auf die Gitterauflösung zurückzuführen, die bei TM5 bei 1°x1° liegt, während sie bei RCG bei 0.5°x0.25° liegt, zum anderen über die unterschiedlichen Vertikalkoordinaten, die bei RCG ein bodennahes Ozonanhäufen über die zeitlich variable z-Koordinate begünstigt, während bei TM5 über die Sigma-Flächen ein Austausch zwischen unterschiedlichen Höhen erschwert zustande kommt. Zwar ist die Darstellung nur auf einen Tag begrenzt und zeigt somit nur einen kleinen zeitlichen Ausschnitt aus dem Modelllauf, dennoch lassen sich interessante Schlüsse ziehen. Die

räumliche Auflösung schlägt sich vor allem in den Ballungsgebieten nieder: RCG-Standard simuliert in den Europäischen Großstädten Paris, London und Madrid für den 22. Juni im Vergleich zu den umliegenden Gebieten lokale Ozon-Minima, die beim gröber aufgelösten TM5-Modell nicht sichtbar sind. Im Allgemeinen sind in der RCG-Standard-Modellanwendung die Ozonkonzentrationen um ca. 20 bis 30% höher als bei TM5, auch an den Randzellen, die ja im RCG-Standard-Lauf aus den Klimadaten nach Logan stammen. TM5 simuliert also für diesen speziellen Tag im Sommer 2005 deutlich niedrigere Ozonkonzentration sowohl im Südwesten des Rechengebietes als auch im Osten als der Logan-Datensatz. Auch die übrigen Ränder werden von TM5 niedriger simuliert als die Klimadaten.

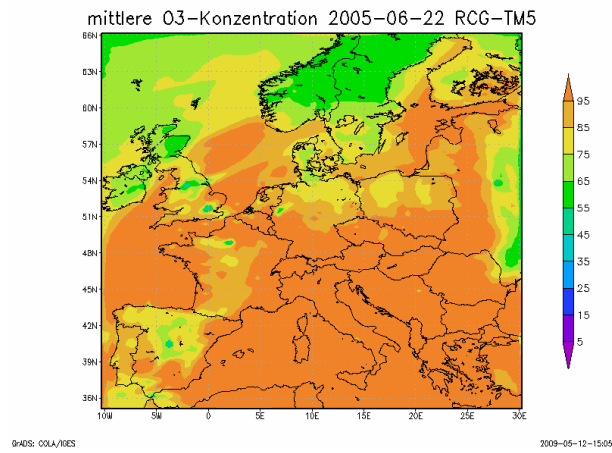


Abbildung 19: Differenz der Ozontagesmittelwerte [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] zwischen der gekoppelten RCG-Standard-Version und der TM5-Standard-Version für den 22. Juni 2005.

Abbildung 19 zeigt den Tagesmittelwert der Ozonkonzentration für den 22. Juni 2005 aus der gekoppelten RCG-TM5-Version. Die räumliche Struktur ist dabei dem RCG-Standard-Lauf konform, das allgemeine Konzentrationsniveau ist jedoch in dieser gekoppelten Version deutlich niedriger, was wiederum aus den niedrigeren Randwerten aus dem TM5-Lauf hergeleitet werden kann. Auch über Deutschland werden mit dem gekoppelten RCG-TM5-System bis zu 15% niedrigere Ozonwerte für diesen Tag vorhergesagt. Betrachten wir uns nun eine Messzeitreihe für diesen Tag und vergleichen die Werte mit den 3 unterschiedlichen Modellen bzw. Modellversionen (Abbildung 20), so sieht man, dass keines der Modelle das absolute Maximum um 12 Uhr mittags richtig simuliert hat. Als Messstation wurde Westerland auf Sylt gewählt. Diese Station ist in allen Modellkonfigurationen stark von maritimen Einflüssen gekennzeichnet, das heißt, kein Modell kann den lokalen Charakter der Insel in der Nordsee wiedergeben. Die Modelle können diese Landmasse im Meer aufgrund ihrer Gitterweite nicht auflösen. Da jedoch auch die Messstation auf Sylt stark vom Meer beeinflusst wird, soll bei diesem Vergleich die unterschiedliche Gitterauflösung zum Teil herausgefiltert werden, in dem alle Modelle, aber auch die Messung selbst, stark von der Nordsee beeinflusst sind.

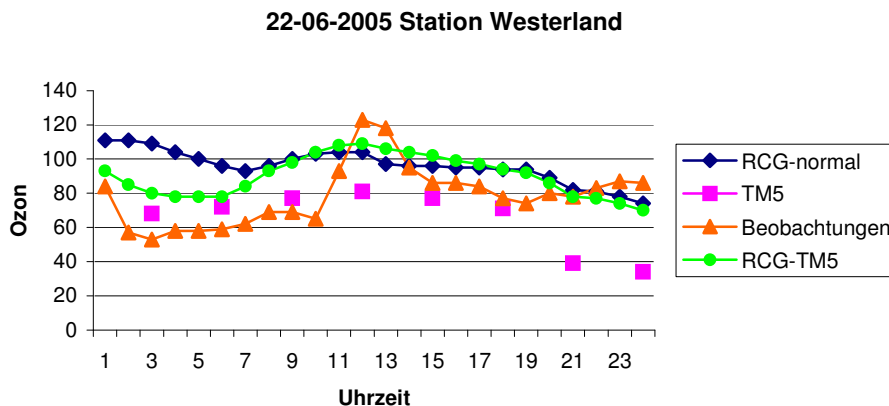


Abbildung 20: Vergleich der Stundenmittel zwischen gemessenen Ozonwerten (orange Linie mit Dreiecken), simulierten Werten aus der RCG-Standard-Version (blaue Linie mit Rombus), aus der TM5-Standard-Version (magenta Linie mit Quadraten) und der gekoppelten RCG-TM5-Version (grüne Linie mit Rombus).

Die Messung zeigt einen konstanten zeitlich Verlauf zwischen 2 Uhr morgens und 10 Uhr morgens, der von allen Modellversionen so auch wiedergegeben wird. Danach steigt die Beobachtungsreihe jedoch stark an, und zwar von ca. $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ während der späten Nachstunden auf über $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ zwischen 12 und 14 Uhr. Ab 15 Uhr fällt die Messkurve wiederum auf ca. $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ O_3 -Konzentration ab und bleibt auf diesem Niveau für den Rest des 22. Juni 2005. Das TM5-Modell hingegen simuliert durchgehend zwischen 3 Uhr morgens und 18 Uhr abends (TM5-Ergebnisse liegen nur 3stündig vor) Werte um $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die Nachstunden zwischen 21 Uhr und 24 Uhr des 22. Juni 2005 werden von TM5 mit ca. $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ berechnet. Das RCG-Standard-Modell hingegen simuliert die Nachstunden zwischen 1 Uhr und 6 Uhr morgens mit über $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$, was mit dem maritimen Charakter der RCG-Sylt-Zelle zu tun hat. Da Ozon nicht auf Wasserflächen deponiert, wird in der stabilen nächtlichen Grenzschicht über Wasser Ozon angehäuft. Dies wird von allen Modellen auch so simuliert. Um 7 Uhr morgens, mit Sonnenaufgang und dementsprechender höherer lokaler Turbulenz, simuliert RCG-Standard ein zeitliches Minimum an O_3 , danach werden bis 12 Uhr mittags Ozonanstiege berechnet, die ihr Maximum um ca. 12 Uhr finden. Die Nachmittags- und Abendstunden werden dann durch einen stetigen Ozonabbau simuliert, der auf die geringere Einstrahlung zurückzuführen sein dürfte. Im Vergleich zu den Messungen sind die nächtlichen Ozonwerte sowohl bei TM5, aber noch viel mehr bei RCG-Standard überschätzt. TM5 trifft das allgemeine nächtliche Niveau bei weitem besser als RCG-Standard, das mittägliche Maximum wird jedoch mit TM5 deutlich unterschätzt, während RCG-Standard zumindest den zeitlichen Anstieg richtig wiedergibt. Die gekoppelte RCG-TM5-Version behält den zeitlichen Charakter der RCG-Standard-Version bei, wird aber vor allem nachts durch die TM5-Randbedingungen auf ein niedrigeres Niveau gebracht. Tagsüber ändert sich nicht viel. Wie schon bei den jahreszeitlichen Untersuchungen und bei den räumlichen Untersuchungen, so kann auch an diesem Tagesverlauf festgestellt werden, dass TM5 die RCG-Simulation vor allem bei niedriger lokaler oder bei niedriger strahlungsbedingter Beeinflussung deutlich ändert, bei Situationen mit hoher Ozonproduktion hingegen kaum Einwirkungen auf den RCG-Lauf hat.

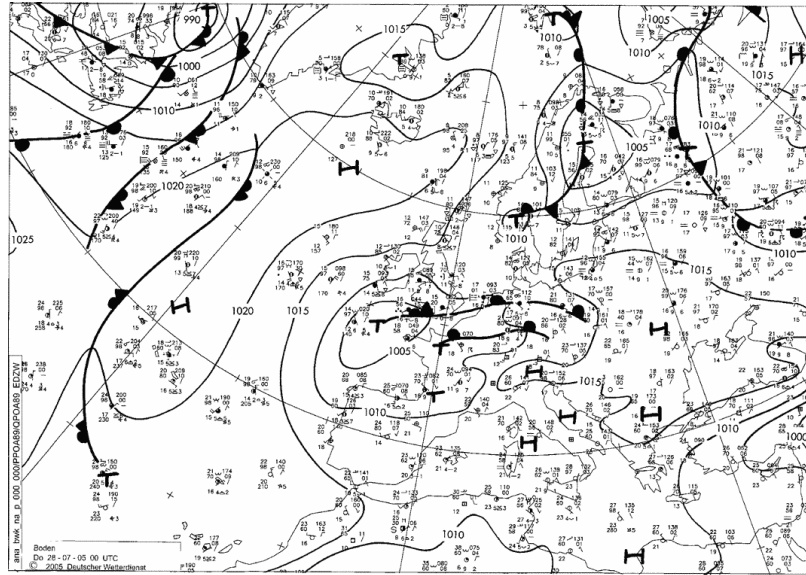
5. FALLSTUDIE

Pro Jahr werden bis zu fünf Milliarden Tonnen Staubteilchen oder Aerosolpartikel durch anthropogene und natürliche Prozesse in die Atmosphäre aufgewirbelt. 1,5 Milliarden Tonnen stammen dabei allein aus den Wüstengebieten der Erde. Davon gelangen 60% aus der größten Wüste, der Sahara in die höheren Luftschichten. In trockenen Dürreperioden werden noch mehr Staubteilchen aufgewirbelt und durch globale Windsysteme transportiert (Heinold et al., 2007).



Abbildung 21: Satellitenaufnahme einer Staubwolke auf dem Weg aus der Sahara nach Europa, 28.07.2005. Quelle: <http://earthobservatory.nasa.gov/NaturalHazards>.

Im Juli 2005 kam es über Süd- und Mitteleuropa zu einem Anstieg der Feinstaubkonzentration. Ab dem 27.07.2005 wurden an mehreren süd- und mitteleuropäischen Stationen allmählich ansteigende Feinstaubimmissionen gemessen. Ab dem 30.07.2005 ging die Konzentration rasch wieder zurück. Es wurde dabei ein großräumiges Ereignis des Ferntransports von Staubpartikeln aus der Sahara festgestellt (Abbildung 21). Gründe für diesen Partikeltransport über mehrere hundert oder tausende Kilometer sind Staubaufwirbelung und die jeweiligen meteorologischen Ausbreitungsbedingungen.



<http://www.wetter3.de>

Abbildung 22: Darstellung der Bodenwetterkarte, 28.07.2005, 00 UTC.

Vom 27.07.2005 bis zum 30.07.2005 herrschte in weiten Teilen Mittel- und Osteuropas Hochdruckeinfluss. Der Himmel zeigte sich abgesehen von vereinzelt Gewitterwolken meist strahlend blau. Zudem war es während dieser Zeit am Boden weitgehend schwachwindig. Über den Britischen Inseln befand sich zur genannten Zeit ein Tiefdruckgebiet (Abbildung 22), an dessen Vorderseite subtropische Warmluft nach Mitteleuropa herangeführt wurde. Dabei gab es einen Warmluftvorstoß vom nordafrikanischen Kontinent nach Europa in 850 hPa Höhe. Über der Sahara müssen einige Tage zuvor Staubteilchen z.B. durch einen Sturm aus der bodennahen Schicht aufgewirbelt worden sein. Dies geschieht meist durch einen Kaltluftvorstoß aus Europa in die Sahara. (Heinold et al., 2007). Die anschließende Erwärmung der Luft über dem afrikanischen Kontinent führt zu Labilisierung der herangeführten Luft und kann folgend zu Staubstürmen führen. Sandteilchen gelangen anschließend durch hinreichendes Aufsteigen in die troposphärischen Luftschichten. Die „Verweildauer“ der Partikel ist in der freien Atmosphäre deutlich erhöht. Durch das Fehlen von Niederschlag, der Hauptsenke des Feinstaubs, können die Teilchen über weite Strecken transportiert werden. Die aufgewirbelten Partikel gelangen mithilfe der trogvorderseitigen südlichen Windströmungen, nach Süd- und Mitteleuropa. Durch Winde wie z.B. den Scirocco oder den Föhn können Partikel sogar bis Nordeuropa transportiert werden.

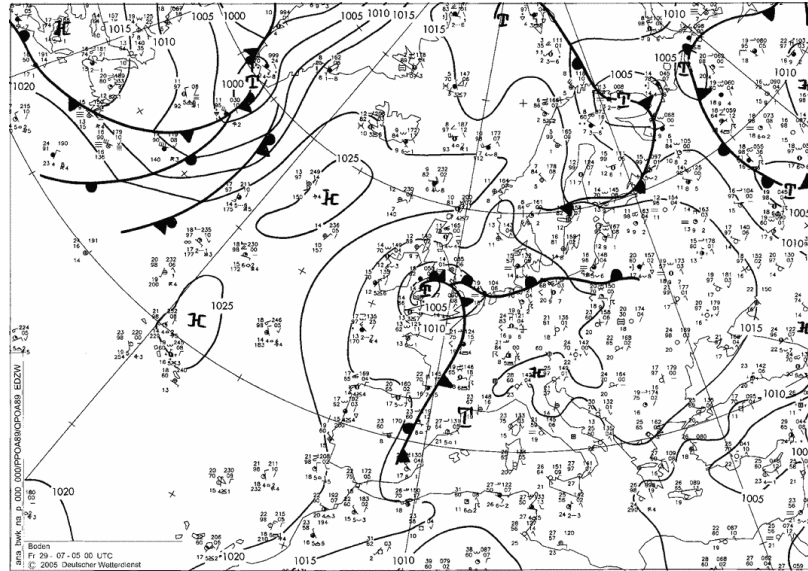


Abbildung 23: Darstellung der Bodenwetterkarte, 29.07.2005, 00 UTC.

In Mitteleuropa führte das meist schwachwindige Wetter in den ersten Tagen des oben genannten Staubevents zu verbreitetem Absinken der Teilchen und damit zu leicht erhöhten Messwerten. Von Westen her näherte sich das oben genannte Frontensystem an (Abbildung 23), dessen Kaltfront mit Niederschlägen am 30.07. und 31.07. (Abbildung 24) dann die Episode der erhöhten Feinstaubkonzentrationen über Mitteleuropa beendete.

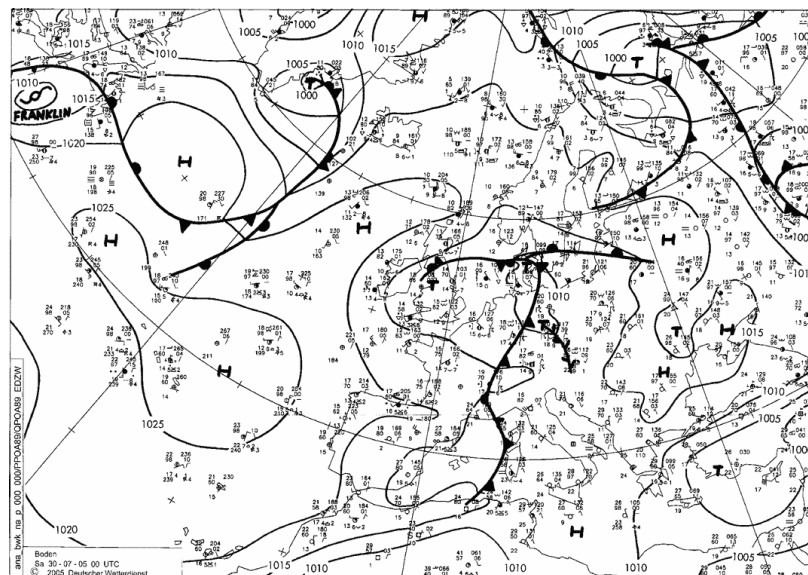


Abbildung 24: Darstellung der Bodenwetterkarte, 30.07.2005, 00 UTC..

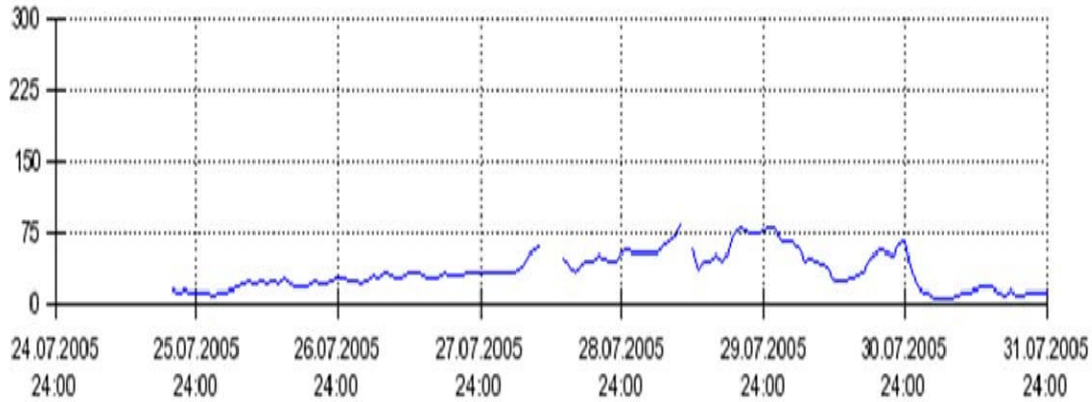


Abbildung 25: gemessene Feinstaubkonzentrationen an der Station Wien-Neustadt in [$\mu\text{g}/\text{m}^3$].

Die Abbildung 25 zeigt die gemessenen Feinstaubimmissionen an der Station Wien-Neustadt. Der Verlauf des Feinstaubereignisses zeigt sich deutlich. Während der ersten Tage findet ein allmählicher Anstieg der Konzentration statt, Staubpartikel werden herantransportiert und sinken aufgrund der Schwerkraft und geringer Windgeschwindigkeiten ab. Niederschläge waschen die Luft aus und nach dem Durchzug der Kaltfront gehen die Konzentrationen dann deutlich zurück. Am 31.07.2005 wurden an der Wiener Station wieder sehr geringe Werte gemessen.

Auch an der Innsbrucker Station Reichenau zeigte sich der erhöhte Feinstaubeintrag während des oben genannten Zeitraums (Abbildung 26).

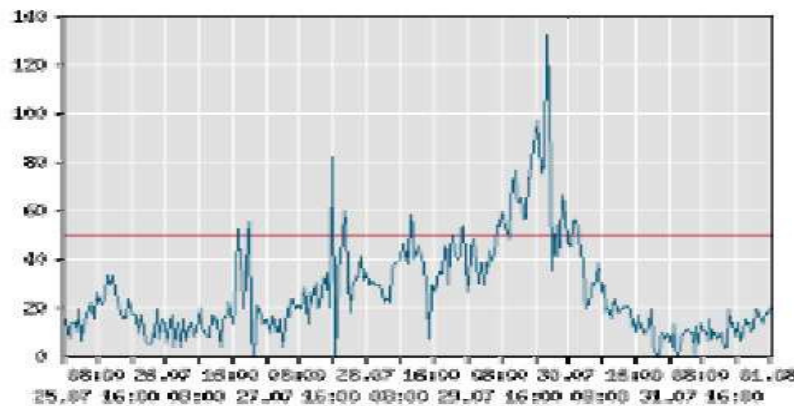


Abbildung 26: gemessene Feinstaubkonzentrationen an der Station Innsbruck-Reichenau in [$\mu\text{g}/\text{m}^3$].

Mit dem Wechsel der Strömung auf eine südliche Windrichtung nimmt die gemessene Feinstaubimmission ab dem 26.07.2005 allmählich zu. Die Werte steigen dabei schon an diesem Tag erstmals über $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ an. Am 29.07.2005 werden die Höchstwerte erreicht, die im halbstündigen Mittelwert nur knapp unter $140 \mu\text{g}/\text{m}^3$ liegen. Anschließend gehen die Konzentrationen rasch zurück. Die herannahenden kühlen Luftmassen und die aufkommenden Niederschläge führen zum Rückgang.

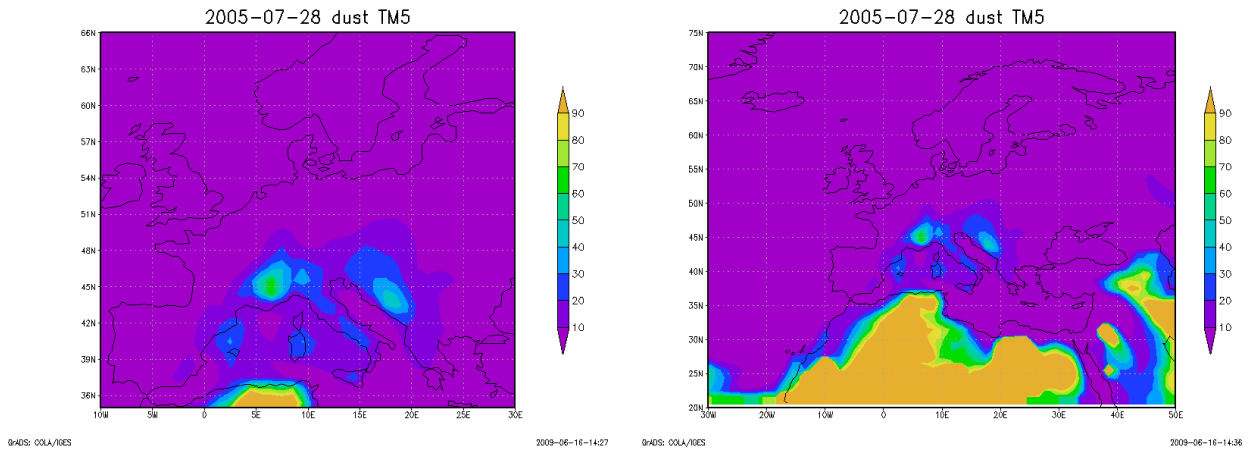


Abbildung 27: Tagesmittelwert an mineralischem Feinstaub aus dem TM5-Modell: RCG-Ausschnitt (links) und erweiterter Ausschnitt (rechts).

Für die Darstellung der Saharastaubfahne wurde für beide Modelle, das RCG und das TM5 erneut die Auswertung als Flächenplot gewählt. In beiden Modellen wurde der oben genannte Zeitraum des gemessenen Anstiegs der Feinstaubimmission überprüft. Betrachtet wird allerdings nicht die gesamte PM₁₀-Konzentration, sondern nur der Mineralstaubanteil. Dargestellt wird außerdem nur die unterste Schicht der Modelle. Das RCG zeigt für den betrachteten Zeitraum vom 26.07.2005 bis zum 31.07.2005 über dem gesamten Simulationsgebiet Staubkonzentrationen unter 10 µg/m³. Die Messungen sowohl in Wien als auch in Innsbruck zeigten jedoch sehr viel höhere Werte, die über die reine lokale Staubaufwirbelung, wie im RCG-Standard-Modell parametrisiert, nicht erklärt werden konnten.

Für denselben Zeitraum zeigt sich im TM5 ein anderes Bild. Der Staubeintrag liegt im Süden Europas an allen Tagen über 10 µg/m³. Als Beispiel ist in Abbildung 27, links, der 28.07.2005 für das Simulationsgebiet dargestellt, rechts hingegen wurde das Darstellungsgebiet noch etwas erweitert. Es lassen sich stark erhöhte Konzentrationen im Bereich Nordafrikas, also über der Sahara erkennen.

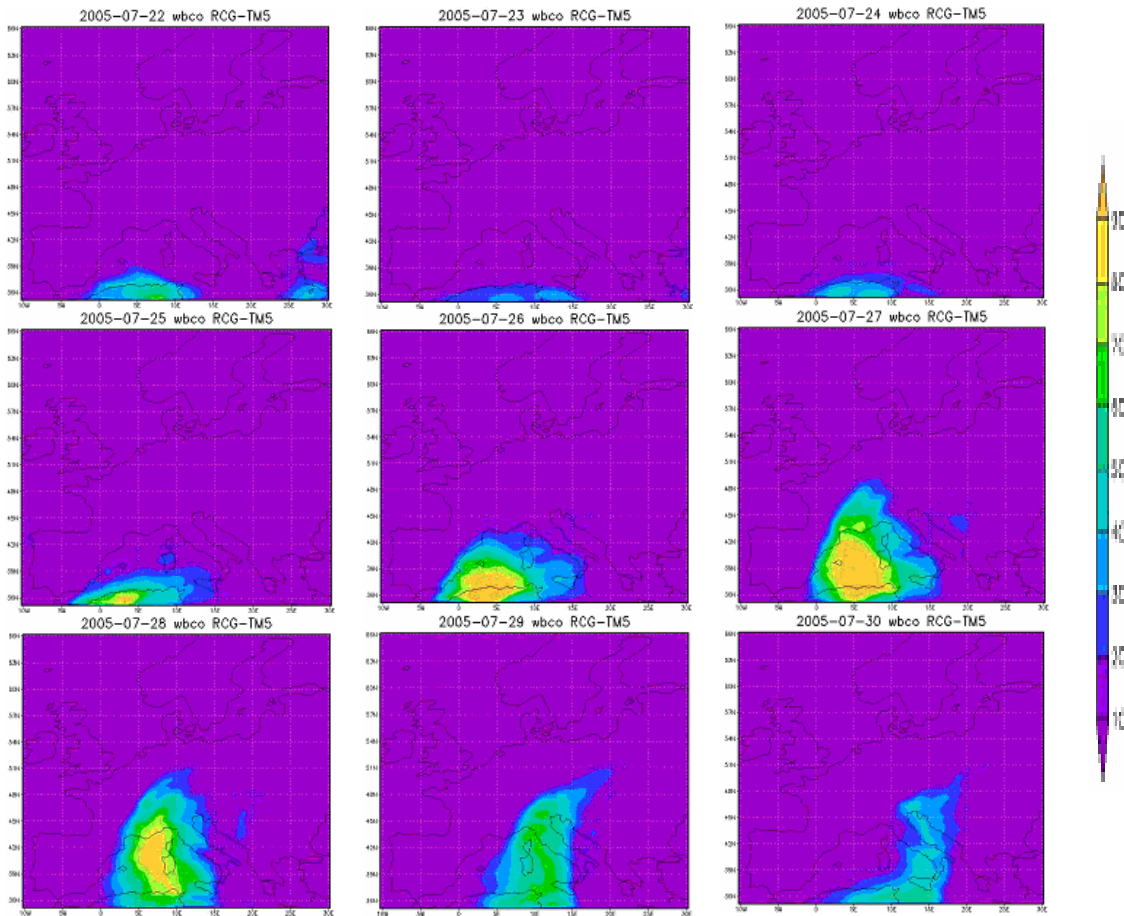


Abbildung 28: Tagesmittelwerte an mineralischem Feinstaub, simuliert mit RCG-TM5, für den Zeitraum 22. Juli 2005 (oben links) bis 30. Juli 2005 (unten rechts).

Bei der Darstellung der gekoppelten RCG-TM5-Version lässt sich der Verlauf des Staubereignisses erkennen. Es wird auch bei dieser Auswertung nur die untere Schicht betrachtet. Es zeigt sich dementsprechend nicht der Transport der Partikel, sondern der Ort des Absinkens. An allen bei der Simulation betrachteten Tagen (22.07. bis zum 31.07.) lässt sich eine erhöhte Staubkonzentration erkennen (Abbildung 28). Zwischen dem 22.07. und dem 25.07. werden entlang der nordafrikanischen Mittelmeerküste sowie auf den Mittelmeerinseln bereits Konzentrationen bis zu $70 \mu\text{g}/\text{m}^3$ simuliert. Am 26.07. zeigen sich entlang der westeuropäischen Mittelmeerküste geringe Staubkonzentrationen, im Algerischen Raum liegen die Werte über $90 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Da die Betrachtung nur die unterste Modellschicht mit einschließt, fällt auf, dass eine Vielzahl der Partikel schon während dieser Zeit wieder absinkt. Am 27.07. werden auch in Südfrankreich, Italien und der Schweiz Partikelanhäufungen simuliert. Die höchsten Konzentrationen liegen dabei im Mittelmeerraum. Die Konzentrationen entlang der afrikanischen Küste nehmen dagegen ab. Am 28.07. simuliert das RCG-TM5 insgesamt schon geringere Werte als an den Tagen davor, die Höchstwerte liegen zwischen Tunesien und dem Südosten Frankreichs zwischen 80 und $90 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Ab dem 29.07. zeigt sich die Staubfahne mit Höchstwerten über Norditalien und Österreich weiter östlich. An den letzten beiden Tagen der Simulation, dem 30. und dem 31.07., zeigen sich die absinkenden Partikel

weiter östlich. Über dem südeuropäischen Raum liegen die simulierten Werte wieder unter $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Solche Staubeinträge bis weit in den mitteleuropäischen Raum, die zeitlich und lokal sehr begrenzt sind, können auf keinen Fall mit klimatologischen Randwerten erfasst werden. Dafür ist ein überregionales Modell wie das globale TM5-Modell notwendig.

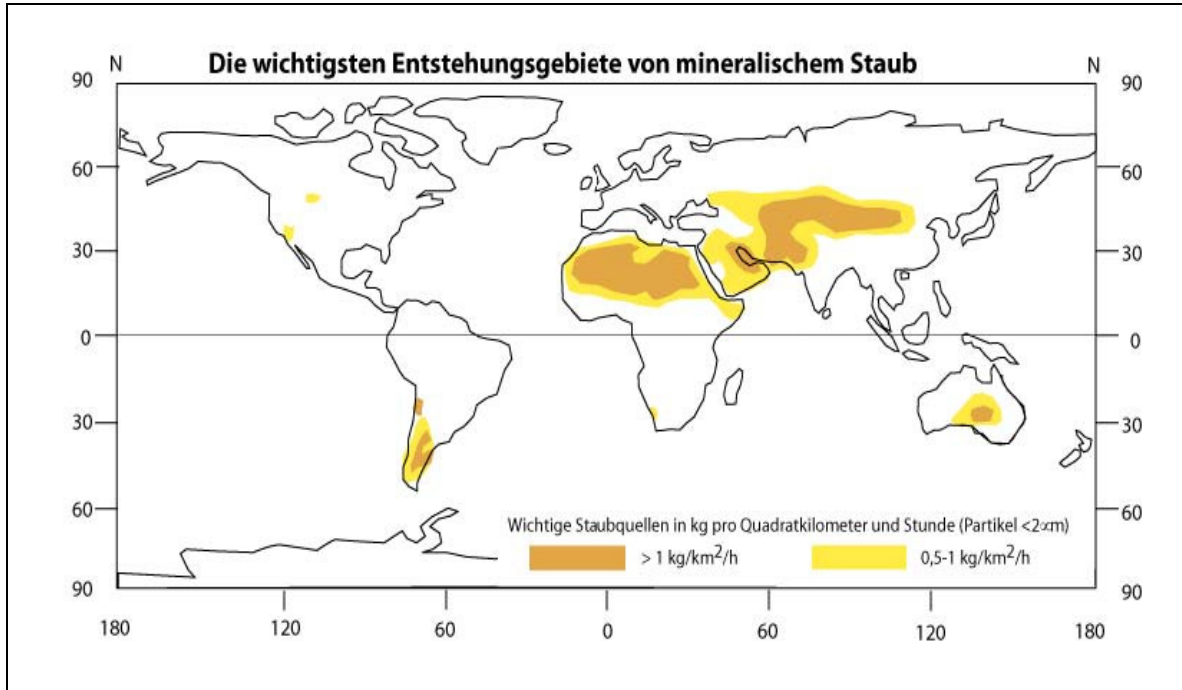


Abbildung 29: Darstellung der wichtigsten Entstehungsgebiete von mineralischem Staub nach dem IPCC-Bericht).

Abbildung 29 zeigt die Entstehungsgebiete von mineralischem Staub auf der Erde. Für Europa sind vor allem die Sahara, aber auch die Wüsten in Zentralasien von Bedeutung. Über Südanströmung können Saharastäube, über Ostanströmung Stäube aus West- und Zentralasien bis nach Deutschland transportiert werden. Die Häufigkeit dieser Ereignisse ist in Deutschland eher gering, in Südeuropa, aber auch in Osteuropa sind solche Episoden jedoch sehr viel wahrscheinlicher.

6. ZUSAMMENFASSUNG

In diesem Bericht wurde die Koppelung des globalen Chemie-Transport-Modells TM5 mit dem regionalen Modell RCG vorgestellt. Es sollte untersucht werden, welche Einflüsse die Wahl der Randbedingungen auf die Resultate des Regionalmodells haben. Das RCG-Modell wird standardmäßig mit aus Beobachtungen abgeleiteten seitlichen und oberen Randbedingungen angetrieben. Ozon wird dabei anders behandelt: Für O_3 werden aus einer von Logan (1998) erstellten Ozonklimatologie zeitlich (Monatsmittel) und räumlich (breitengradabhängig) variierende Randbedingungen benutzt. Die in dieser Studie benutzte RCG-Konfiguration rechnete mit einer Auflösung von $0.5^\circ \times 0.25^\circ$. TM5 hingegen ist ein globales off-line Chemie-Transport-Modell, das kleinere Gebiete mit einer Auflösung von bis zu $1^\circ \times 1^\circ$ rechnen kann. Die globale Anwendung wird standardmäßig mit einer Auflösung von $6^\circ \times 4^\circ$ gerechnet und zwischen den beiden Auflösungen wird zur Relaxation meist ein Zwischenschritt mit einer Auflösung von $3^\circ \times 2^\circ$ gerechnet. Der chemische Mechanismus zur Behandlung der Gasphase (CBMIV) ist in beiden vorgestellten Modellen der gleiche, die sekundären Aerosole Sulfate, Nitrate und Ammonium werden auch sehr analog über den so genannten Gleichgewichtsansatz gerechnet. Die Mineralstäube und die Seesalze werden jedoch in unterschiedliche Größenverteilungsklassen unterteilt. Auch die meteorologischen Felder stammen von unterschiedlichen Modellen. So benutzt TM5 das EZMW-Modell, während RCG regionale diagnostische oder prognostische Modellergebnisse als Inputparameter benutzt. Auch die Emissionen sind auf dem gemeinsamen Raster unterschiedlich: TM5 benutzt EDGAR3.2, RCG benutzt in seinem Rechengebiet EMEP-Daten, die von TNO höher aufgelöst aufbereitet worden sind.

Die technische Koppelung zwischen den beiden Modellen erfolgte in der Horizontalen abstandsgewichtet, in der Vertikalen hingegen wurden einfache Zuordnungen der TM5-Konzentrationen zu den zeitlich variablen, von der Mischungsschicht abhängigen Vertikalschichten durchgeführt. Die TM5-Spezies konnten den RCG-Spezies eindeutig zugewiesen werden, da sie dem gleichen Gasphasenmechanismus und einer sehr ähnlichen Aerosolbehandlung folgten.

Es wurde anfänglich eine Sensitivitätsstudie durchgeführt, bei der die Randbedingungen auf Null gesetzt wurden. Dabei hat sich gezeigt, dass Ozon bei Weitem die höchste Abhängigkeit von Randwerten zeigt, NO_2 deutlich weniger, und diese Abhängigkeit lässt sich über die chemischen Reaktionen mit Ozon erklären, und SO_2 zeigte die geringste Abhängigkeit von den Randwerten.

Der Vergleich zwischen RCG-Standard-Simulationen und RCG-TM5-Simulationen hat gezeigt, dass der Einfluss der dynamischen Randbedingungen auf Ozonverteilungen über der Nordsee, aber auch über weite Teile Mitteleuropas im Winter viel höher ist als im Sommer. Gerade im Winter bei erhöhter Westwindanströmung auf Europa, aber auch bei niedrigeren Ozonabsolutwerten, können mit den TM5 angetriebenen Randbedingungen auch in Mitteleuropa bis zu 30% höhere Ozonwerte simuliert werden. Eine Detailstudie für einen bestimmten Junitag hat darüber hinaus gezeigt, dass die dynamischen Randbedingungen vor allem bei schwacher oder nicht vorhandener lokaler Ozonproduktion (nachts) wichtig werden. Absolut gesehen sind die Änderungen zwar sehr niedrig, dennoch kann davon ausgegangen werden, dass über die dynamische

Behandlung der Randwerte aus einem Globalmodell Transportprozesse besser wieder gegeben werden als über klimatologische Werte. Des Weiteren scheint vor allem im Winter und nachts RCG-TM5 mehr Oxidantien zu simulieren als RCG-Standard.

Die Untersuchung für ein Saharaereignis im Juli 2005 hat gezeigt, dass RCG-Standard natürlich solche Feinstaubepisoden nicht simulieren kann, RCG-TM5 hingegen war sehr wohl in der Lage, sowohl zeitlich als auch örtlich höhere Feinstaubkonzentrationen aufgrund von Mineralstaubtransporten aus Afrika wieder zu geben. Solche Ereignisse sind für Süd- und Osteuropa wichtiger als für Deutschland.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass RCG erfolgreich mit dem globalen TM5-Modell gekoppelt worden ist, dass für Ozon, NO₂, SO₂ und auch für Feinstaub in Deutschland im Jahresmittel der Einfluss der unterschiedlichen Randbedingungen nicht wichtig ist, aber auch, dass überregionale Episoden, auch wenn selten, nur mit der gekoppelten Version reproduzierbar sind.

7. BIBLIOGRAPHIE

- Beekmann, M., Kerschbaumer, A., Reimer, E., Stern, R.** (2007) PM Measurement Campaign HOVERT in the Greater Berlin area: model evaluation with chemically specified observations for a one year period. *Atmos. Chem. Phys.*, 76, 55-68
- Builtjes, P.** (2005) North-Hemispherical transport: Aerosol composition, natural and anthropogenic. International BMU/UBA-Workshop on the Contribution from Long-Range Transport to the PM Load in Germany on 14 and 15 March 2005 in Umweltbundesamt Berlin
- Builtjes, P., W. Jörß, W., R. Stern, J. Theloke** (2010) Strategien zur Verminderung der Feinstaubbelastung . PAREST-Endbericht, Schlussbericht an das Umweltbundesamt zum Forschungsvorhabens FKZ 206 43 200/01
- Carter, W.** (1996). Condensed atmospheric photooxidation mechanisms for isoprene, *Atmos. Environ.* 30 (1996) 4275-4290
- EMEP** (2003) Transboundary acidification, eutrophication and ground level ozone in Europe, Part I: Unified EMEP model description. Status Report 1/2003.
- Feldmann, H., Memmesheimer, M., Friese, E., Jacobs, H., Piekorz, G., Ebel, A.** (2006). Regionale Simulationsexperimente mit EURAD. Rheinisches Institut für Umweltforschung an der Universität zu Köln im Unterauftrag der FU Berlin für das F&E-Vorhaben 202 43 270 „Entwicklung von Modellen zur Identifizierung von Schadstoffquellen -insbesondere im Verkehrsbereich- im Rahmen der 22. BImSchV - Dokumentation, Weiterentwicklung, Validierung und Maßnahmenplanung für ein bundeseinheitliches Vorgehen“
- Flemming, J., Inness, A., Flentje, H., Huijnen, V., Moinat, P., Schultz, M. G., and Stein, O.** (2009). Coupling global chemistry transport models to ECMWF's integrated forecast system. *Geosci. Model Dev.*, 2:253-265.
- Ganzeveld, L., Lelieveld, J., and Roelofs, G.-J.** (1998). A dry deposition parameterization for sulfur oxides in a chemistry and general circulation model. *J. Geophys. Res.*, 103(D5):5679-5694.
- Ganzeveld, L., Lelieveld, J., and Roelofs, G.-J.:** A dry deposition parameterization for sulfur oxides in a chemistry and general circulation model, *J. Geophys. Res.*, 103, 5679–5694, 1998.
- Gery, M., Whitten, G., Killus, J.** (1989). A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. *J. of Geophys. Res.* 94, pp. 12925-12956
- Guelle, W., Balkanski, Y. J., Schultz, M., Dulac, F., and Monfray, P.:** Wet deposition in a global size-dependent aerosol transport model, 1. Comparison with 1 year ²¹⁰Pb simulation with ground measurements, *J. Geophys. Res.*, 103, 11 429–11 445, 1998.
- Guelle, W., Balkanski, Y. J., Schulz, M., Dulac, F., and Monfray, P.** (1998). Wet deposition in a global size-dependent aerosol transport model, 1, Comparison of a 1 year Pb ²¹⁰ simulation with ground measurements. *J. Geophys. Res.*, 103(D10):11429-11446.
- Heimann, M., Monfray, P., and Polian, G.** (1988). Long-range transport of ²²²Rn - a test for 3D tracer models. *Chem. Geol.*, 70:98-98.
- Heinold, B., J. Helmert, O. Hellmuth, R. Wolke, A. Ansmann, B. Marticorena, B. Laurent, and I. Tegen** (2007), Regional modeling of Saharan dust events using LMMUSCAT: Model description and case studies, *Journal of Geophysical Research (D)*, 112(D11), D11204
- Hertel, O., R.Berkowicz, J.Christensen and O.Hov,** test of two numerical schemes for use in atmospheric transport-chemistry models, *Atms. Environ.*, 27(16), 2591-2611, 1993.
- Jeuken, A., Veefkind, J. P., Dentener, F., Metzger, S., and Gonzalez, C. R.** (2001). Simulation of the aerosol optical depth over Europe for August 1997 and a comparison with observations. *J. Geophys. Res.*, 106(D22):28295-28312.
- Jeuken, A., Veefkind, P., Dentener, F., Metzger, S., and Robles-Gonzalez, C.:** Simulation of the aerosol optical depth over Europe for August 1997 and a comparison with observations, *J. Geophys. Res.*, 106, 28 295–28 311, 2001.
- Kerschbaumer, A. und Reimer, E.** (2003). Erstellung der Meteorologischen Eingangsdaten für das REM/Calgrid-Modell: Modellregion Berlin-Brandenburg. Abschlussbericht zum UBA-Forschungsvorhaben FE-Vorhaben 299 43 246. Freie Universität Berlin. Institut für Meteorologie.

- Krol, M., Houweling, S., Bregman, B., van den Broek, M., Segers, A., van Velthoven, P., Peters, W., Dentener, F., and Bergamaschi, P.** (2005). The two-way nested global chemistry-transport zoom model TM5: algorithm and applications. *Atmos. Chem. Phys.*, 5(2):417-432.
- Logan, J.** (1998). An analysis of ozonesonde data for the troposphere, recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.* 104, 16.
- Metzger, S., Dentener, F., Krol, M., Jeuken, A., and Lelieveld, J.**: Gas/Aerosol partitioning 2. Global modeling results, *J. Geophys. Res.*, 107(D16), 4313, doi:10.1029/2001JD001103, 2002.
- Nenes A, Pandis SN, Pilinis C** (1998). ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols, *Aquat. Geoch.*, 4, 123-152.
- Olivier, J.G.J. and J.J.M. Berdowski** (2001) Global emissions sources and sinks. In: Berdowski, J., Guicherit, R. and B.J. Heij (eds.) "The Climate System", pp. 33-78. A.A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands. ISBN 90 5809 255 0.
- Russel, G. and Lerner J.**: A new finite-differencing scheme for the tracer transport equation, *J. Appl. Meteorol.*, 20, 1483–1498, 1981.
- Schell B., I. J. Ackermann, H. Hass, F. S. Binkowski, and A. Ebel,** (2001). Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, *J. Geophys. Res.*, 106, 28275-28293.
- Segers, A., van Velthoven, P., Bregman, B., and Krol, M.** (2002). On the computation of mass fluxes for Eulerian transport models from spectral meteorological fields. In Sloom, P., Tan, C. K., Dongarra, J., and Hoekstra, A., editors, *Proceedings of the 2002 International Conference on Computational Science*, volume 2330/2002 of *Lecture Notes in Computer Science (LNCS)*, pages 767-776. Springer Verlag.
- Stern, R.** (1994). Entwicklung und Anwendung eines dreidimensionalen photochemischen Ausbreitungsmodells mit verschiedenen chemischen Mechanismen, *Meteorologische Abhandlungen Serie A Band 8, Heft 1* (1994). Verlag von Dietrich Reimer, Berlin.
- Stern, R.** (2003) Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM/CALGRID. Abschlussbericht zum Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 298 41 252 des Umweltbundesamts „Modellierung und Prüfung von Strategien zur Verminderung der Belastung durch Ozon“.
- Stern, R.** (2004) Weitere Entwicklung und Anwendung des chemischen Transportmodells REM-CALGRID für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien. Abschlussbericht im Rahmen des Forschungs- und Entwicklungsvorhaben 201 43 250 auf dem Gebiet des Umweltschutzes „Anwendung modellgestützter Beurteilungssysteme für die bundeseinheitliche Umsetzung der EU-Rahmenrichtlinie Luftqualität und ihrer Tochterrichtlinien“.
- van Loon, M. et. al.** (2004). Model Intercomparison in the framework of the review of the Unified EMEP. TNO-Report R 2004/282.
- Vignati, E., Krol, M., and Dentener, F.**: Global and regional aerosol modelling: a picture over Europe, in: *Advances in Air Pollution Modeling for Environmental Security*, edited by: Farago, I., Georgiev, K., and Havasi, A., 373–381, 2005.
- Vignati, E., Krol, M., and Dentener, F.**: Global and regional aerosol modelling: a picture over Europe, in: *Advances in Air Pollution Modeling for Environmental Security*, edited by: Farago, I., Georgiev, K., and Havasi, A., 373–381, 2005
- Walcek, C.J.** (2000). Minor flux adjustment near mixing ratio extremes for simplified yet highly accurate monotonic calculation of tracer advection, *J. Geophys. Res.* , 105, D7 (2000), 9335-9348.
- Yamartino, R. J., Flemming, J. and Stern, R.M.** Adaptation of Analytic Diffusivity Formulations to Eulerian Grid Model layers of Finite Thickness. 27th ITM on Air Pollution Modelling and its Application. Banff, Canada, October 24-29, 2004
- Yamartino, R.J., J. Scire, G.R. Carmichael, and Y.S. Chang** (1992). The CALGRID mesoscale photo-chemical grid model-I. Model formulation, *Atmos. Environ.*, 26A (1992), 1493-1512.