

Umweltforschungsplan  
des Bundesministeriums für Umwelt,  
Naturschutz und Reaktorsicherheit

Förderkennzeichen 297 42 848

"Analyse historischer Datenreihen und Entwicklung einer Methode zur  
quasi-wetterbereinigten Trendanalyse von bodennahem Ozon"

Schlussbericht

von

Dr. Wolfgang Enke

I.D.E.A:  
Immissionsdaten Erfassung und Analyse  
Karin Seewöster  
Wandelsweg 89  
4594 Gelsenkirchen

IM AUFTRAG  
DES UMWELTBUNDESAMTES

Januar 2001

Berichts-Kennblatt

1. Berichtsnummer UBA-FB	2.	3.
4. Titel des Berichts Analyse historischer Immissionsmessreihen und Entwicklung einer Methode zur „quasi-wetterbereinigten“ Trendanalyse von bodennahem Ozon		
5. Autor(en), Name(n), Vorname(n) Dr. Enke, Wolfgang	8. Abschlussdatum Januar 2001	9. Veröffentlichungsdatum Januar 2001
6. Durchführende Institutionen (Name, Anschrift) I.D.E.A., Karin Seewöster Wandelsweg 89 D – 45894 Gelsenkirchen-Buer	10. UFOPLAN-Nr. 297 42 848	11. Seitenzahl SB 53, TB1 87, TB2 131, TB3 42
7. Fördernde Institution (Name, Anschrift) Umweltbundesamt Postfach 33 00 22 D – 14191 Berlin	12. Literaturangaben SB 24, TB1 33, TB2 , TB3 23	13. Tabellen und Diagramme SB , TB1 6, TB2 2, TB3 3
		14. Abbildungen SB 30,TB1 30, TB2 104, TB3 9
15. Zusätzliche Angaben		
16. Zusammenfassung Ziel des Forschungsvorhabens sind belastbare Trendanalysen der in der Bundesrepublik Deutschland vorhandenen Messreihen (bodennahes Ozons der Jahre 1980 bis 1997). Diese Forderung setzt validierte und wetterbereinigte Datensätze voraus. Die Datenvalidierung umfasst eine subjektive Bewertung der Daten, ein objektives Verfahren zur Kennzeichnung auffälliger Werte und eine automatische Beseitigung systematischer Fehler in den Ozondatenreihen. Zur Wetterbereinigung kommt eine bedingte, multiple, erwartungstreue screening Regressionsanalyse zur Anwendung. Das Gesamtergebnis der Wetterbereinigung lieferte eine Varianzreduktion bis zu maximal 58%. Die Ozontrendanalyse wurde für 5 Aggregierungen durchgeführt: Tagesmaxima der Ozonkonzentration, morgendliche Ozonkonzentrationen, Überschreitungshäufigkeiten von in 10µg/m <sup>3</sup> Stufen vorgegebenen Schwellenwerten von 10µg/m <sup>3</sup> bis 220µg/m <sup>3</sup> , AOT40-Ozonwerte und Ozonjahresmittelwerte. Für Schwellenwerte der Überschreitungshäufigkeit der Tagesmaxima >80µg/m <sup>3</sup> und >180µg/m <sup>3</sup> für die Zeitintervalle (1980/85, 1985/94 und 1994/97) liegen räumlich detaillierte Trenduntersuchungen vor. Von großem gesellschaftlichen Interesse ist die Fragestellung in wie weit emissionsmindernde Maßnahmen zu einer Verminderung der Ozonbelastung beitragen. Deshalb wurde eine Kopplung von Ozonjahresmittelwerten mit Jahresmittelwerten von Stickstoffdioxid (NO <sub>2</sub> ) und Kohlenwasserstoffe (VOC) vorgenommen. Eliminiert man aus den mittleren jährlichen Ozonkonzentrationen den 'europäischen Hintergrund', so zeigt sich, dass emissionsmindernde Maßnahmen auf regionaler Ebene durchaus einen Sinn haben. Die Tatsache, dass jedoch der großräumige Anstieg der Hintergrundbelastung zum Teil den Rückgang auf lokaler oder regionaler Skala wieder kompensiert, zeigt, dass auch weltweit weitere emissionsmindernde Maßnahmen unverzichtbar sind.		
17. Schlagwörter Ozon, Ozon-Trendanalyse, statistisches Modell, Datenvalidierung, Wetterbereinigung		
18. Preis	19.	20.

Report Cover Sheet

1. Report No. UBA-FB	2.	3.
4. Report Title Analysis of historical data series and development of a trend analysis method to “quasi-remove” the influence of weather on near-surface ozon.		
5. Autor(s), Family Name(s), First Name(s) Dr. Enke, Wolfgang		8. Report Date January 2001
		9. Publication Date January 2001
6. Performing Organisaton (Name, Address) I.D.E.A., Karin Seewöster Wandelsweg 89 D – 45894 Gelsenkirchen-Buer		10. UFOPLAN-Ref. No. 297 42 848
		11. No. of Pages FR 53, R1 87, R2 131, R3 42
7. Funding Agency (Name, Address) Umweltbundesamt (Federal Environmental Agency) Postfach 33 00 22, 14191 Berlin		12. No. of Reference FR 24, R1 33, R2 , R3 23
		13. No. of Tables, Diagrams FR , R1 6, R2 2, R3 3
		14. No, of Figures FR 30, R1 30, R2 104, R3 9
15. Supplementary Notes		
16. Abstract <p>The aim of the research project was to produce reliable near surface ozone trend analyses of data series (1980 to 1997), available in the Federal Republic of Germany. This aim demands a validation of the data sets and the removal of the weather influence from the time series. The validation of time series includes a subjective validation, an objective method to mark incorrect values and an automatic procedure to eliminate systematic errors from the ozone dataset. For elimination of the weather influence from the data sets multiple, unbiased regression analyses are used. This procedure leads to a reduction of variance up to 58%. The trend analyses was performed for five aggregations: Daily maximum and early morning values of near surface ozone, exceedances of thresholds from 10<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> to 220<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> in steps of 10<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math>, AOT40 values and yearly averages. For exceedance of thresholds of &gt;80<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> and &gt;180<math>\mu\text{g}/\text{m}^3</math> for the periods 1980/85, 1985/94 and 1994/97 detailed spatial trends analyses were performed. Of major social interest is the question whether measures of emission reduction on a local scale contribute to a reduction of ozone level. For this ends a coupling between yearly means of nitrogen oxide (NO<sub>2</sub>) and volatile organic compounds (VOC) is investigated. If we eliminate the European background from the local ozone time series the results show a positive effect of emission reduction measures. The fact, that the steady rise of the European background mases the decrease on local scale, indicates that world wide reduction of emission is indispensable.</p>		
17. Keywords Ozone, ozone trend, statistical model, validation of dataset, weather influence		
18. Price	19.	20.

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
<b>1 Zielstellung des Vorhabens</b>	<b>6</b>
<b>2 Datenaufbereitung für die Nutzung zur Ozontrendberechnung</b>	<b>7</b>
2.1 Datenvi <sup>alidierung</sup>	7
2.1.1 Subjektive Bewertung der einzelnen Ozonreihen und Beseitigung nicht plausibler Werte	7
2.1.2 Kennzeichnung von Ozonwerten, die das dreifache der Streuung gegenüber dem Mittelwert der jeweils untersuchten Ozonreihe über- oder unterschreiten	8
2.1.3 Automatische Korrektur von systematischen Fehlern und Brüchen in den Zeitreihen.	8
2.2 Datenergänzung der Ozonreihen	10
2.2.1 Zeitliche Interpolation	10
2.2.2 Räumliche Interpolation	10
2.3 Wetterbereinigung der Ozonreihen	11
2.3.1 Methodische Grundlagen der Wetterbereinigung der Ozonreihen	11
2.3.2 Datenbasis	12
2.3.3 Bereitstellung potentieller Prediktoren zur Wetterbereinigung	13
2.3.4 Berechnung der ‘wetterbereinigten’ Ozondatenreihen	14
<b>3 Ozontrendanalyse der Jahre 1980 bis 1997</b>	<b>17</b>
3.1 Voruntersuchungen zur Ozontrendanalyse	17
3.2 Trends für unterschiedliche Ozonaggregierungen	19
3.2.1 Trends der Tagesmaxima der Ozonkonzentration	19
3.2.2 Trends morgendlicher Ozonkonzentrationen ohne regionale Untergliederung	27
3.2.3 Schwellenwertspezifische Trends der Bodenozonkonzentration	32

3.2.4	Geographische Verteilung der Überschreitungshäufigkeiten unterschiedlicher Aggregierungen der Ozonkonzentration und die prozentuale Änderung dieser Überschreitungshäufigkeiten für die Zeitintervalle 1980/85, 1985/94 und 1994/97	38
3.2.4.1	Untersuchung der geographischen Verteilung der Überschreitungshäufigkeit von Tagesmaxima der Bodenozonkonzentration $>80\mu\text{g}/\text{m}^3$ .	38
3.2.4.2	Untersuchung der geographischen Verteilung der Überschreitungshäufigkeit von Tagesmaxima der Bodenozonkonzentration $>180\mu\text{g}/\text{m}^3$ .	42
3.2.5	Trends der AOT40 Ozonwerte als Deutschlandmittel und als geographische Verteilung für 4 Zeitintervalle	46
3.3	Kopplung von Jahresmittelwerten der Bodenozonkonzentration mit Jahresmittelwerten der $\text{NO}_2$ bzw. VOC Emissionen	49
<b>Literaturangaben</b>		<b>53</b>

## 1 Zielstellung des Vorhabens

Ziel und zugleich Hauptschwerpunkt des Forschungsvorhabens sind belastbare Trendanalysen der in der Bundesrepublik Deutschland vorhandenen Ozonmessreihen (bodennahes Ozon).

Immissionsmessungen dienen einerseits der Realisierung von Alarmfunktionen, andererseits aber auch der Erfolgskontrolle temporärer als auch längerfristiger emissionsmindernder Maßnahmen.

Besonderes Interesse besteht dabei an Aussagen zu Änderungen (Trends) der Ozonbelastung infolge von Emissionsverringerungen bei den Ozonvorläuferstoffen NOx und VOC. Oberste Priorität kommt dabei zunächst der Frage nach Trends der Überschreitung von Ozonschwellenwerten ( $180\mu\text{g}/\text{m}^3$  bzw.  $240\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) zu. Dieser Tatsache Rechnung tragend wurden in einer ersten Etappe des Vorhabens, in Absprache mit dem Umweltbundesamt

Trendanalysen der Sommerhalbjahre 1990 bis 1997 durchgeführt, die auf die Beurteilung der Entwicklung der Ozonspitzenkonzentration zielen.

Die Ergebnisse dieser ersten Untersuchung sind in einem selbständigen Teilbericht 1 zusammengefasst.

Die umfassende Trendanalyse der von Bund und Ländern vorliegenden langen Ozonreihen für unterschiedliche Aggregierungen (Jahresmittelwerte, Tagesmaxima, Überschreitungshäufigkeit vorgegebener Schwellenwerte, AOT40 Werte usw.) bildete den Abschluss des Vorhabens.

Die Forderung nach Bestimmung bzw. Ermittlung belastbarer Ozontrendaussagen setzt die Erfüllung von zwei Bedingungen voraus, nämlich:

dass die zur Trendanalyse genutzten Daten valide sind

dass der durch den Wettereinfluss hervorgerufene Anteil der Variabilität (vorgetäuschte Trends) innerhalb der Ozonreihen eliminiert wird, damit überhaupt erst die Möglichkeit besteht, die durch Änderung der anthropogenen Ozonvorläufer hervorgerufene Entwicklung der Ozonbelastung sichtbar zu machen.

Da diese beiden genannten Bedingungen zunächst nicht erfüllt waren, wurde den beiden Arbeitsschwerpunkten „Datenvielfältigung“ und „Wetterbereinigung“ der Ozonreihen ebenfalls eine große Aufmerksamkeit gewidmet und das methodische Vorgehen sowie die Ergebnisse hierzu in selbständigen Teilberichten (2 und 3) ausführlich dargelegt.

## 2. Datenaufbereitung für die Nutzung zur Ozontrendberechnung

Vor der Darlegung der Ergebnisse der Trendanalyse des bodennahen Ozon der Jahre 1980 bis 1997 sollen die zwei vorbereitenden Schritte der Datenvalidierung und Wetterbereinigung, für die getrennte Zwischenberichte vorliegen, in wesentlichen Zügen dargelegt werden.

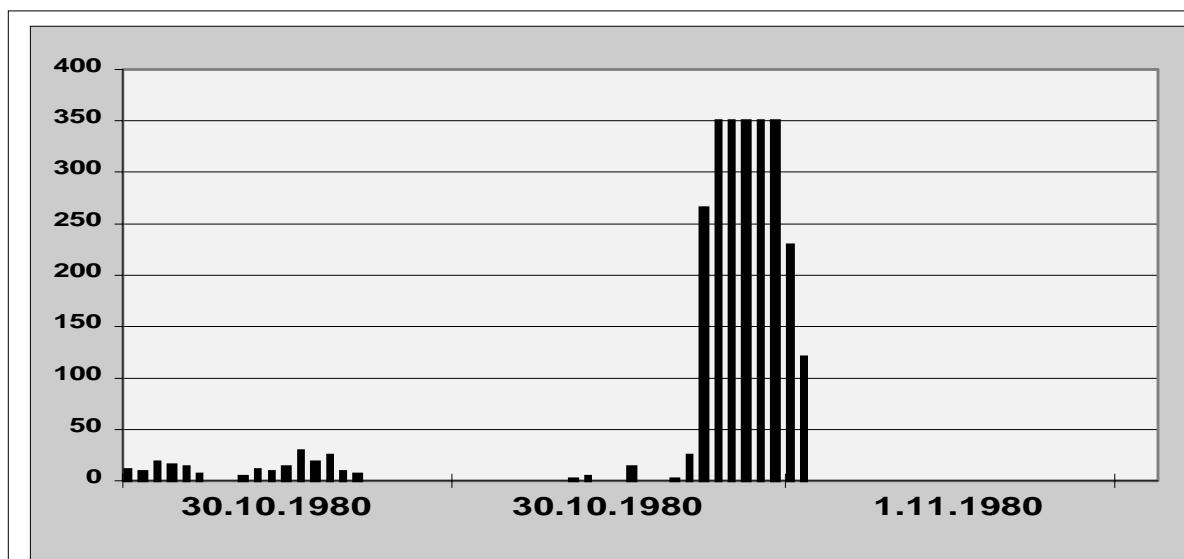
### 2.1 Datenvalidierung

Schwankungen in den Messreihen der bodennahen Ozonkonzentration und selbstverständlich auch aller anderen Luftschatstoffe haben vielfältige und auch sehr unterschiedliche Ursachen. Ein erster Versuch, die Ursachen dieser Schwankungen zu kategorisieren, wird mit der Einteilung in nicht technische und technische Ursachen beginnen. Zu den nicht technischen Ursachen können all diejenigen gezählt werden, die die Höhe der Ozonkonzentration an einem bestimmten Ort und zu einem bestimmten Zeitpunkt bewirken oder bewirkt haben. Hierzu zählen sowohl biogene als auch anthropogene Einflussfaktoren, sowie das aktuelle lokale Wettergeschehen, auf das im Kapitel Wetterbereinigung näher eingegangen wird. Letztere rufen insgesamt eine Variabilität der Ozonkonzentration in Raum (Fläche) und Zeit hervor. Die Aufgabe der Messtechnik ist es, diese Variabilität zu erfassen. Überlagert wird diese ‘nicht technische’ Variabilität der Ozonkonzentration jedoch durch zusätzliche Schwankungen, die ihre Ursachen in der Messtechnik haben, wozu auch die Probenahme zählt. Diese zusätzliche Variabilität wirkt sich überwiegend im zeitlichen Bereich aus, d.h., messtechnische Änderungen bewirken in der Mehrzahl der Fälle Diskontinuitäten in der Messreihe einer einzelnen Station. Lediglich in seltenen Fällen, bei denen Änderungen in der Probenahme und Messtechnik einheitlich in einem Bundesland vorgenommen werden wirken sie sich auch im räumlichen Bereich aus. Diese unerwünschte, durch technische Unzulänglichkeiten verursachte Variabilität wird so weit wie möglich erkannt und in drei Schritten aus den Datenreihen eliminiert.

#### 2.1.1 Subjektive Bewertung der einzelnen Ozonmessreihen und Beseitigung nicht plausibler Werte.

Hierzu wurden die Stundenwerte jeder einzelnen Station am Bildschirm dargestellt und subjektiv bewertet. Unplausible Werte wurden durch Ausfallkennung gekennzeichnet, so wie an Hand der Station Eggenstein ( Abb.1 ) demonstriert. An dieser Station traten in der Nacht vom 30.10.1980 auf den 1.11.1980 gleichbleibende Messwerte von  $531\mu\text{g}/\text{m}^3$  auf, während kurz vor und auch nach diesem Zeitraum Ausfallwerte verzeichnet sind. Es ist sicher keine

Fehlentscheidung diese Werte als nicht plausibel einzuschätzen und aus dem Datenkollektiv zu entfernen.



**Abb. 01: Nicht plausible Messmate, eingebettet in Ausfallperioden, Station  
EGGENSTEIN (BW004)**

### **2.1.2 Kennzeichnung von Ozonwerten, die das dreifache der Streuung gegenüber dem Mittelwert der jeweils untersuchten Ozonreihe über- oder unterschreiten.**

Die gekennzeichneten Werte wurden wie Kapitel 2.1.1 im Kontext mit den umliegenden Stationen subjektiv bewertet und gegebenenfalls durch Ausfallkennung gekennzeichnet.

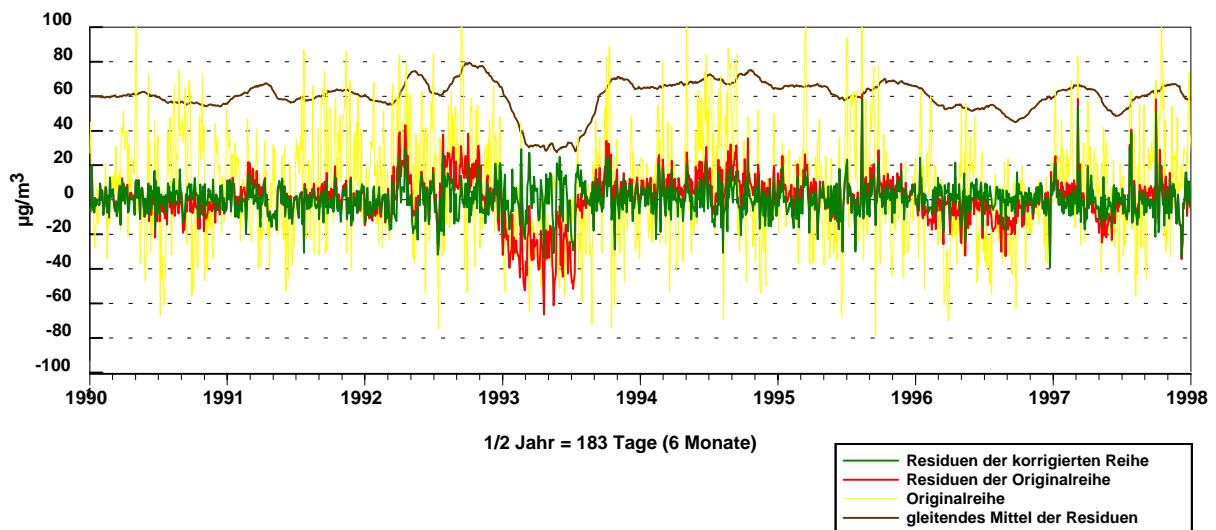
### **2.1.3 Automatische Korrektur von systematischen Fehlern und Brüchen in den Zeitreihen.**

Systematische Messfehler, Brüche und Sprünge werden durch eine komplette Simulation der betrachteten Zeitreihe mit Hilfe der umliegenden Stationen einerseits und durch den Vergleich der gemessenen Reihe mit der simulierten Reihe sichtbar gemacht und mittels einer dafür entwickelten Software automatisch korrigiert.

Dazu sind folgende Schritte notwendig:

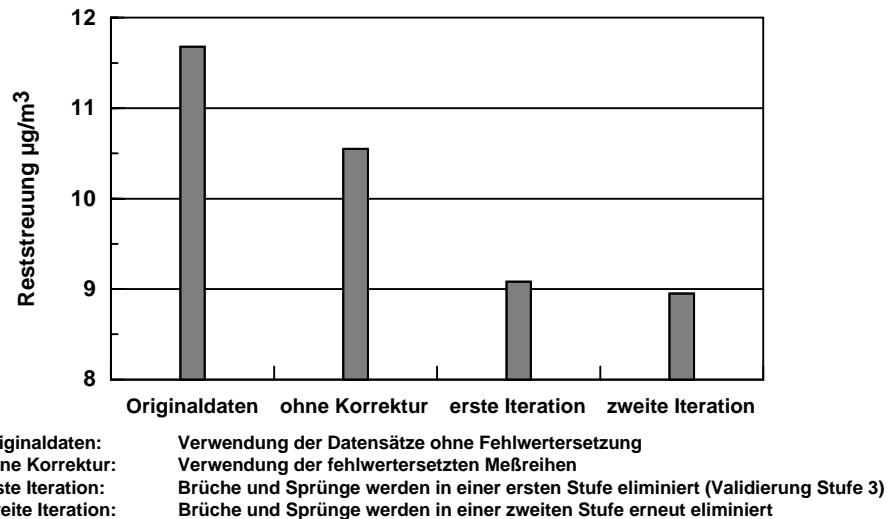
- Bereinigung der Datensätze von linearen Trends.
- Komplette raumzeitliche Simulation der zu prüfenden Zeitreihe unter potentieller Nutzung aller Stationszeitreihen.
- Berechnung der Residuen zwischen gemessenen Werten und simulierter Zeitreihe
- Eliminierung langperiodischer Schwingungen (Perioden größer 1 Jahr) aus der Zeitreihe der Residuen.
- Berechnung eines 30-tägig gleitenden Mittels, der vom linearen Trend und langperiodischen Schwankungen bereinigten Reihe, der Residuen.
- Bereinigung der Messreihe und erneute Anwendung des Verfahrens in einer zweiten Iteration

Das Verfahren wird an Hand der Station Stuttgart (BW048) Abb.2 demonstriert. Die gelbe Kurve zeigt die Messwerte als Abweichung vom Jahresgang der Station. Deutlich sichtbar ist der systematische Fehler 1993 in den Residuen zwischen simulierter und beobachteter Zeitreihe (rote Kurve). Die Subtraktion des 30-tägig gleitenden Mittels (Abb.2 obere braune Kurve) von der Ausgangsreihe führt zu einem ruhigen Verlauf der Residuen bei erneuter Simulation der Messreihe (grüne Kurve).



**Abb. 2:** Validierung der Ozonmeßreihe Stuttgart-Mitte Stufe III,  
Korrektur systematischer Fehler, Sommerhalbjahr

Die Streuung der Residuen als Mittel über alle 480 validierten Messreihen des Zeitraumes 1990 bis 1997 zwischen 13°° und 18°° GMT für verschiedene Validierungsstufen sind aus Abb.3 ersichtlich. Deutlich ist die verbesserte Simulation der Zeitreihen unter Verwendung



**Abb. 3: Reststreuung bei kompletter Simulation der Zeitreihen mit umliegenden Beobachtungsstationen als Mittel über 470 Stationen, 1990 bis 1997, Sommer, Mittel 13 bis 18 GMT**

umliegender Ozonmessstationen im Vergleich zu den unkorrigierten Messreihen (Originaldaten) bzw. der subjektiv korrigierten und ergänzten Messreihen (ohne Korrektur) zu erkennen. (Ausführlichere Erläuterungen zur Methodik und weitere Beispiele siehe Teilbericht 2)

## 2.2 Datenergänzung der Ozonmessreihen

Nach der Validierung der Zeitreihen wurde als zweiter Schritt eine **Ergänzung von fehlenden Daten** in zwei Stufen vorgenommen:

### 2.2.1 Zeitliche Interpolation

In der ersten Stufe werden alle Datenlücken, die drei Stunden nicht überschreiten, durch eine lineare Interpolation geschlossen.

### 2.2.2 Räumliche Interpolation

Die räumliche Interpolation verwendet die stündlichen vom Jahresgang bereinigten validierten Datenreihen. Mittels eines multiplen screening Regressionsverfahrens (Enke 1986, 1988) wurde für jede Station und für jede Stunde eine Regressionsbeziehung entwickelt, die maximal 4 Stationen einbezieht. Das Selektionskriterium für die zu verwendenden Stationen war dabei nicht die räumliche Nähe zu der Station, sondern die Minimierung der Reststreuung bei

der Simulation der Zeitreihe. Es wurden also durchaus räumlich weit entfernt liegende Stationen verwendet, die jedoch dem Stationstyp (Land-, Stadt-, Verkehrs- oder Bergstation ) besser entsprechen.

## 2.3 Wetterbereinigung der Ozonmessreihen

Als **dritter Schritt** wurde eine **Wetterbereinigung** der validierten und ergänzten Daten vorgenommen.

### 2.3.1. Methodische Grundlagen der Wetterbereinigung

Die Bildung und Zerstörung von Ozon ist vielfältig mit dem Wettergeschehen, also den atmosphärischen Zustandsparametern, in Raum und Zeit vernetzt. Ozon als ein sekundärer Schadstoff wird durch photochemische Prozesse in Verbindung mit Vorläuferschadstoffen gebildet. Den atomaren Sauerstoff, der zusammen mit dem Sauerstoffmolekül  $O_2$  das Ozon ( $O_3$ ) bildet liefert die photolytische Zerlegung von  $NO_2$  in NO und O. Da dieser Prozess eine Funktion insbesondere des Strahlungsangebotes ist, wird der Zusammenhang mit dem Wettergeschehen deutlich. Über die vielfältigen Prozesse im Konzert der Bildung und Auflösung von Bodenozon haben u.a. Fricke 1980, Beilke 1991, Kirch 1997, Ruggaber 1994, Enke 1998 geschrieben. In den untersten ca. 500 m der Atmosphäre erfolgt der Abbau von Ozon über den Titrationseffekt ( $NO + O_3 \Rightarrow NO_2 + O_2$ ) sowie über die sogenannte Trockendeposition, also durch den direkten Kontakt mit Pflanzen und anderen Materialien der Erdoberfläche. Dieser Abbau ist proportional zur Ozonkonzentration und hängt im wesentlichen von der vertikalen Temperaturschichtung ab. Ozon selbst hat eine Lebensdauer von mehreren Tagen, so dass neben der bekannten durch photochemische Prozesse angeregten Ozonbildung sicher auch Langstreckentransporte des Ozons von Bedeutung sind. Diese Transportprozesse finden vorwiegend in der Schicht zwischen 500m und 1500m statt. Während die photochemischen Ozonbildungsprozesse in erster Linie durch das lokale Wetter bestimmt werden, werden die Transportprozesse mehr durch das großräumige Wettergeschehen gesteuert. Abgesehen von den anthropogenen Quellen der Vorläufersubstanzen zur Ozonbildung sind alle wesentlichen Prozesse wie:

- Ozonbildung
- horizontaler Ozontransport
- vertikale Durchmischung
- Trockendeposition

von den meteorologischen Bedingungen abhängig.

Da das Wettergeschehen von Jahr zu Jahr mehr oder weniger stark variiert, kann es andere Einflüsse maskieren, so dass Änderungen der raum-zeitlichen Emissionsintensität erst bei sehr langen Reihen unverzerrt sichtbar werden. Die längsten in diesem Vorhaben für Trenduntersuchungen berücksichtigten Ozonreihen umfassen einen Zeitraum von 18 Jahren. Von der Mehrzahl der Stationen an denen in der Bundesrepublik Deutschland Ozon gemessen wird, sind die vorliegenden Messreihen noch deutlich kürzer, so dass unserer Meinung nach eine Wetterbereinigung dringend geboten ist, um weitestgehend „unverfälschte“ Ozontrends abzuleiten.

Von einzelnen Stationen vorhandene Ozonmessreihen, die einen wesentlich längeren Zeitraum als den hier genannten 18 Jahren überdecken, weisen vor 1980 so starke Diskontinuitäten auf, die auch im Rahmen der beschriebenen Datavalidierung nicht korrigiert und beseitigt werden konnten. Deshalb mussten diese „langen“ Ozonreihen von der in diesem Vorhaben erfolgten Trendanalyse ausgeschlossen werden.

Zur Wetterbereinigung werden die fehlwertersetzen und validierten Stundenwerte der Ozonmessreihen als Abweichung von den stationsspezifischen Jahresgängen verwendet. Damit lassen sich Abhängigkeiten zwischen Wettergeschehen und Ozon besser modellieren.

Als statistisches Verfahren zur Wetterbereinigung kommt eine bedingte, multiple, erwartungstreue screening Regressionsanalyse (Enke 1986, 1988) zur Anwendung.

### **2.3.2 Datenbasis**

Für die Wetterbereinigung standen 4 Datentypen für den Zeitraum von 1980 bis 1997 zur Verfügung.

**Validierte und fehlwertersetzte Stundenwerte des Bodenozons der Jahre 1980 bis 1997.**

**Klimabeobachtungen von 49 deutschen Klimastationen**

**Tempaufstiege von 15 deutschen Radiosondenstationen**

**Objektive Ozonwetterlagen** (Enke 1998)

### **2.3.3 Bereitstellung potentieller Prediktoren zur Wetterbereinigung**

Vier wesentliche Prozesse, die zum Auf- und Abbau von Ozonepisoden beitragen, werden durch unterschiedliche Datentypen beschrieben und simuliert:

## **Auf- und Abbau troposphärischen Ozons**

als Funktion von Strahlungsangebot (Sonnenscheindauer, Bewölkung, Feuchte) und Temperatur werden durch die Beobachtungen der nächstliegenden Klimastation beschrieben.

## **Horizontaler Transport von Ozon und dessen Vorläufersubstanzen**

als Funktion großräumiger Zirkulationssysteme und lokal beeinflußter Windsysteme werden durch die Ozonwetterlagen und lokale Winde beschrieben.

## **Vertikaler Transport von Ozon und dessen Vorläufersubstanzen**

als Funktion des vertikalen Temperaturprofils und der Temperatur am Erdboden. So- wohl vertikale Verdünnung bodennahen Ozons als auch Einmischen von höheren Ozonkonzentrationen aus der Reservoirschicht treten auf. Diese Prozesse werden durch die Ozonwetterlagen und Stabilitätsparameter der Atmosphäre beschrieben, die aus TEMP- Aufstiegen gewonnen werden.

## **Die Trägheit des Systems**

wird durch die Andauer der Ozonwetterlagen, beschrieben. Nähere Ausführungen über die verwendeten Wetterlagen und kritische Bemerkungen zu ‘Ozonwetterlagen’ findet man bei Enke 1998, Mayer&Schmidt 1997, 1998, Spichtinger u.a. 1996 und Hess&Brezowsky 1969.

Die Ergebnisse der Berechnung der einfachen Korrelationskoeffizienten zwischen allen zur Verfügung stehenden möglichen Einflussgrößen (potentiellen Prediktoren) und der Abweichung des täglichen Ozonmaximums vom stationsspezifischen Jahresgang als Mittel über alle 480 Ozonmessstellen zeigt ein überraschendes Phänomen: Nicht, wie verbreitet angenommen, das Tagesmaximum der Temperatur weist die höchste Korrelation auf sondern das Kondensationsniveau und die Auslösetemperatur (Größen, die die thermische Stabilität der Atmosphäre kennzeichnen – nähere Erläuterung dieser Größen siehe Teilbericht I) leisten den stärksten Beitrag zur Wetterbereinigung. Auch das aus den Ozonwetterlagen hergeleitete mittlere tägliche Ozonmaximum weist eine signifikante Korrelation auf. Der Zusammenhang ist am stärksten bei städtischen Stationen. Nicht überraschend ist jedoch der inverse Zusammenhang zwischen Sonnenscheindauer, Niederschlag, Bewölkung und mittlerer Windschwindigkeit.

### 2.3.4 Berechnung der ‘wetterbereinigten’ Ozondatenreihen

Nach der Beseitigung des Jahresgangs und der linearen Trends aus den Ozonreihen wurde

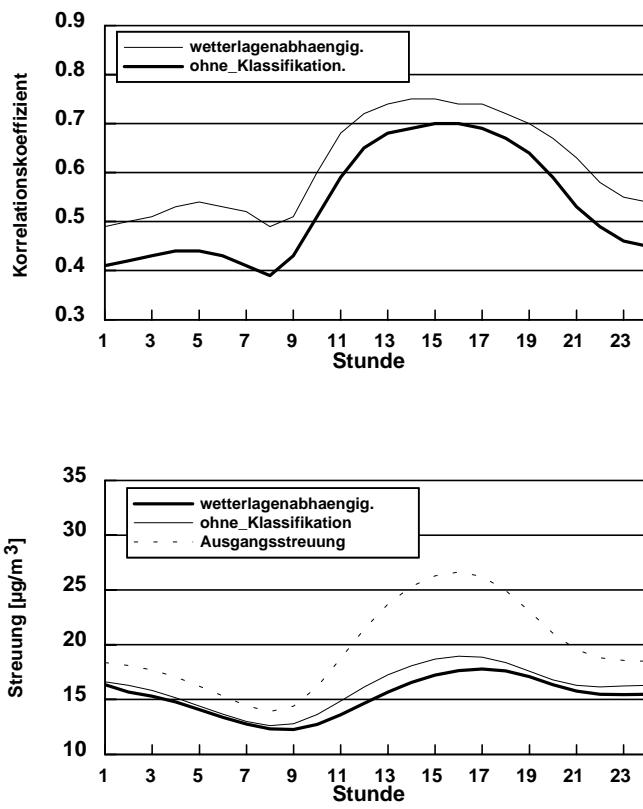


Abb. 4: Güte der Wetterbereinigung Sommer 1980 - 1997,  
Mittel über 480 Stationen

Aus der Wetterbereinigung lassen sich folgende allgemeine Aussagen gewinnen:

Die Güte der Wetterbereinigung ist im Sommer deutlich höher als im Winter. Sie liegt maximal bei einem Bestimmtheitsmaß von 0.58%

Die Wetterabhängigkeit der Ozonkonzentration ist im Sommer in den Morgenstunden am geringsten und erreicht ihr Maximum gegen 15°° GMT, zur Zeit der täglichen Ozonmaxima.

Die Wetterabhängigkeit der Bodenozonkonzentration im Winter weist einen nahezu gegenläufigen Tagesgang im Vergleich zum Sommer auf. Sie ist am besten in den Morgenstunden und erreicht ihr Minimum gegen 17°° GMT. Allerdings ist der Tagesgang sowohl der Ausgangsstreuung als auch der des Korrelationskoeffizienten deutlich geringer.

Die **wetterlagenbedingte** Wetterbereinigung der Ozonreihen bringt eine Zunahme des Bestimmtheitsmaßes von ca. 9%

Im Gegensatz zu der weit verbreiteten Vorstellung, dass die Maximumtemperatur in den Sommermonaten die bestimmende Einflussgröße ist, rangieren die Höhe des Kondensa-

für jede Stunde separat eine Wetterbereinigung durchgeführt. Aus Gründen der statistischen Stabilität wurde ein fünfstündig-gleitendes Mittel der jahresgangbereinigten Ozonreihen zur Wetterbereinigung verwendet.

In Abb.4 sind der Tagesgang des multiplen Korrelationskoeffizienten zwischen meteorologischen Parametern und Ozon sowie die Streuung der Ausgangsreihe bzw. die Reststreuung mit und ohne wetterlagenbedingte Wetterbereinigung als Mittel über alle 480 zur Verfügung stehenden Stationen für das Sommerhalbjahr aufgetragen.

tionsniveaus mit 43%, die Bedeckung durch Wolken mit 19% und die Sonnescheindauer mit 24% weit vor der Maximumtemperatur mit 10%. Dies gilt aber nur im diagnostischen Fall!

In den Nachtstunden werden die Verhältnisse wesentlich durch die mittleren Windverhältnisse geprägt. Die aus den Radiosondenaufstiegen abgeleiteten Stabilitätsgrößen spielen hingegen keine Rolle.

Die Abhängigkeiten in den Nachtstunden im Sommer gleichen auffällig den Verhältnissen in den Wintermonaten, sowohl bezüglich der Auswahl der Prediktoren als auch bezüglich der Höhe der Korrelationskoeffizienten.

Im Winterhalbjahr ist der Niederschlag in den Nachtstunden nach der mittleren Windschwindigkeit die wichtigste wetterbedingte Einflussgröße, die die Variabilität des Ozons bestimmt.

Betrachtet man das Gesamtergebnis der Wetterbereinigung der Ozonreihen, so scheint auf den ersten Blick eine Varianzreduktion von 50% (bzw. maximal 58% bei Einbeziehung der Wetterlagen) relativ gering. Stellt man jedoch in Rechnung, dass Unkorrektheiten der Messgenauigkeiten in den neunziger Jahren mit mindestens 6% zu Buche schlagen und die Variabilität der Vorläufersubstanzen zur Ozonbildung bzw. -Auflösung einen Anteil von ca. 25% der Gesamtvariabilität ausmachen, so erscheint die verbleibende Unbestimmtheit von ca. 11% durchaus vertretbar (Abb.4a).

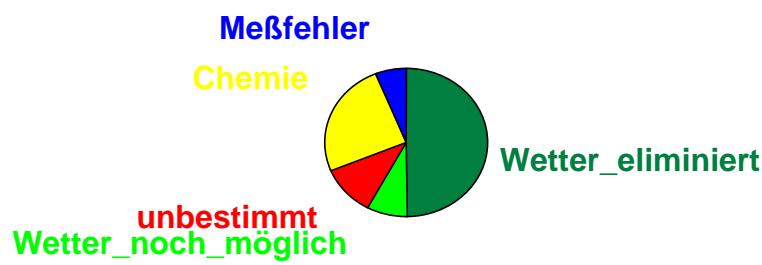


Abb. 4a: Relativer Beitrag zur Variabilität der täglichen Ozonmaxima

### 3 Ozontrendanalyse der Jahre 1980 bis 1997

Für die Ozontrendanalyse stehen Ozonmessreihen der Jahre 1980 bis 1997 zur Verfügung, die sorgfältig validiert (Teilbericht 2 „Validierung“) und wetterbereinigt (Teilbericht 3 „Wetterbereinigung“) wurden.

Für die Trendanalyse des Zeitraumes 1990 bis 1997 wurde ein separater Teilbericht 1 erstellt, da vom Auftraggeber innerhalb des ersten Forschungsjahres vorläufige Ergebnisse für dieses Zeitintervall gewünscht wurden. In diesem Teilbericht wurde gleichfalls die Methodik der Datenvalidierung und Wetterbereinigung beschrieben, wenn sie auch im Detail von den hier kurz vorgestellten verbesserten Verfahren abweicht. Zur Einsicht der für dieses Zeitintervall analysierten Trends wird auf Teilbericht 1 und die Zeitschrift Promet 2001 verwiesen.

#### 3.1 Voruntersuchungen zur Ozontrendanalyse

Sind für die Trenduntersuchungen ausschließlich Mittelwerte (Tagesmittelwerte, Saison- oder Jahresmittelwerte) von Interesse, so lassen sich die validierten und wetterbereinigten Ozondatensätze ohne weitere Bearbeitung verwenden, obwohl 50% bis 60% der Varianz durch die Wetterbereinigung eliminiert wurde (Abb.4a). Die Restvarianz in den wetterbereinigten Ozonreihen hat ihre Ursachen neben Messunsicherheiten in der Variabilität der natürlichen und anthropogenen Vorläufersubstanzen zur Ozonbildung und -auflösung.

In Abb.5a werden die validierten und fehlwertersetzenen Ozonwerte von 16° GMT als Abweichung vom stationsspezifischen Jahresgang dieser Stunde, für die Sommerhalbjahre 1980 bis 1997 als gewichtetes Mittel der im betreffenden Jahr zur Verfügung stehenden Messstationen (Abb.5a linke Tabelle) dargestellt.

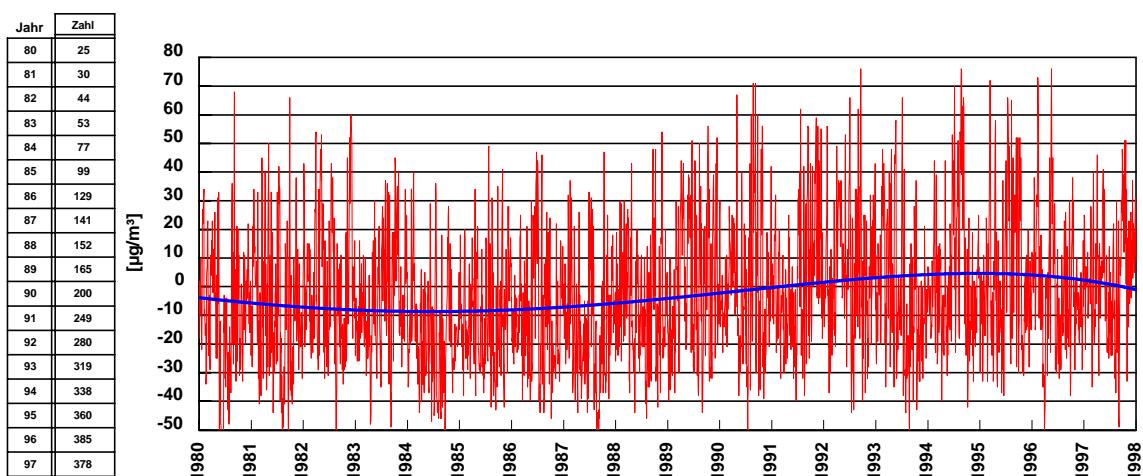


Abb. 5a: Validierte und Jahresgang bereinigte 16° GMT Ozonwerte als Mittel über alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Die rote Kurve zeigt die Schwankung der über alle Stationen gemittelten  $16^{\circ}\text{GMT}$  Ozonwerte. Die blaue Kurve stellt eine Ausgleichskurve mittels eines Polynoms 3. Grades (polynominal fit) dar. Man beachte die starke Zunahme der Anzahl der Ozonmessstellen von 25 Stationen Anfang der achtziger Jahre auf 378 im Jahre 1997.

Das Polynom 3. Grades zeigt eine Schwingung, die eine Abnahme der mittleren Ozonkonzentration von 1980 bis ca. 1985, einen kräftigeren Anstieg bis ca. 1994 und anschließend eine leichte Abnahme der mittleren Ozonkonzentration ab 1994 erkennen lässt.

Betrachtet man die Abb.5b, hier handelt es sich um die wetterbedingte Variabilität der Ozonzeitreihe in Abb.5a, so erkennt man, dass ein großer Teil der Variabilität der Ausgangsreihe auf den Wettereinfluss zurückzuführen ist.

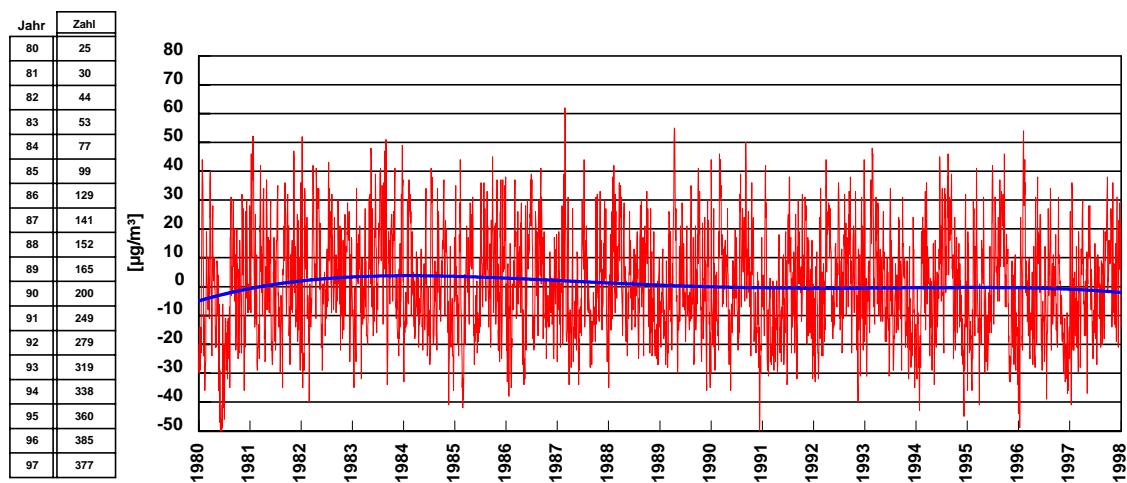


Abb. 5b: Validierte und Jahresgang bereinigte  $16^{\circ}\text{GMT}$  Ozonwerte minus validierte, Wetter- und Jahresgang bereinigte  $16^{\circ}\text{GMT}$  Ozonwerte als Mittel über alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Dies sind ca. 50% bis 60% der Streuung der Ausgangsreihe (vgl. hierzu Teilbericht 3 ‘Wetterbereinigung’). Aus der Abb.5b ist weiterhin ersichtlich, dass der Wettereinfluss nicht nur kräftigen Schwankungen von Tag zu Tag unterliegt sondern auch eine langperiodische Schwingung aufweist, welche die in Abb.5a deutlich sichtbare Schwingung in den achtziger Jahren noch verstärkt und Ende der neunziger Jahre leicht abschwächt (vgl. dazu Abb.5c). Ein Vergleich der Abb.5a (validierte, nicht wetterbereinigte  $16^{\circ}\text{GMT}$  Ozonwerte) mit Abb.5c (validierte, wetterbereinigte  $16^{\circ}\text{GMT}$  Ozonwerte) zeigt die deutliche Reduktion der Streuung in der wetterbereinigten Ozonzeitreihe.

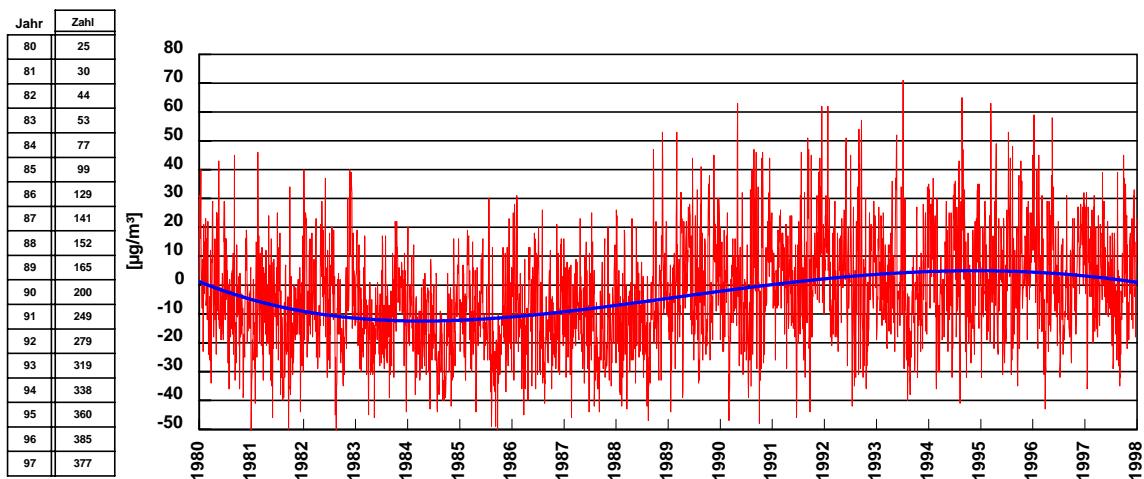


Abb. 5c: Validierte, Wetter- und Jahresgang bereinigte 16°GMT Ozonwerte als Mittel über alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

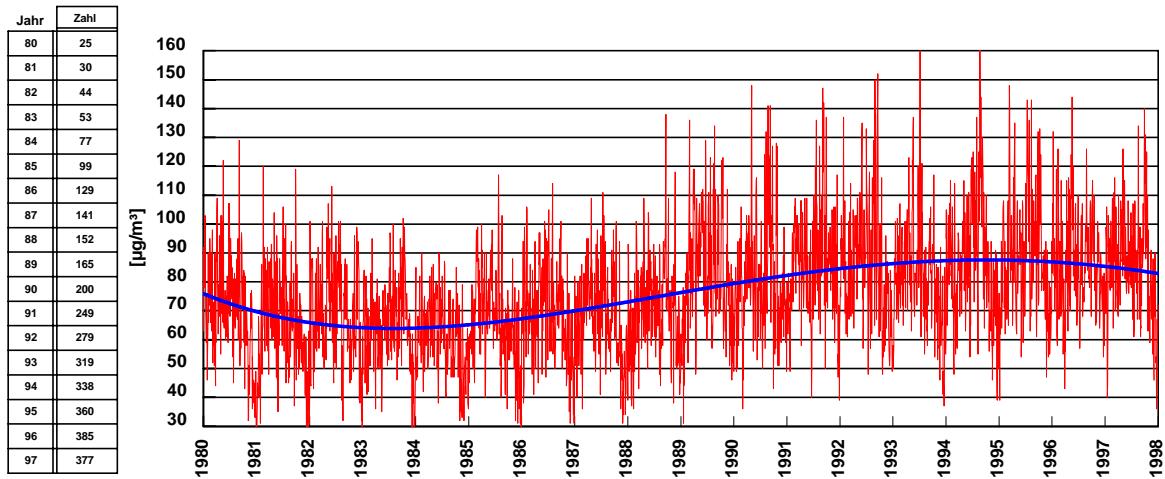
Wie schon aus einer Betrachtung der wetterbereinigten Ozonreihe (Abb.5c ) ersichtlich ist, fehlen extreme Ozonwerte fast vollständig. Diese sind der ‘Wetterbereinigung zum Opfer’ gefallen, da die wetterbedingte Variabilität der Ozonmessreihen nicht mehr vorhanden ist. Die Ozonreihen zeigen nun eine solche Streuung, als wenn über Jahre hinweg ein sogenanntes ‘Einheitswetter’ geherrscht hätte. Die verbleibende Variabilität hat nun andere Ursachen.

Da jedoch neben den Trendanalysen der mittleren Ozonkonzentrationen vor allem höhere Ozonkonzentrationen und AOT40 Werte von Interesse sind, wird eine Renormierung der wetterbereinigten Ozonreihen durchgeführt. Um dies zu erreichen, werden im ersten Schritt die Rangfolgen der wetterbereinigten Ozonreihe und die der Ausgangsozonreihe bestimmt.

Im zweiten Schritt erfolgt die Zuordnung des Ranges der Originalozonreihe zu dem der wetterbereinigten Ozonreihe. Im Ergebnis liegt eine Ozonreihe vor, deren Einzelwerte über den untersuchten Zeitraum so verteilt sind, als ob über Jahre hinweg ein ‘Einheitswetter’ herrschte.

Das Ergebnis der Renormierung der in Abb.5c dargestellten Zeitreihe ist aus Abb.5d ersichtlich. Zur Untersuchung von vorgegebenen Schwellenwerten wurde zusätzlich auf die wetterbereinigte und renormierte Ozonzeitreihe der stationsspezifische Jahresgang der Ozonkonzentration wieder aufgeprägt, so dass nun die geläufige Größenordnung der Ozonmessreihen wieder sichtbar wird. Die in Abb.5d ersichtliche Varianz der Ozonzeitreihe ist nun nahezu identisch mit der Varianz der validierten, nicht wetterbereinigten Ausgangsozonreihe in Abb.5a. Der reale zeitliche Bezug der Einzelwerte jedoch ging infolge der Renormierung verloren. Die realen Ozonwerte wurden so über den Zeitraum 1980 bis 1997 verteilt, als ob bezüglich der Variabilität und Ausprägung des Wetters ‘konstante’ Verhältnisse herrschten.

Die gefittete Schwingung (blaue Kurve) ist vor und nach der Renormierung in ihrer Lage und Amplitude nahezu identisch. Bedingt durch die Aufprägung des Jahresganges der Ozonkonzentration (Abb.5d) wird zusätzlich die Halbjahresschwingung sichtbar. Die Wetterbereinigung und Renormierung der Ozonreihen führt zu einer leichten Modifikation der gefitteten blauen Schwingung (vgl. Abb.5c und Abb.5d).



**Abb. 5d:** Validierte, wetterbereinigte und renormiert 16°GMT Werte als Mittel über alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Zur weiteren Untersuchung liegen nun validierte jahresgangbereinigte Stundenwerte (Datensatz LIMBA26); validierte, wetter- und jahresgangbereinigte Stundenwerte (Datensatz LIMBA28) und validierte wetterbereinigte und renormierte Stundenwerte (Datensatz LIMBA29) der Ozonkonzentration auf CD vor.

### 3.2 Trends für unterschiedliche Ozonaggregierungen

#### 3.2.1 Trends der Tagesmaxima der Ozonkonzentration

Bei Bedarf erlaubt der Ozondatensatz LIMBA29 für jede Stunde und Jahreszeit spezifische Untersuchungen.

An späterer Stelle werden noch einige Ergebnisse für das Winterhalbjahr und für die das Ozonminimum repräsentativen Morgenstunden vorgestellt. Die weiteren Untersuchungen im folgenden Abschnitt beschränken sich jedoch zunächst auf die Tagesmaxima der Bodenozonkonzentration, die aus den Stundenwerten (01 bis 24 Uhr) berechnet wurden.

Die Abb.6a zeigt den zu Abb.5a vergleichbaren Inhalt, nur dass es sich hier um die Tagesmaxima der Bodenozonkonzentration handelt. Bemerkenswert ist die deutliche Begrenzung niedriger Tagesmaxima der Ozonwerte. Dies bedeutet, dass bei niedrigen täglichen Ozonmaxima der Zeitpunkt des Auftretens weniger an die Tageszeit gekoppelt ist als bei hohen Ozonwerten. Das wird auch bestätigt durch deutlich unterschiedliche Tagesgänge der Ozonkonzentration bei antizyklonal oder zyklonal geprägten Wetterlagen. (vgl. hierzu Teilbericht 3 ‘Wetterbereinigung’)

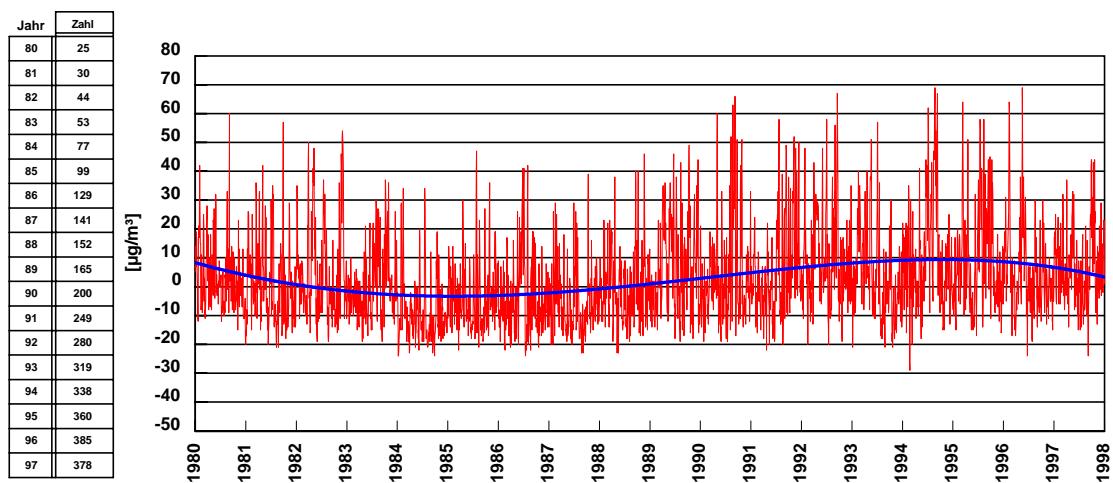


Abb. 6a: Validierte und Jahresgang bereinigte Tagesmaxima der Ozonkonzentration als Mittel über alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Die scheinbar niedrigeren Ozonspitzenwerte der Tagesmaxima im Vergleich zu den 16°° GMT Werten (Abb.5a) sind eine optische Täuschung, da es sich in beiden Fällen um Abweichungen vom mittleren Jahresgang handelt. Der mittlere Jahresgang der Ozonmaxima liegt um  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  bis  $15\mu\text{g}/\text{m}^3$  höher als der der 16°° GMT Werte. Die gefittete blaue Kurve hingegen weist für die Ozontagesmaxima eine etwas größere Amplitude als die für die 16°° GMT Ozonwerte auf. Dies sind schon an dieser Stelle erste Hinweise, dass bei Ozonspitzenwerten die zeitlichen Änderungen stärker ausgeprägt sind.

Der nächste Schritt ist eine Untergliederung des Gesamtdatensatzes in die 4 Stationskategorien: **verkehrsnah: ‘vk’, städtisch: ‘st’, ländlich: ‘la’, Bergstationen: ‘bg’**

Für die Abb.6b bis Abb.6e wird der validierte, nicht wetterbereinigte Datensatz LMBA26 verwendet und das Mittel der Ozontagesmaxima als Abweichung vom geglätteten Jahresgang der Ozontagesmaxima für die Stationstypen ‘vk’ (Abb.6b), ‘st’ (Abb.6c), ‘la’ (Abb.6d) und ‘bg’ (Abb.6e) berechnet. Die Anzahl der für die Mittelung verwendeten Stationen ist aus der linken Tabelle in den Abbildungen ersichtlich.

Jahr	Zahl
80	9
81	12
82	21
83	20
84	25
85	31
86	37
87	39
88	43
89	45
90	51
91	59
92	67
93	66
94	66
95	69
96	72
97	69

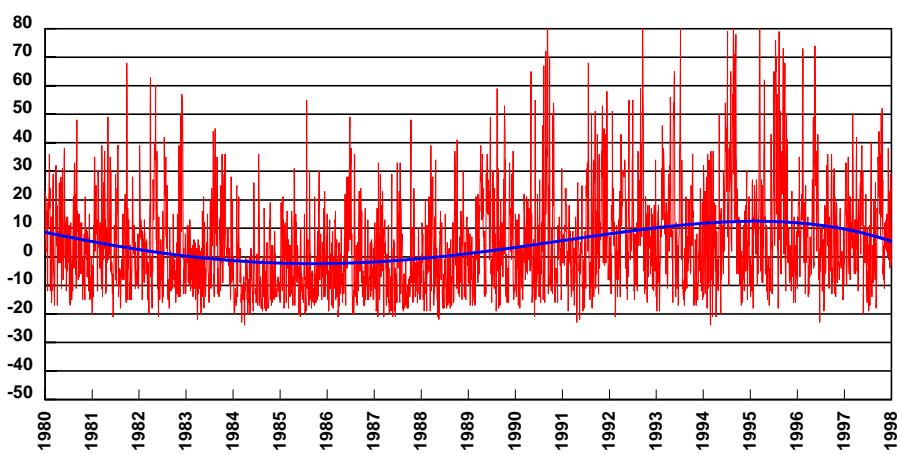


Abb. 6b: Validierte und Jahresgang bereinigte Tagesmaxima der Ozonkonzentration als Mittel über alle 'vk' Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Jahr	Zahl
80	8
81	8
82	11
83	16
84	22
85	32
86	53
87	58
88	62
89	72
90	100
91	128
92	152
93	187
94	199
95	215
96	231
97	227

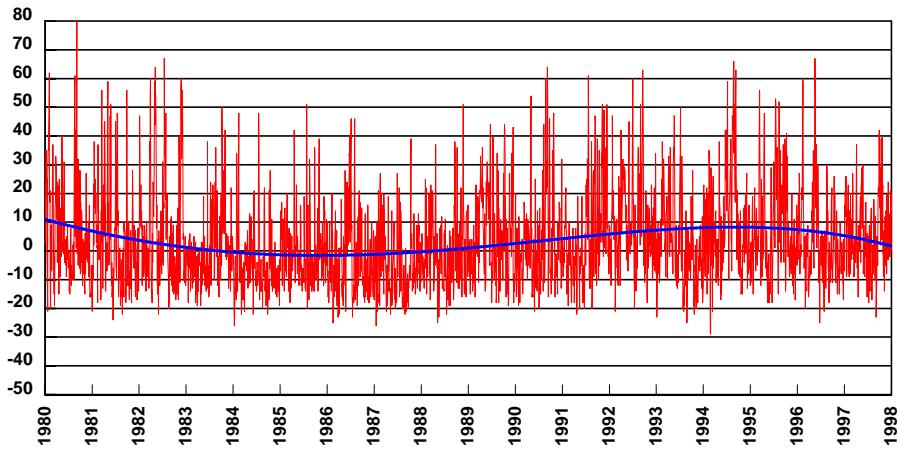


Abb. 6c: Validierte und Jahresgang bereinigte Tagesmaxima der Ozonkonzentration als Mittel über alle 'st' Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Jahr	Zahl
80	6
81	7
82	9
83	14
84	23
85	28
86	31
87	36
88	39
89	40
90	43
91	56
92	54
93	59
94	66
95	68
96	73
97	73

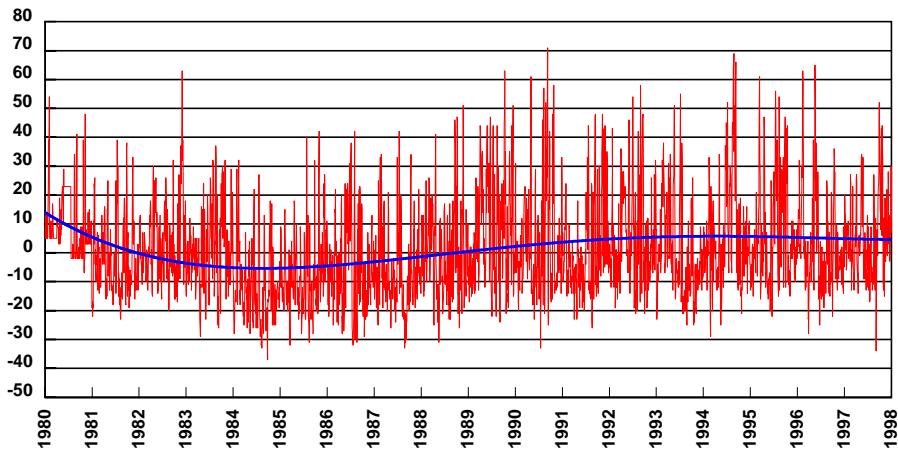


Abb. 6d: Validierte und Jahresgang bereinigte Tagesmaxima der Ozonkonzentration als Mittel über alle 'la' Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

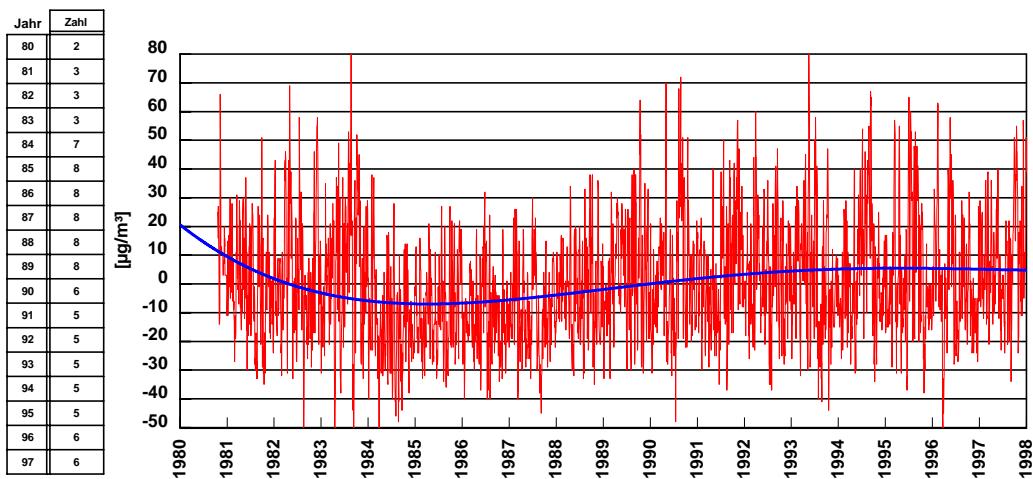


Abb. 6e: Validierte und Jahresgang bereinigte Tagesmaxima der Ozonkonzentration als Mittel über alle 'bg' Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Aus der Betrachtung der Abb.6b bis Abb.6e (nicht wetterbereinigter Datensatz) lassen sich zwei Aussagen ableiten:

- Die interdiurne Variabilität ist am geringsten bei ländlichen- und städtischen Stationen und am größten bei Verkehrs- und Bergstationen.
- Die Amplitude der gefitteten Schwingung ist bei den verkehrsnahen Stationen am größten und nimmt über die städtischen und ländlichen hin zu den Bergstationen stetig ab.

Verwendet man den validierten, wetterbereinigten und renormierten Ozondatensatz LMBA29 zur Berechnung der Mittel der Ozontagesmaxima für die Stationstypen 'vk' (Abb.7b), 'st' (Abb.7c), 'la' (Abb.7d), 'bg' (Abb.7e) und alle Stationen (Abb.7a), so lassen sich im Vergleich mit den Abb.6a bis Abb.6e folgende Aussagen gewinnen.

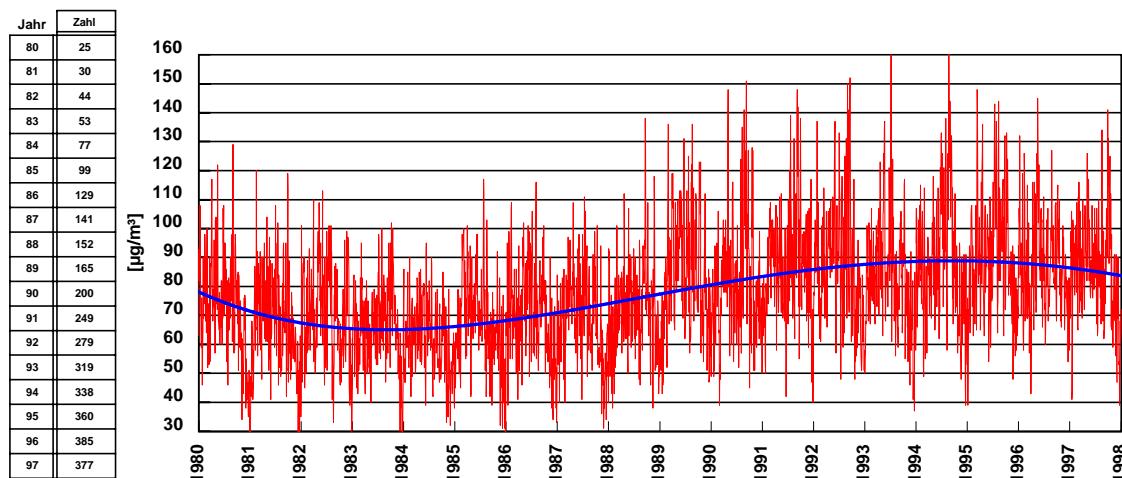
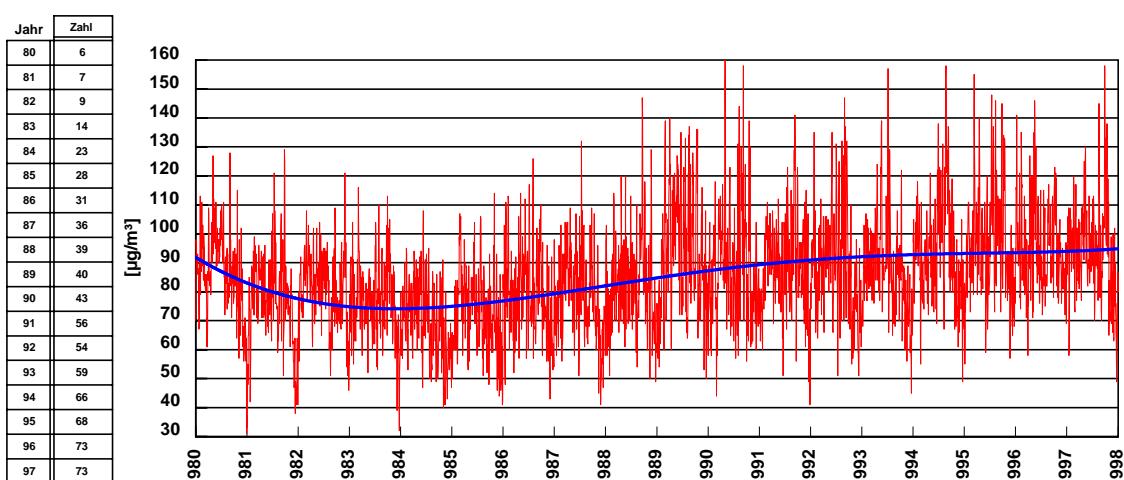
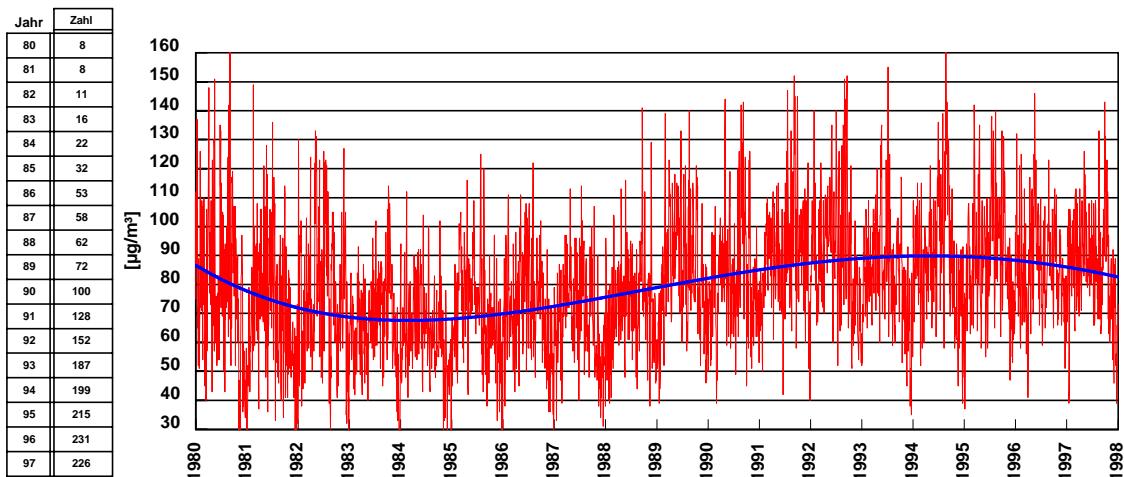
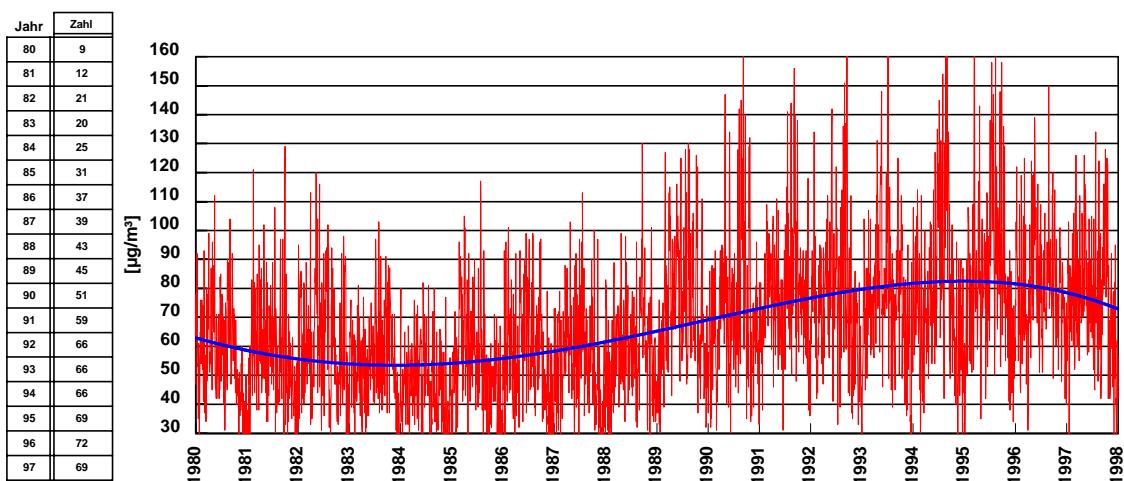


Abb. 7a: Validierte, wetterbereinigte und renormierte Tagesmaxima der Ozonkonzentration als Mittel über alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997



- Die zur Mittelung verwendete Stationsanzahl ist stark vom Stationstyp abhängig. Die Stationsanzahl erreicht bei den Bergstationen eine untere Grenze, für die noch verlässlich Aussagen möglich sind.
- Die interdiurne Variabilität ist weiterhin am geringsten bei ländlichen- und städtischen Stationen und am größten bei Verkehrs- und Bergstationen.
- Die Wetterbereinigung führt zu einer Verstärkung der gefitteten Schwingung vor allem bei den 'vk' und 'st' Stationen.
- Die Amplitude der gefitteten Schwingung ist bei den verkehrsnahen Stationen am größten und nimmt über die städtischen und ländlichen hin zu den Bergstationen stetig ab.
- Der angedeutete Abwärtstrend ab 1994 bei den nicht wetterbereinigten Ozondaten der Stationstypen 'la' und 'bg' (Abb.6d und Abb.6e) wird infolge der Wetterbereinigung bei diesen Stationstypen in einen leichten, stetigen Aufwärtstrend gewandelt.

Bei der Betrachtung der gefitteten blauen Kurven Abb.6a bis Abb.6e und Abb.7a bis Abb.7e drängen sich zwei Fragen auf:

- **Wird der aufgezeigte Trend durch das sich ändernde mittlere Wettergeschehen hervorgerufen?**

und

- **wird der aufgezeigte Ozontrend durch die sich ändernde Stationsanzahl vorgetäuscht?**

Bekanntlich ist die Zahl der Messstationen der vier Stationskategorien (Bergstation, ländliche Station, städtische Station und verkehrsnahe Station) unterschiedlich schnell angewachsen. Den größten Zuwachs erzielten die städtischen Stationen, den geringsten Zuwachs die Zahl der Bergstationen.

Auf die erste Frage, die nach dem Einfluss des mittleren Wettergeschehens auf die Ozonreihen, wurde mit der sogenannten "Wetterbereinigung" geantwortet. In deren Ergebnis wurde zwar eine Modifikation der gefitteten Schwingungen beobachtet, an der generellen Form und Aussage dieser Welle hat sich jedoch nichts geändert. Die Welle wurde infolge der Wetterbereinigung leicht verstärkt. Deutlichere Änderungen gab es nur bei den ländlichen Stationen und den Bergstationen.

Wenden wir uns nun der zweiten Frage zu, ob der aufgezeigte Ozontrend durch die sich ändernde Stationsanzahl vorgetäuscht wird.

Zur Beantwortung dieser Fragestellung betrachten wir in Abb.8 die über alle Stationen gemittelten täglichen Ozonmaxima, deren Reihen einen Zeitraum von mehr als 17 Jahren umfassen. Es handelt sich um insgesamt 22 Messreihen. Wie auf den ersten Blick ersichtlich, tritt bei der stark eingeschränkten Stationsanzahl diese bekannte Welle in nur leicht modifizierter Form auf.

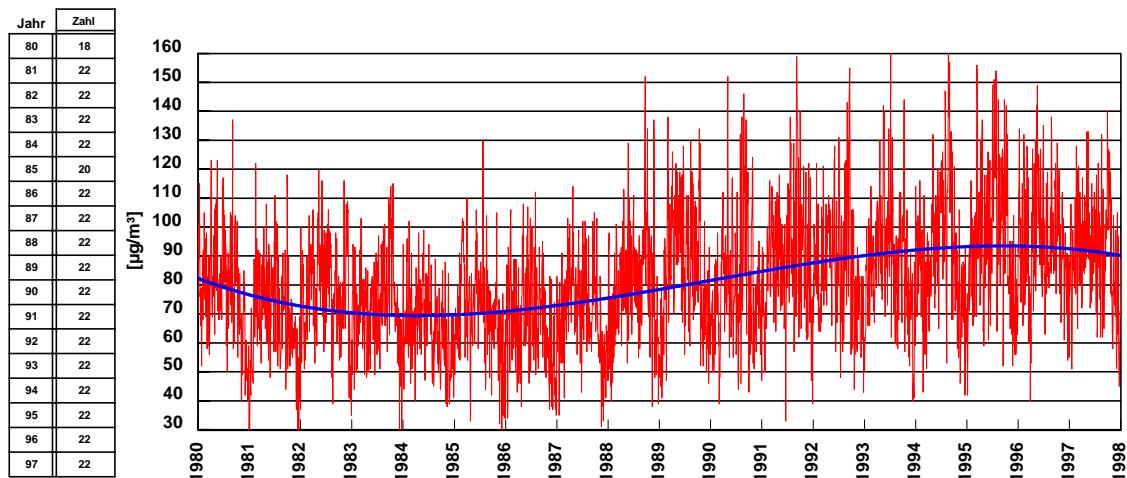


Abb. 8: Validierte, wetterbereinigte und renormierte Tagesmaxima der Ozonkonzentration als Mittel über alle Stationen >17 Jahre, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Um der Fragestellung weiter nachzugehen, ob die Mittelung unterschiedlich langer Reihen einen wesentlichen Einfluss auf das Gesamtmittel hat, betrachten wir zunächst die absolute Häufigkeit der Ozonmessstellen, getrennt für einzelne Stationskategorien (Abb.9). Bemerkenswert ist der steile Anstieg der Gesamtanzahl der Ozonmessstellen im Zeitraum von 1980 bis 1997. Dieser Anstieg ist im wesentlichen auf die Zunahme der städtischen Stationen zurückzuführen. Der Stationstyp verkehrsnah und ländlich zeigen hingegen nur einen langsam Anstieg. Nahezu konstant bleibt die Anzahl der Bergstationen.

Betrachtet man die relative Häufigkeit, getrennt nach Stationstypen (Abb.10), so fällt auf, dass um 1984 eine nahezu gleiche Zahl von verkehrsnahen, städtischen und ländlichen

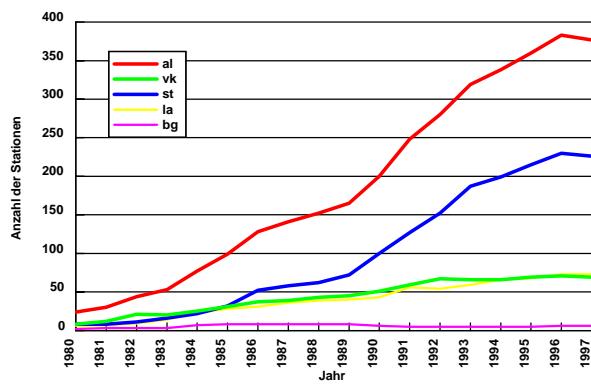


Abb. 9: Absolute Häufigkeit der Stationen, getrennt nach Stationstypen

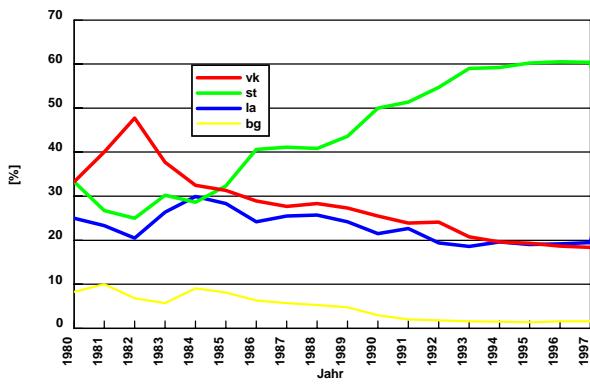


Abb. 10: Relative Häufigkeit der Stationen, getrennt nach Stationstypen

Stationen vorhanden war. Die relative Häufigkeit der Bergstationen lag bei 10%. Dieses ausgewogene Verhältnis hat sich im Laufe der Jahre deutlich zu Gunsten der städtischen Ozonmessstellen verschoben. Sie betrug 1997 ca. 60%. Über den gesamten Zeitraum betrachtet beträgt der relative Anteil der städtischen Stationen 52.2%, der der verkehrsnahen Stationen

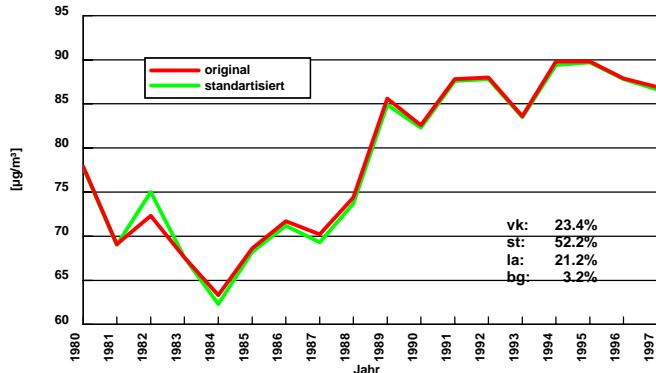


Abb. 11a: Sommermittelwerte der täglichen Ozonmaxima  
Standartisiert: Es wird angenommen, dass sich der prozentuale Anteil der Stationstypen im zeitlichen Verlauf nicht ändert.  
Original: Für die Mittelbildung wird der prozentuale Anteil der Stationstypen des entsprechenden Jahres verwendet.

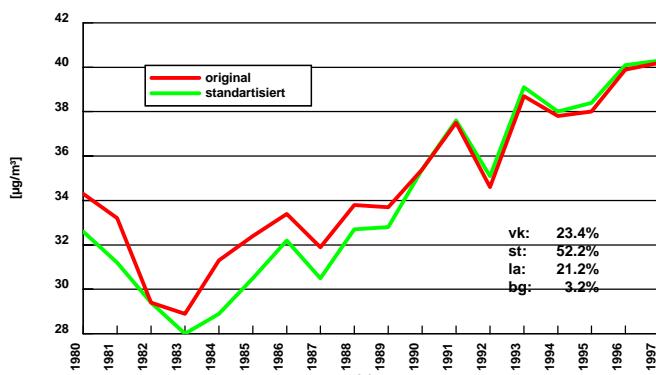


Abb. 11b: Wintermittelwerte der täglichen Ozonmaxima  
Standartisiert: Es wird angenommen, dass sich der prozentuale Anteil der Stationstypen im zeitlichen Verlauf nicht ändert.  
Original: Für die Mittelbildung wird der prozentuale Anteil der Stationstypen des entsprechenden Jahres verwendet.

Die roten Kurven gewinnt man, indem für jedes Jahr die Mittelung mit den realen relativen Stationshäufigkeiten des betreffenden Jahres berechnet wird. Wie leicht ersichtlich ist, sind beide Kurven für das Sommerhalbjahr (Abb.11a) nahezu identisch. Für das Winterhalbjahr ergeben sich kleinere Abweichungen (Abb.11b). Die Abschätzungen zeigen, dass die sich im zeitlichen Verlauf ändernde relative und absolute Stationshäufigkeit keinen wesentlichen Einfluss auf das Gesamtmittel ausübt. Die in den Abbildungen analysierte Schwingung hat somit, aus den bisherigen Ausführungen schlussfolgernd, einen realen Hintergrund.

23.4%, der der ländlichen Stationen 21,2% und der der Bergstationen 3.2%.

Nimmt man nun an, dass das prozentuale Verhältnis der Stationskategorien über den gesamten Untersuchungszeitraum von 1980 bis 1997 konstant bleibt, so erhält man in Abb.11a und Abb.11b die grünen Kurven, wenn man die Sommerhalbjahresmittelwerte bzw. die Winterhalbjahresmittelwerte der täglichen Ozonmaxima aus den Mittelwerten der 4 Stationskategorien (1980 bis 1997) berechnet und diese entsprechend der mittleren relativen Stationshäufigkeit des Gesamtzeitraumes wichtet.

**Aus diesem Grunde wurde der gesamte Untersuchungszeitraum in drei Intervalle untergliedert:**

- 1980 bis 1985: Diese Periode ist gekennzeichnet durch eine Abnahme der täglichen Ozonmaxima.
- 1985 bis 1994: Diese Periode ist gekennzeichnet durch eine Zunahme der täglichen Ozonmaxima.
- 1994 bis 1997: Diese Periode ist gekennzeichnet durch einen allmählichen Übergang zu niedrigeren täglichen Ozonmaxima.

Geht man nun der Fragestellung nach, ob diese Perioden für die einzelnen Stationskategorien unterschiedlich ausgeprägt sind, so stellt man fest, dass die Schwingung am deutlichsten bei dem verkehrsnahen Stationstyp ausgeprägt ist (Abb.7b). Ebenfalls noch gut ausgeprägt ist diese Welle bei dem städtischen Stationstyp (Abb.7c). Geringer wird sie hingegen bei den ländlichen Stationen (Abb.7d). Hier ist die Abnahme zwischen 1980 und 1985 noch gut zu erkennen, während im sich anschließendem Zeitraum ein nahezu linearer Anstieg zu verzeichnen ist. Noch deutlicher ist der durchgängig lineare Anstieg bei den Bergstationen (Abb.7e) zu erkennen, was auf eine stetig steigende europäische Hintergrundbelastung zurückzuführen ist. Die Überlagerung dieses europäischen linearen Trends mit regionalen Trends wird bei den weiteren Untersuchungen noch zu betrachten sein. Wie hinlänglich bekannt zeigen die gefüllten blauen Kurven der Abb.7b bis Abb.7d die Abstufung des mittleren Niveaus zwischen den Stationskategorien.

### **3.2.2 Trends morgendlicher Ozonkonzentrationen ohne regionale Untergliederung**

Die bisherigen Betrachtungen bezogen sich auf tägliche Ozonmaxima. Prinzipiell sind die hier präsentierten Ergebnisse für jede beliebige Tageszeit verfügbar, bringen jedoch keine grundlegend neuen Erkenntnisse. Von Interesse dürften noch Langzeitrends für die täglichen „Ozontiefststände“ sein, die im Sommerhalbjahr ca. gegen 6°° GMT auftreten, es sei denn dieser normale Tagesgang wird durch meteorologische Prozesse überlagert, die den Tagesgang ‘maskieren’. Gemittelt über alle Stationen und Stationstypen (Abb.12a) zeigt sich für das Sommerhalbjahr 6°° GMT nur eine sehr schwach ausgeprägte Schwingung, im Vergleich zu der Schwingung bei den Tagesmaxima der Ozonkonzentration. Auffällig ist die deutlich niedrigere interdiurne Variabilität der Ozonwerte in den Morgenstunden und eine Halbjahreswelle. Diese Halbjahreswelle hat ihr Maximum im Frühsommer. Sie wird im wesentlichen durch die städtischen und ländlichen Stationen geprägt (Abb.12c bzw. Abb.12d).

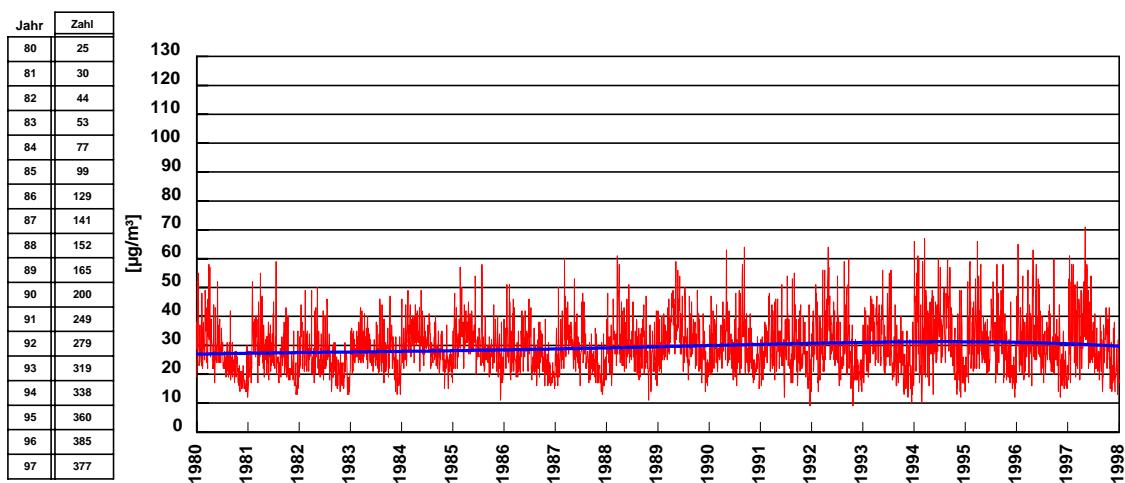


Abb. 12a: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^{\circ}$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

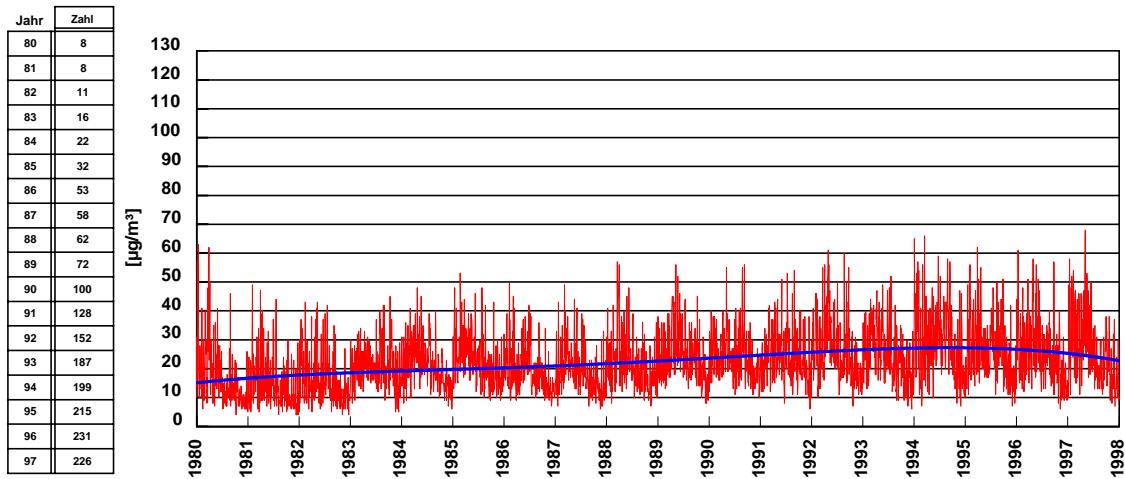


Abb. 12c: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^{\circ}$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle "st" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

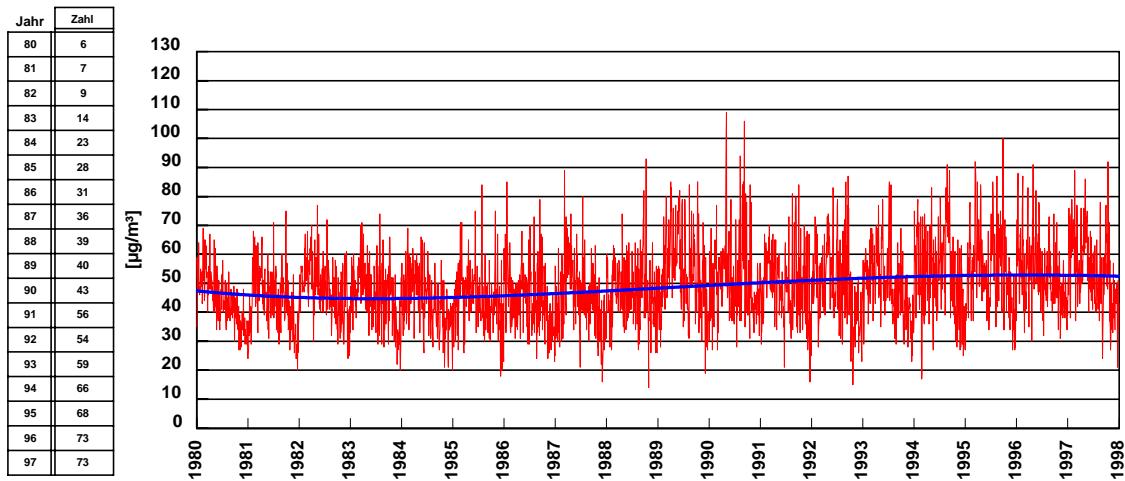


Abb. 12d: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^{\circ}$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle "la" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Betrachtet man die gefitteten Ausgleichskurven, so wird deutlich, dass die verkehrsnahen und städtischen Stationen nur einen geringen Ozontrend haben, während die Stationskategorien "ländlich" und "Berg" eine deutliche Zunahme der mittleren morgendlichen Ozonkonzentration zwischen Anfang der achtziger Jahre und Mitte der neunziger Jahre des letzten Jahrhunderts zeigen. Dieser Effekt dürfte auf eine stetig steigende europäische Hintergrundbelastung zurückzuführen sein. Während an den verkehrsnahen Stationen infolge des Titrationseffektes und der Trockendeposition an vielen Tagen die Ozonwerte nur knapp über den Sockelwerten liegen (Abb.12b) und somit eine hohe Tagesamplitude aufweisen, liegen die mittleren nächtlichen Tiefstwerte(Abb.12e) bei den Bergstationen nur um ca.  $20\mu\text{g}/\text{m}^3$  unter den Tagesmaxima. Sie weisen eine entsprechend geringe Tagesamplitude auf.

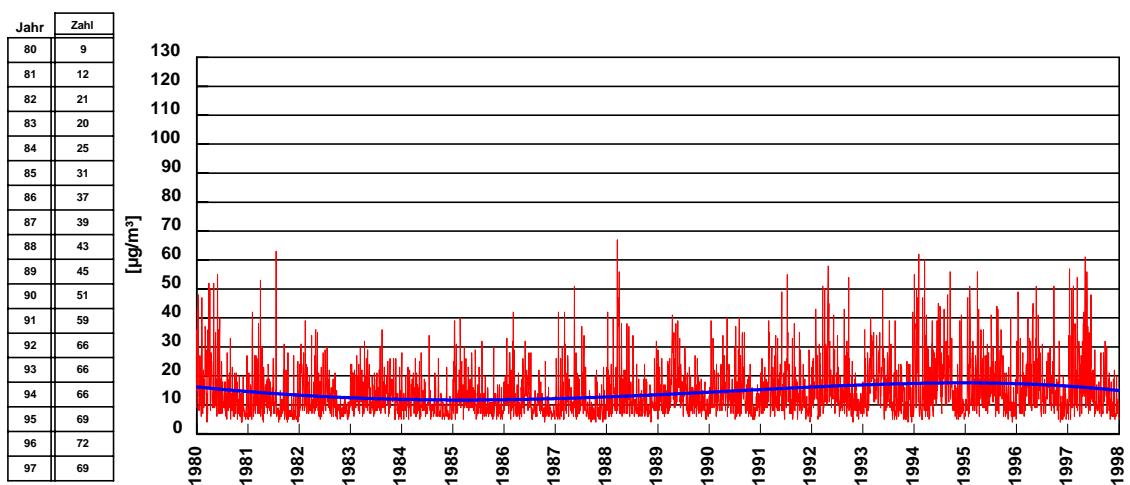


Abb. 12b: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^\circ$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle "vk" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

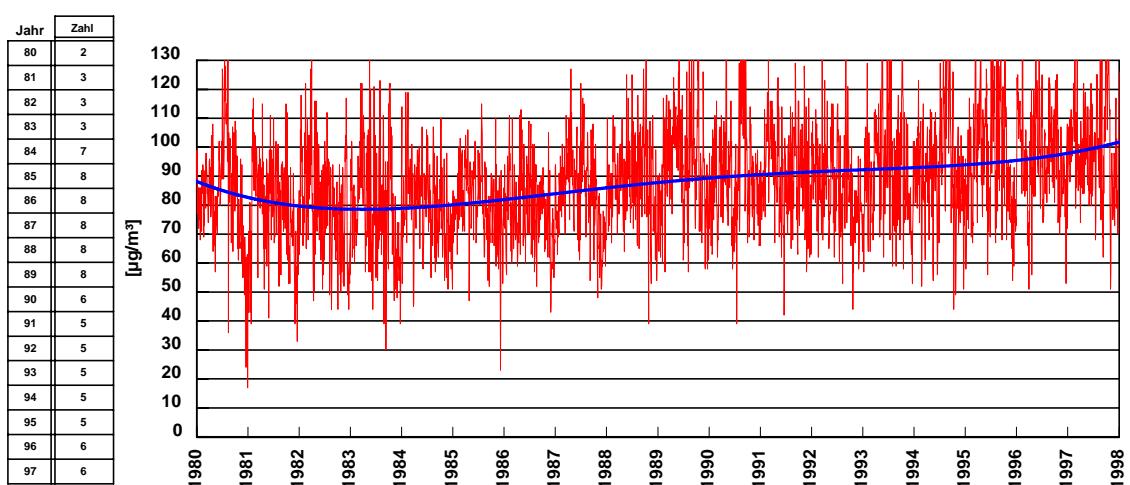


Abb. 12e: Validierte, wetter bereinigte und renormierte  $6^\circ$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle "bg" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Im Winterhalbjahr sind die Tagesamplituden der Ozonkonzentrationen sehr gering und zudem kaum an den Tagesgang des Strahlungsangebotes gekoppelt. Der stärkste Prediktor zur Simulation der Ozonkonzentration ist die Windgeschwindigkeit. Das ist ein Hinweis darauf, dass es in den Wintermonaten in den bodennahen Schichten der Atmosphäre nur in unbedeutendem Maße zur Ozonbildung kommt, sondern eher bei austauscharmen Wetterlagen zur Ozonzerstörung bzw. zum Ozonabbau, und so die wetterbedingte Variabilität der bodennahen Ozonkonzentration im wesentlichen durch horizontale und vertikale Durchmischungs- und Transportprozesse gesteuert wird. Zur Untersuchung des winterlichen Ozontrends ist es daher von geringer Bedeutung welche Stundenwerte zur Trenduntersuchung herangezogen werden. Zur Demonstration wurden die  $6^{\circ}$  GMT Werte gewählt, um noch zusätzlich einen möglichen Vergleich zwischen Sommer und Winterhalbjahr durchzuführen.

Im Winterhalbjahr  $6^{\circ}$  GMT ist die bekannte Welle praktisch nicht vorhanden. Die gefitteten blauen Kurven in den Abb.13a bis Abb.13e zeigen unabhängig vom Stationstyp einen linearen Anstieg der Ozonkonzentration zwischen 1980 und 1997. Auffällig ist die Übereinstimmung der Kurven zwischen Sommer- und Winterhalbjahr  $6^{\circ}$  GMT bezüglich ihrer Streuung. Die höchsten mittleren Ozonkonzentrationen sind erwartungsgemäß bei den Bergstationen und die niedrigsten bei den städtischen Stationen zu beobachten. Die sichtbare Halbjahreswelle ist am Sonnenstand orientiert. Sie hat ihr Minimum im Dezember und Januar.

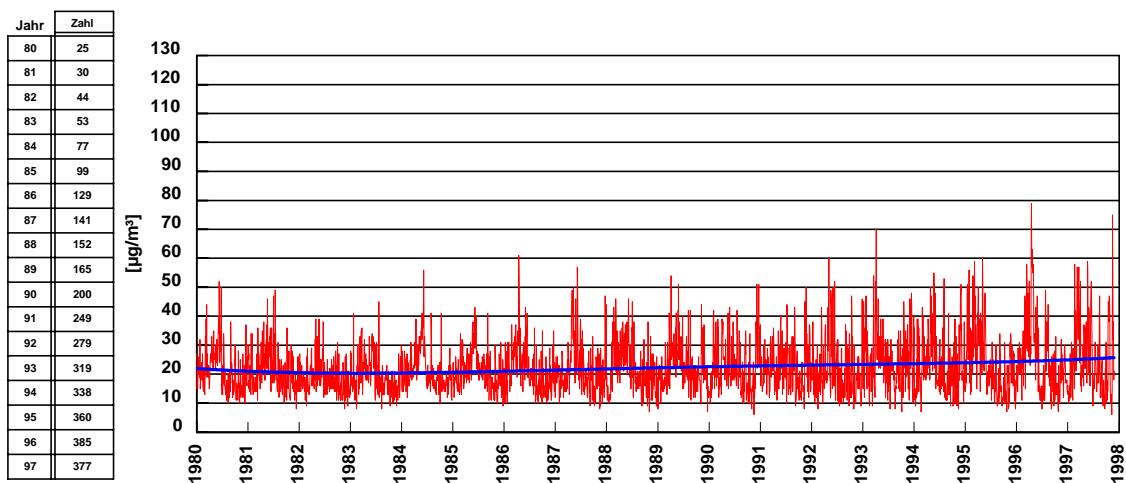


Abb. 13a: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^{\circ}$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle Stationen, Winterhalbjahre 1980 bis 1997

Jahr	Zahl
80	9
81	12
82	21
83	20
84	25
85	31
86	37
87	39
88	43
89	45
90	51
91	59
92	66
93	66
94	66
95	69
96	72
97	69

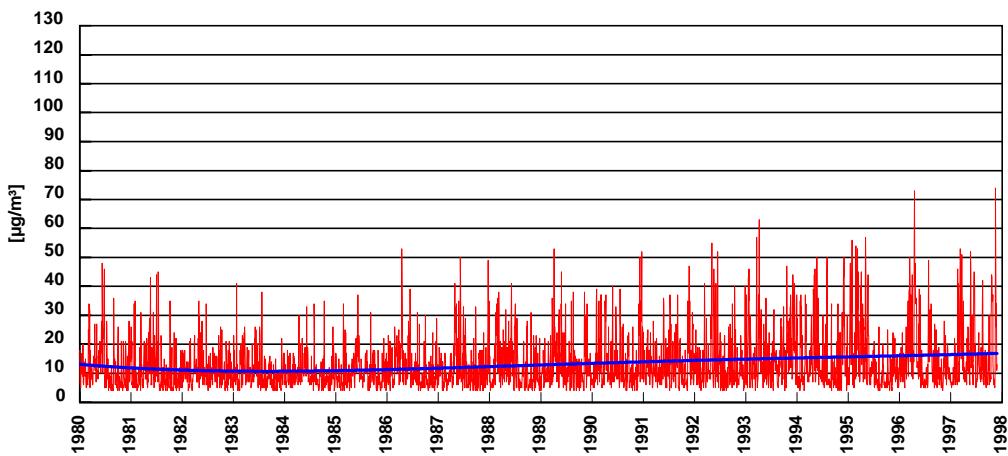


Abb. 13b: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^{\circ}$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle "vk" Stationen, Winterhalbjahre 1980 bis 1997

Jahr	Zahl
80	8
81	8
82	11
83	16
84	22
85	32
86	53
87	58
88	62
89	72
90	100
91	128
92	152
93	187
94	199
95	215
96	231
97	226

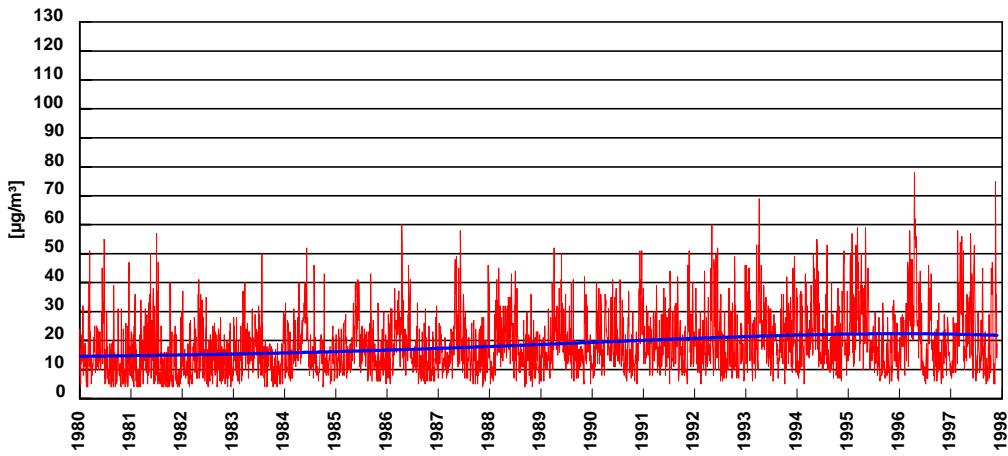


Abb. 13c: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^{\circ}$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle "st" Stationen, Winterhalbjahre 1980 bis 1997

Jahr	Zahl
80	6
81	7
82	9
83	14
84	23
85	28
86	31
87	36
88	39
89	40
90	43
91	56
92	54
93	59
94	66
95	68
96	73
97	73

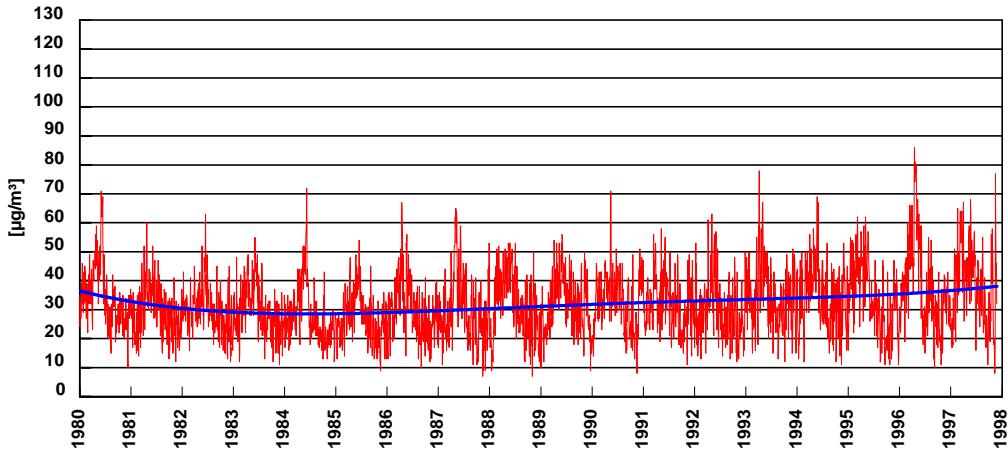


Abb. 13d: Validierte, wetterbereinigte und renormierte  $6^{\circ}$  GMT Ozonwerte als Mittel über alle "la" Stationen, Winterhalbjahre 1980 bis 1997

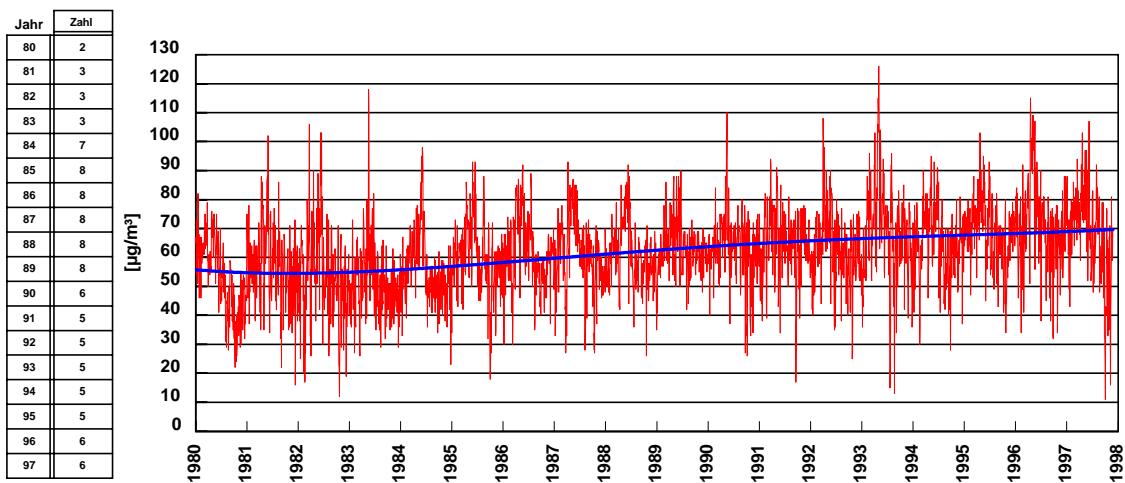


Abb. 13e: Validierte, wetterbereinigte und renormierte 6°° GMT Ozonwerte als Mittel über alle "bg" Stationen, Winterhalbjahre 1980 bis 1997

### 3.2.3 Schwellenwertspezifische Trends der Bodenozonkonzentration

Detailliertere Aussagen zum Trend verschiedener Ozonkonzentrationen gewinnt man, wenn die wetterbereinigten und renormierten Ozonreihen näher analysiert werden. Für diese Untersuchung werden alle täglichen Ozonmaxima in Stufen von  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  in einem Intervall von  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  bis  $220\mu\text{g}/\text{m}^3$  stationsweise den entsprechenden Klassen zugeordnet. In einem weiteren Schritt wird stationsspezifisch ein 5-jährig gleitendes Mittel der prozentualen Klassenbesetzung berechnet. Die fünfjährig gleitenden Mittel der Überschreitungshäufigkeiten zwischen 1982 und 1994 über alle Stationen und stationsspezifisch sind in Abb.14a bis Abb.20a dargestellt.

Deutlicher sichtbar werden die in den Zeitabschnitten 1980/85, 1985/94 und 1994/97 aufgetretenen Veränderungen, wenn man die prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeit in  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  Stufen vorgegebener Schwellenwerte zwischen Beginn und Ende der betreffenden Periode im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit jeder vorgegebenen Klasse im entsprechenden Zeitraum untersucht (Abb.14b bis Abb.20b). Für den Datensatz der validierten, wetterbereinigten und renormierten Ozonmaxima werden getrennt für jede Station die Überschreitungshäufigkeiten der nach obiger Vorgehensweise vorgegebener Schwellenwerte berechnet und diese anschließend über alle Stationen bzw. über Stationstypen gemittelt. Die Änderung der Überschreitungshäufigkeit zwischen Anfang und Beginn der entsprechenden Perioden (1980/85, 1985/94 und 1994/97) wird aus dem Anstieg der Regressionsgeraden der Überschreitungshäufigkeiten der betrachteten Jahre bestimmt. Bei guter Klassenbesetzung liefert das Verfahren stabile Aussagen. Es ist jedoch leicht einsichtig, dass einerseits die

Kürze der Zeitintervalle und andererseits kleine Überschreitungshäufigkeiten zu statistischen Instabilitäten führen. Bei hohen Schwellenwerten ist aufgrund der sehr geringen Überschreitungshäufigkeit dieser Schwellenwerte (<0.1%) eine Interpretation mit äußerster Vorsicht vorzunehmen. (Zu Beginn einer Periode 2 Überschreitungen pro Jahr, und am Ende 6 Überschreitungen pro Jahr ergibt eine prozentuale Zunahme der Überschreitungshäufigkeit von 100%). Die Berechnung der Änderung der prozentualen Häufigkeit gegenüber der mittleren Überschreitungshäufigkeit wurde gewählt, da ein Bezug zur Überschreitungshäufigkeit am Beginn des Zeitintervalls unter Umständen nicht definiert ist. Die aus der linearen Regression bestimmte Überschreitungshäufigkeit kann im ungünstigen Fall  $\leq 0$  sein.

Die Abb.14a zeigt das fünfjährig gleitende Mittel der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima zwischen  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  und  $220\mu\text{g}/\text{m}^3$  der Sommerhalbjahre 1982 bis 1994. Dargestellt wird das Mittel über alle für das betreffende Jahr zur Verfügung stehenden Stationen. Generell ist die leicht linksschiefe Verteilung zu erkennen. Ozonwerte unter  $30\mu\text{g}/\text{m}^3$  kommen als Tagesmaxima nicht vor und Tagesmaxima der Ozonkonzentration  $>180\mu\text{g}/\text{m}^3$  kommen als Mittel über alle Stationen nur mit einer Häufigkeit von unter 1% vor, sind also im statistischen Sinne als seltene Ereignisse zu bewerten. Gut lässt sich auch die Zunahme der Überschreitungshäufigkeiten in den mittleren und höheren Schwellenwertklassen der Ozonkonzentrationen erkennen, während gleichzeitig eine Abnahme der Überschreitungshäufigkeit in den unteren Schwellenwertklassen zwischen 1985 und 1994 zu verzeichnen ist (Letzteres ist nicht direkt aus Abb.14a abzulesen).

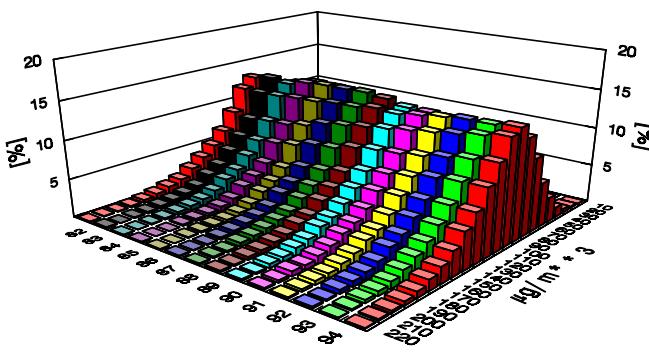


Abb. 14a: Fünfjährig gleitendes Mittel der Häufigkeitsverteilungen validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

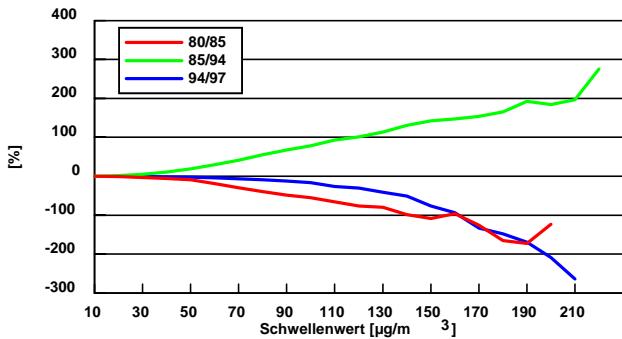


Abb. 14b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima der Ozonkonzentration zwischen Beginn und Ende der untersuchten drei Zeiträume, im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit im entsprechenden Zeitraum. Validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

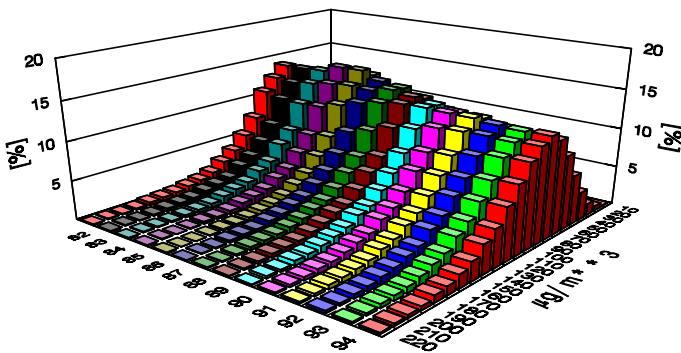


Abb. 15a: Fünfjährig gleitendes Mittel der Häufigkeitsverteilungen von Schwellenwerten, validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "vk" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

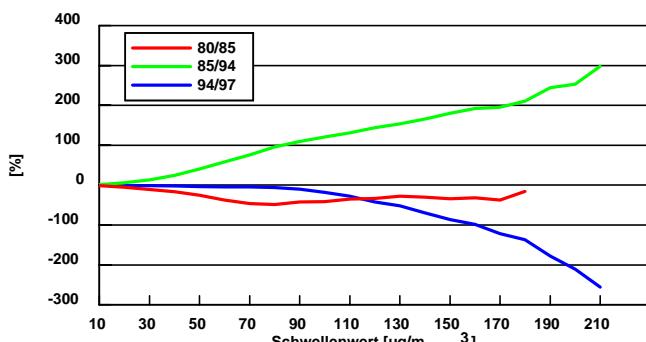


Abb. 15b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima der Ozonkonzentration zwischen Beginn und Ende der untersuchten drei Zeiträume, im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit im entsprechenden Zeitraum. Validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "vk" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Die Zeitintervalle 1980/85 und 1994/97 entziehen sich der Anwendung eines fünfjährig gleitenden Mittels. Untersucht man jedoch die Änderung der Überschreitungshäufigkeiten der von  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  bis  $220\mu\text{g}/\text{m}^3$  in  $10\mu\text{g}/\text{m}^3$  Schritten der Ozontagesmaxima vorgegebenen Schwellenwerte zwischen Anfang und Beginn des Zeitraumes (Abb. 14b), so beobachtet man deutliche Unterschiede zwischen den drei untersuchten Zeiträumen. Während der Zeitraum 1985 bis 1994 durch eine

Zunahme der Überschreitungshäufigkeit gekennzeichnet ist, die um so größer ausfällt, je höher die Schwellenwerte sind, verzeichnen die beiden anderen Zeitintervalle eine Abnahme der Überschreitungshäufigkeiten zwischen Beginn und Ende der betrachteten Perioden. Bei den niedrigen Schwellenwerten fallen die prozentualen Änderungen in allen drei Zeitintervallen eher gering aus. Es gilt bei der Bewertung der Aussagen sich jedoch vor Augen zu führen, dass z.B. eine Zunahme der Überschreitungs-

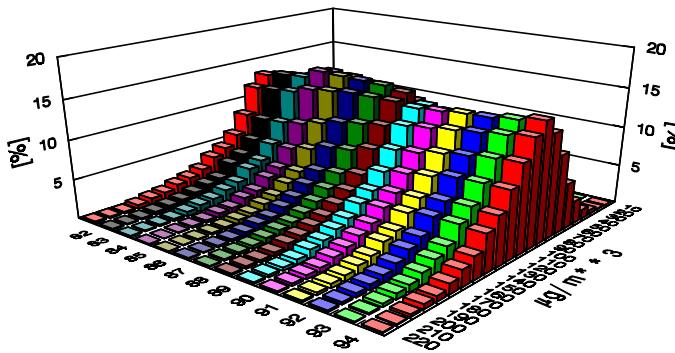


Abb. 16a: Fünfjährig gleitendes Mittel der Häufigkeitsverteilung von Schwellenwerten, validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "st" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

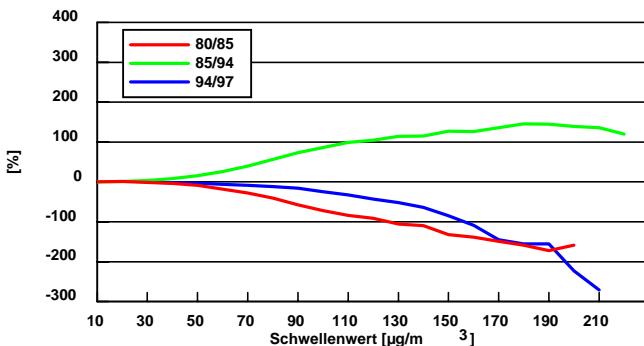


Abb. 16b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima der Ozonkonzentration zwischen Beginn und Ende der untersuchten drei Zeiträume, im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit im entsprechenden Zeitraum. Validierte, wetter bereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "st" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

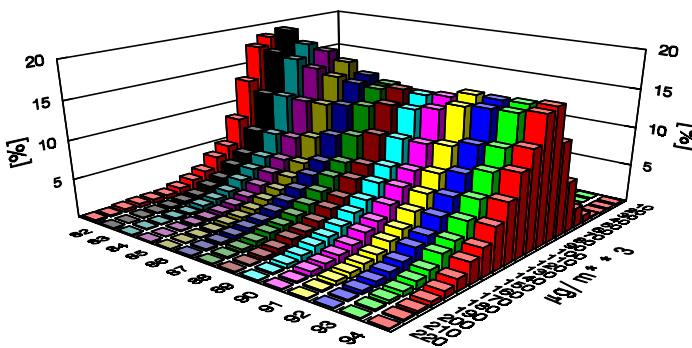


Abb. 17a: Fünfjährig gleitendes Mittel der Häufigkeitsverteilung von Schwellenwerten, validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "la" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

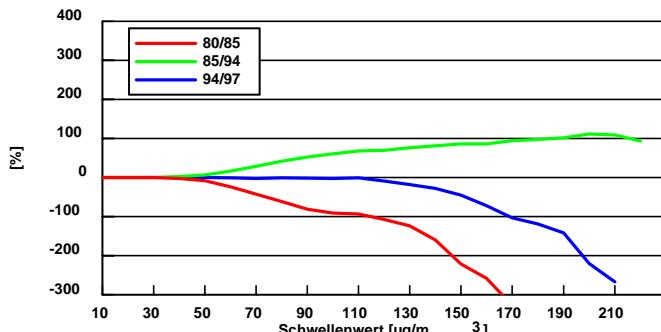


Abb. 17b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima der Ozonkonzentration zwischen Beginn und Ende der untersuchten drei Zeiträume, im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit im entsprechenden Zeitraum. Validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "la" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

häufigkeit von ca. 50% für einen Schwellenwert von  $90\mu\text{g}/\text{m}^3$  eine absolute Zunahme der Überschreitungshäufigkeit von ca. 40 Tagen im betrachteten Intervall bedeutet. Bei einem Schwellenwert von  $180\mu\text{g}/\text{m}^3$  als Mittel über alle Stationen mit einer Überschreitungshäufigkeit von ca. 1 %, bedeutet eine Zunahme um 200% (Abb.14b) einen Anstieg der absoluten Überschreitungshäufigkeit im betrachteten Zeitraum von 4 Tagen.

Differenziert man die für Abb.14a und Abb.14b. beschrie-

benen Untersuchungen nach Stationskategorien ("verkehrsnah" Abb.15, "städtisch" Abb.16, "ländlich" Abb.17 und "Berg" Abb.18) so lassen sich einige markante Unterschiede erkennen. Die Gipfel der Häufigkeitsverteilungen liegen bei den "vk" und "st" Stationen bei  $90\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Sie verschieben sich bei den "la" Stationen zur Klasse  $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ , bei den "bg" Stationen zur Klasse  $120\mu\text{g}/\text{m}^3$  hin. Gleichzeitig erfolgt eine Differenzierung der Häufigkeitsverteilung, d.h. es erfolgt eine Abnahme der Streuung der täglichen Ozonmaxima vom Stationstyp "vk" hin zum

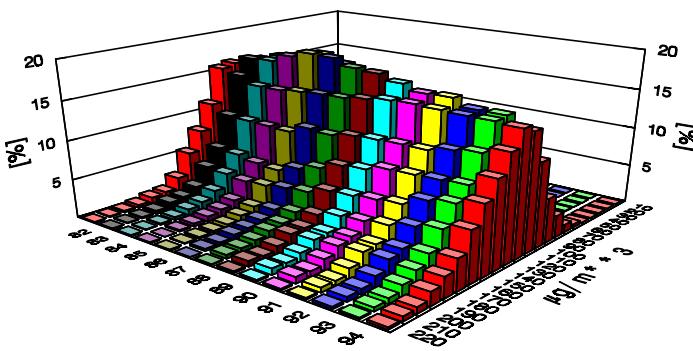


Abb. 18a: Fünfjährig gleitendes Mittel der Häufigkeitsverteilung von Schwellenwerten, validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "bg" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

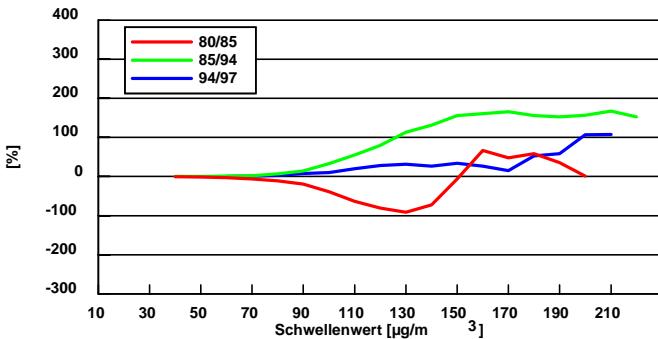


Abb. 18b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima der Ozonkonzentration zwischen Beginn und Ende der untersuchten drei Zeiträume, im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit im entsprechenden Zeitraum. Validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche Ozonmaxima, "bg" Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

Stationstyp "bg". Ein Vergleich der Änderung der Überschreitungshäufigkeit zwischen den Stationskategorien (Abb.15b bis Abb.18b) zeigt bezüglich der ersten Periode (1980/85) für den "vk" Typ (rote Kurve Abb.15b) nur eine geringfügige Abnahme der Überschreitungshäufigkeiten. Hingegen zeigt der Stationstyp "st" und besonders der Stationstyp "la" eine ausgeprägte Abnahme sowohl bezüglich der mittleren Schwellenwerte als auch bei den hohen Schwellenwerten. Bei den Bergstationen (Abb.18b) ist aufgrund der geringen Anzahl der

zur Verfügung stehenden Stationen die Stabilität der Aussage deutlich eingeschränkt, so dass auf eine Interpretation der Ergebnisse für höhere Schwellenwerte ( $>140\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) verzichtet werden muss. Betrachtet man das mittlere Zeitintervall (1985 bis 1994), so ist über alle Stationstypen und alle Schwellenwerte ein deutlicher Anstieg der Überschreitungshäufigkeiten zu verzeichnen. Am stärksten ist dieser Anstieg bei den verkehrsnahen Stationen ausgeprägt. Das dritte Zeitintervall (1994 bis 1997) ähnelt der ersten Periode und ist gekennzeichnet durch einen erneuten Rückgang der Überschreitungshäufigkeiten, besonders bei hohen Werten der Ozontagesmaxima. Zu vergleichbaren Ergebnissen kommen auch Förderer 1996, Fricke 1996, De Leeuw 1999, 2000 und Beilke 1996. Eine Ausnahme bilden die Bergstationen, die eine weitere Zunahme der Überschreitungshäufigkeiten erkennen lassen. Dies stimmt mit dem stetigen Anstieg der europäischen Hintergrundbelastung, wie sie auch in den Arbeiten von ( Beilke 2000, Simmonds 1996, Roemer 1997 und im Ozonbulletin 2000) gefunden wurden überein. Dieser Anstieg wirkt sich auch bei dem "ländlichen" Stationstyp aus, wo bis zu einem Schwellenwert von  $120\mu\text{g}/\text{m}^3$  praktisch keine Veränderung zu beobachten ist, während ohne diese Überlagerung der Ozonhintergrundbelastung auch in diesem Bereich bereits ein Rückgang zu beobachten wäre.

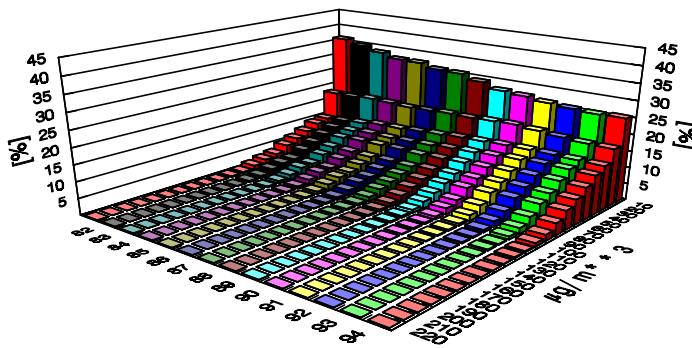


Abb. 19a: Fünfjährig gleitendes Mittel der Häufigkeitsverteilung von Schwellenwerten, validierte, wetterbereinigte und renormierte 06°° GMT Werte, alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

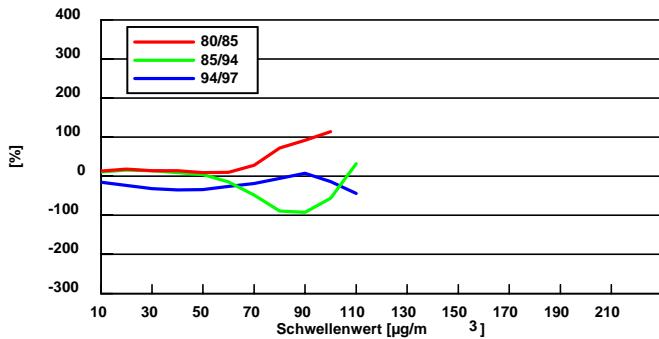


Abb. 19b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima der Ozonkonzentration zwischen Beginn und Ende der untersuchten drei Zeiträume, im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit im entsprechenden Zeitraum. Validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche 06°° GMT Werte, alle Stationen, Sommerhalbjahre 1980 bis 1997

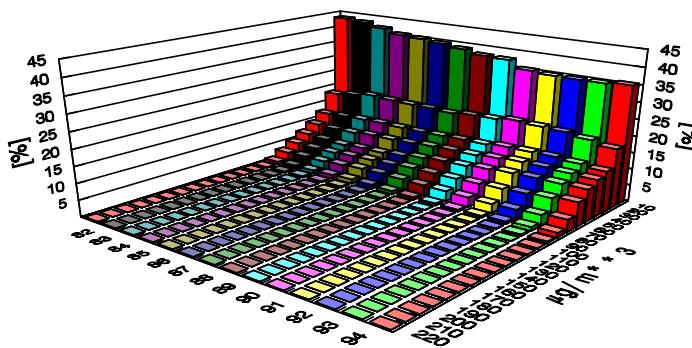


Abb. 20a: Fünfjährig gleitendes Mittel der Häufigkeitsverteilung von Schwellenwerten, validierte, wetterbereinigte und renormierte 06°° GMT Werte, alle Stationen, Winterhalbjahre 1980 bis 1997

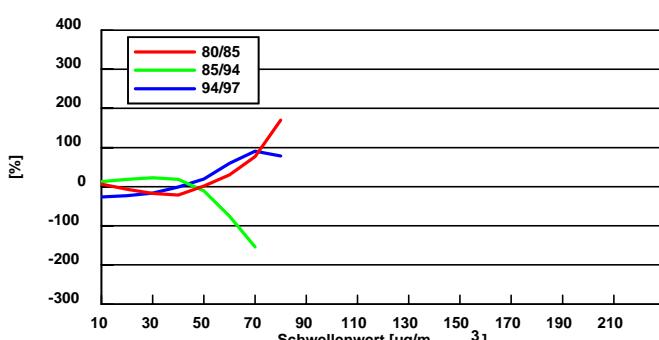


Abb. 20b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeiten vorgegebener Schwellenwerte der Tagesmaxima der Ozonkonzentration zwischen Beginn und Ende der untersuchten drei Zeiträume, im Vergleich zur mittleren Überschreitungshäufigkeit im entsprechenden Zeitraum. Validierte, wetterbereinigte und renormierte tägliche 06°° GMT Werte, alle Stationen, Winterhalbjahre 1980 bis 1997

Bei den übrigen Stationskategorien wird der Effekt des Anstieges der europäischen Hintergrundbelastung durch lokale Effekte überkompensiert. Auf diesen Effekt wird an späterer Stelle noch einmal näher eingegangen (Kapitel 3.3).

Bemerkenswert ist der Vergleich der Abb.19 und Abb.20 mit der Abb.14. Deutlich wird die Unterschiedlichkeit der Häufigkeitsverteilung zwischen den Ozontagesmaxima und den 6°° GMT Ozonwerten des Sommer- und Winterhalbjahres, aber auch die Ähnlichkeit der Häufigkeitsverteilungen zwischen 6°° GMT des Sommerhalbjahres (Abb.19a) und 6°° GMT des Winterhalbjahres (Abb.20a) sichtbar. Eine Änderung der Überschreitungshäufigkeiten für die drei betrachteten Zeitintervalle für 6°° GMT (Sommerhalbjahr) ist nicht zu erkennen. Interessant ist die Gegenläufigkeit der Kurven zwischen den Tagesmaxima im Sommer (Abb.14b) und den 6°° GMT Werten im Winterhalbjahr (Abb.20b). Auch hieraus ist die zunehmende europäische Hintergrundbelastung ablesbar. (Im weitesten Sinne kann man davon ausgehen, dass winterliche Ozonwerte die „europäische Hintergrundbelastung“ repräsentieren).

### **3.2.4 Geographische Verteilung der Überschreitungshäufigkeiten unterschiedlicher Aggregierung der Ozonkonzentration und die prozentuale Änderung dieser Überschreitungshäufigkeiten für die Zeitintervalle 1980/85, 1985/94 und 1994/97**

#### **3.2.4.1 Untersuchung der geographischen Verteilung der Überschreitungshäufigkeit von Tagesmaxima der Bodenozonkonzentration $>80\mu\text{g}/\text{m}^3$**

In Abb.21a ist die geographische Verteilung der mittleren Überschreitungshäufigkeit für Tagesmaxima  $>80\mu\text{g}/\text{m}^3$  für die bisher betrachteten drei Zeitintervalle aufgetragen. Die dazugehörige Stationsverteilung ist aus Abb.21c ersichtlich. Der Vergleich der Stationsdichte für die drei Zeitintervalle offenbart die äußerst geringe Stationsdichte im Zeitraum 1980 bis 1985. Dementsprechend erscheint die mittlere Überschreitungshäufigkeit (Abb.21a) wenig detailliert. Angesichts der geringen Stationsdichte und der trotz Datenvalierung geringeren Güte der Ozonmessungen in diesem Zeitraum ist die Interpretation der räumlichen Struktur kaum möglich. Nur im Süden und Südwesten Deutschlands ist die Stationsdichte für dieses Zeitintervall etwas größer.

Der Zeitraum 1985 bis 1994 wird schon durch 126 Stationen dokumentiert, wobei der Osten Deutschlands immer noch signifikant unterrepräsentiert ist. Insgesamt lassen sich jedoch schon deutliche regionale Unterschiede erkennen. Die höheren Überschreitungshäufigkeiten sind überwiegend in den Mittelgebirgsregionen: Bayrischer Wald, Erzgebirge, Thüringer Wald, Rhön, Spessart, Odenwald, Schwarzwald, Rothaargebirge, Westerwald und am Alpenrand anzutreffen. Insgesamt ist die schon aus den vorangegangenen Untersuchungen gefundene Zunahme der mittleren Überschreitungshäufigkeit der Tagesmaxima  $>80\mu\text{g}/\text{m}^3$  in Abb.21a deutlich zu erkennen.

Die räumliche Verteilung der prozentualen Änderung der Überschreitungshäufigkeit von Tagesmaxima der Ozonkonzentration  $>80\mu\text{g}/\text{m}^3$  zwischen Anfang und Ende der entsprechenden Periode gegenüber der mittleren Überschreitungshäufigkeit des jeweils untersuchten Zeitintervalls (1980 bis 1985, 1985 bis 1994, 1994 bis 1997), Abb.21b zeigt bis auf den mit äußerster Vorsicht zu interpretierenden Zeitraum 1980 bis 1985 keine nennenswerten räumlichen Strukturen, wohl aber deutliche Unterschiede zwischen den einzelnen Perioden. Dies steht in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus Abb.14. Während die linearen Ozontrends der Überschreitungshäufigkeit im Zeitraum 1985 bis 1994 fast durchweg signifikant sind (Abb.21c, mittlerer Kasten), sind die gefundenen linearen Ozontrends im Zeitraum 1994/97 auf Grund des kürzeren Zeitraumes und des geringeren Anstieges der Trendgeraden größtenteils nicht signifikant (Abb.21c, unterer Kasten).

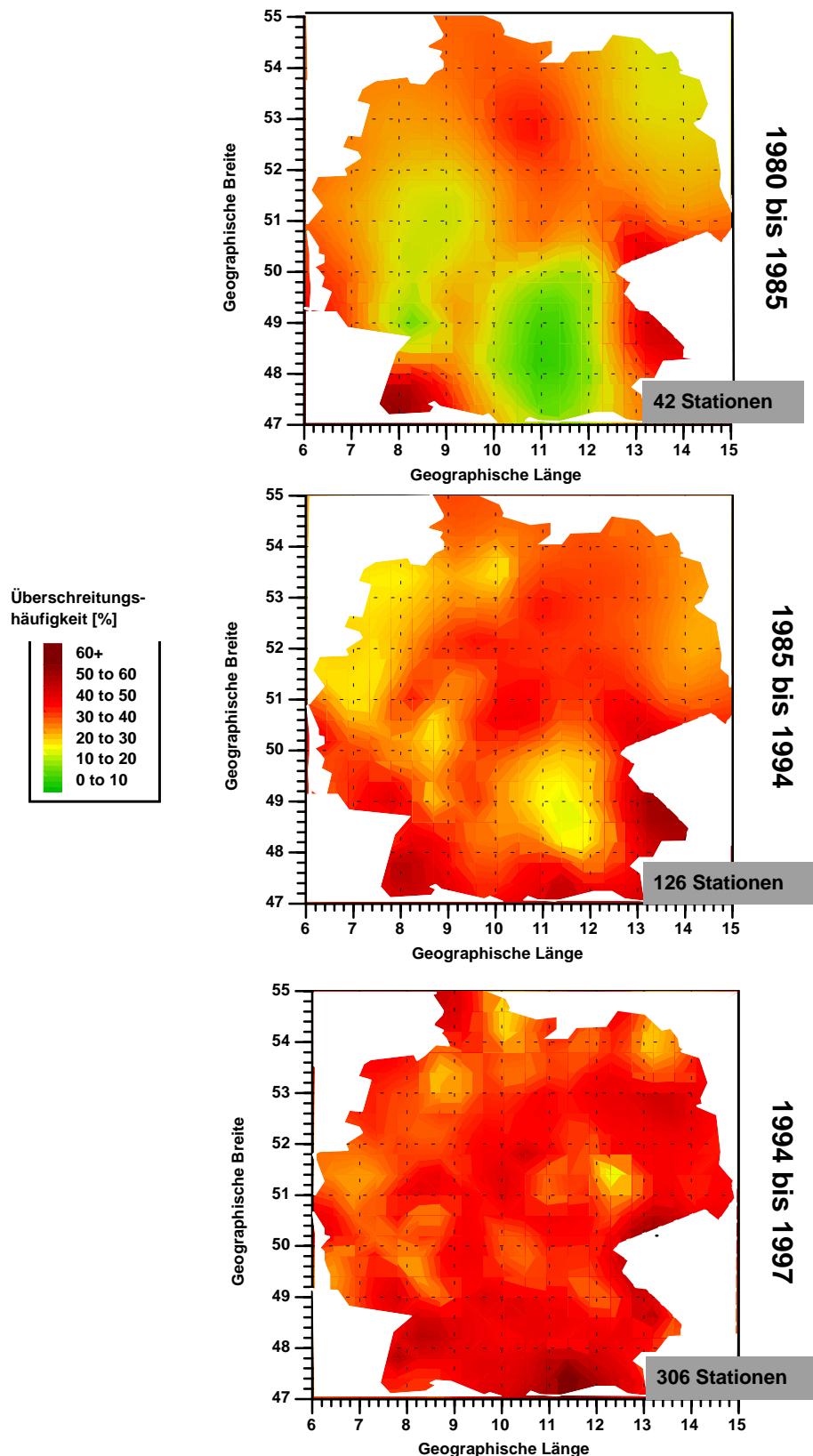
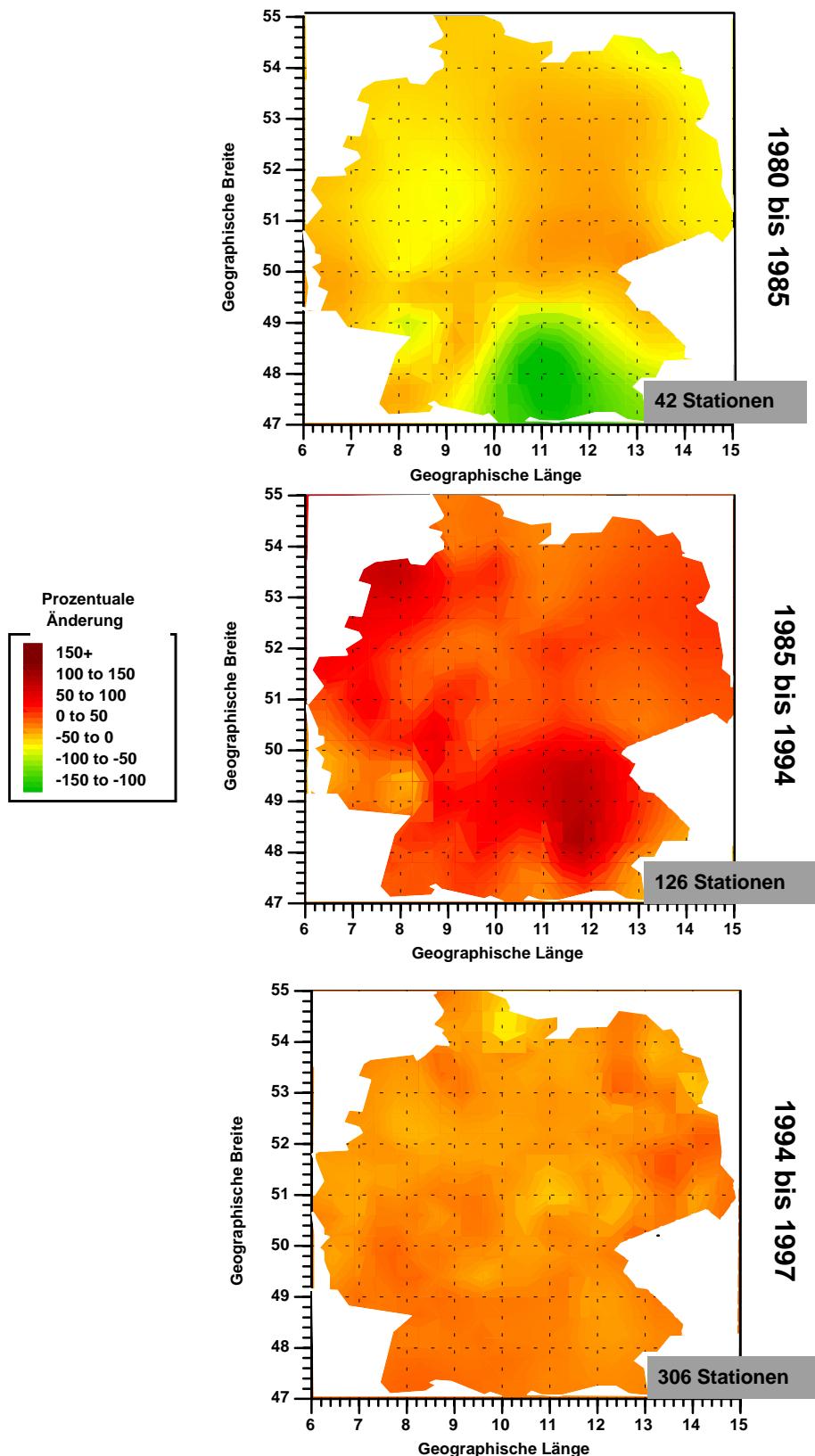
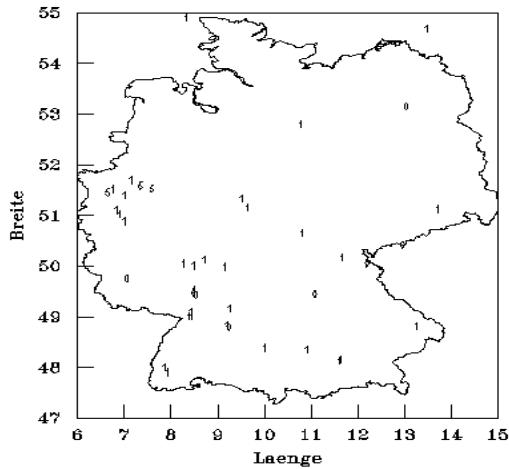


Abb. 21a: Mittlere Überschreitungshäufigkeit der Ozontagesmaxima  $> 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$

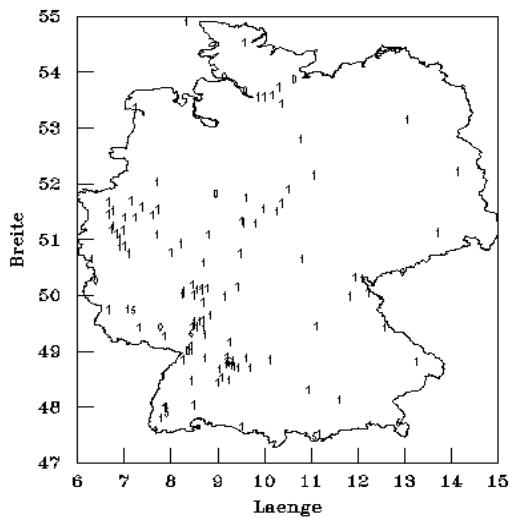


**Abb. 21b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeit gegenüber der mittleren Überschreitungshäufigkeit des entsprechenden Zeitintervalls - Ozontagesmaxima  $> 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$**

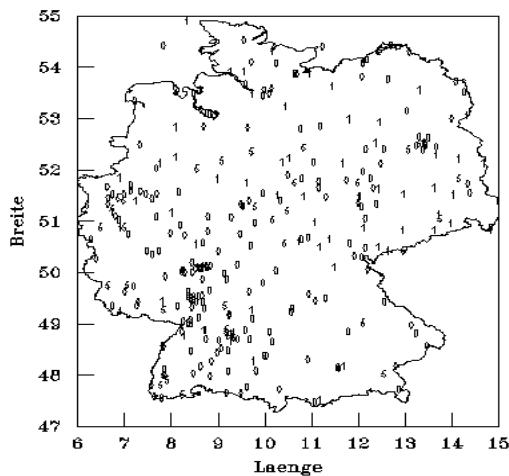
1980 bis 1985 42 Stationen



1985 bis 1994 126 Stationen



1994 bis 1997 306 Stationen



**Abb. 21c: Stationsverteilung und Signifikanz des einfachen Trendkorrelationskoeffizienten für Schwellenwerte der Ozontagesmaxima  $> 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$**

### 3.2.4.2 Untersuchung der geographischen Verteilung der Überschreitungshäufigkeit von Tagesmaxima der Bodenozonkonzentration >180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Betrachtet man die geographische Verteilung der Überschreitungshäufigkeit der Ozontagesmaxima >180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Abb.22a) unter Beachtung der Stationsverteilung (Abb.22c), so lässt sich über den Zeitraum 1980/85 mit 13 Messstellen, die überdies noch fast ausschließlich auf den äußersten Südwesten Deutschlands konzentriert sind, keine Aussage treffen. Die Reduktion von 24 Stationen bei 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  auf 13 Stationen bei 180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  resultiert daraus, dass es bei den nicht berücksichtigten Stationen keine Überschreitungen von 180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  im untersuchten Zeitraum gab. Auch im Zeitraum 1985/94 kam es aus diesen Gründen zu einer Vermindehung der Stationsanzahl von 126 auf 111. Deutlich ist die Zunahme der Überschreitungshäufigkeit der Ozontagesmaxima von >180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  zwischen den Zeiträumen 1985/94 und 1994/97 zu erkennen, wobei wieder die Mittelgebirge mit den größten Überschreitungshäufigkeiten hervortreten. Obwohl die mittleren Überschreitungshäufigkeiten der Ozontagesmaxima >180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  im Zeitraum 1994/97 deutlich höher liegen als 1985/94 (Abb.21a mittlerer und unterer Kasten) zeigt die prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeit gegenüber der mittleren Überschreitungshäufigkeit der Ozontagesmaxima >180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (Abb.22b mittlerer und unterer Kasten) eine gegenläufige Tendenz. Dies scheint auf den ersten Blick ein Widerspruch zu sein, bedeutet aber nur, dass ab dem Erreichen des höchsten Niveaus um 1994 ein allmählicher Abwärtstrend zu beobachten ist, dessen regionale Ausprägung relativ gering ist. Dies unterstützt auch Abb.22c wo der überwiegende Anteil der Stationen keinen signifikanten linearen Ozontrend aufweist.

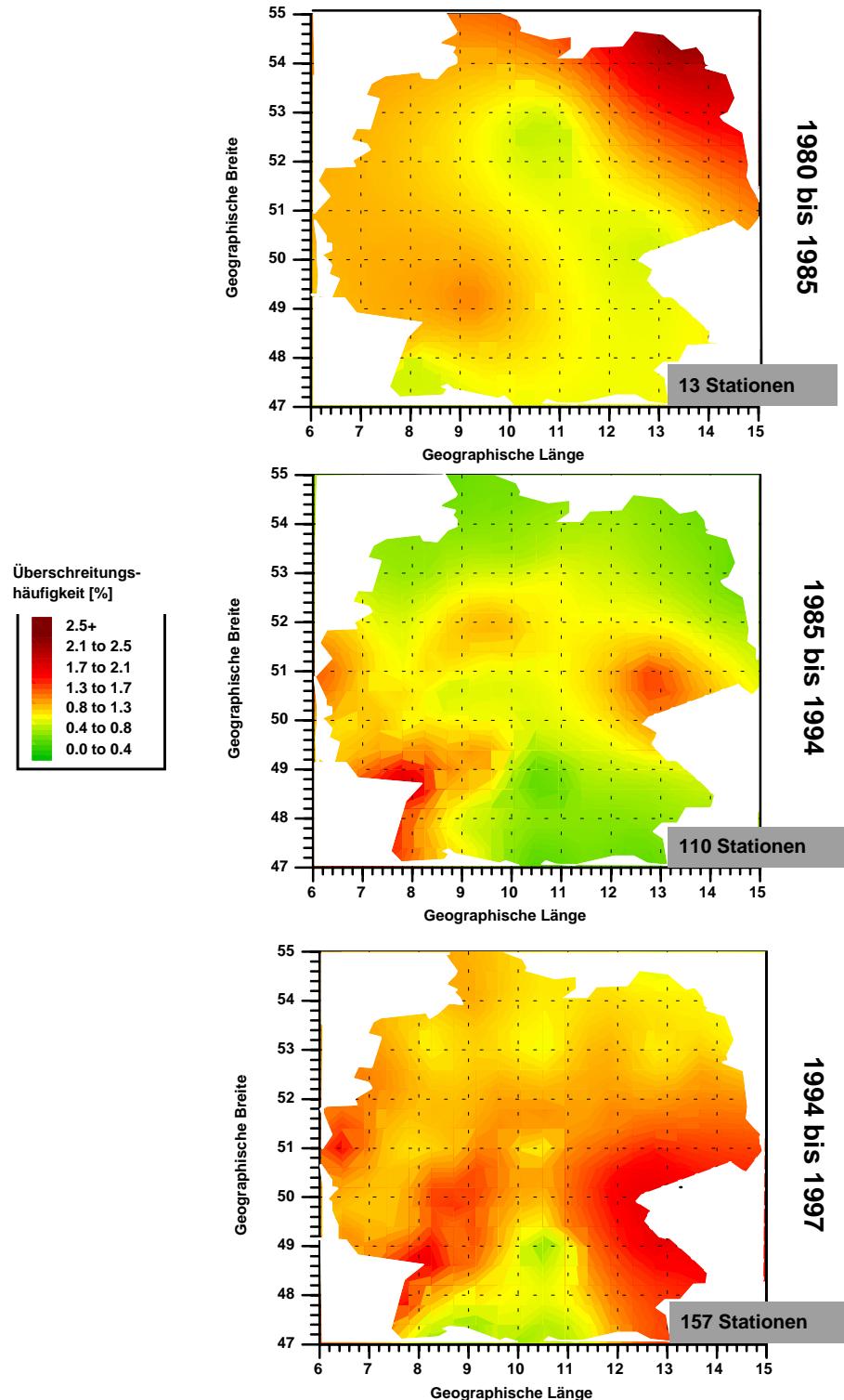
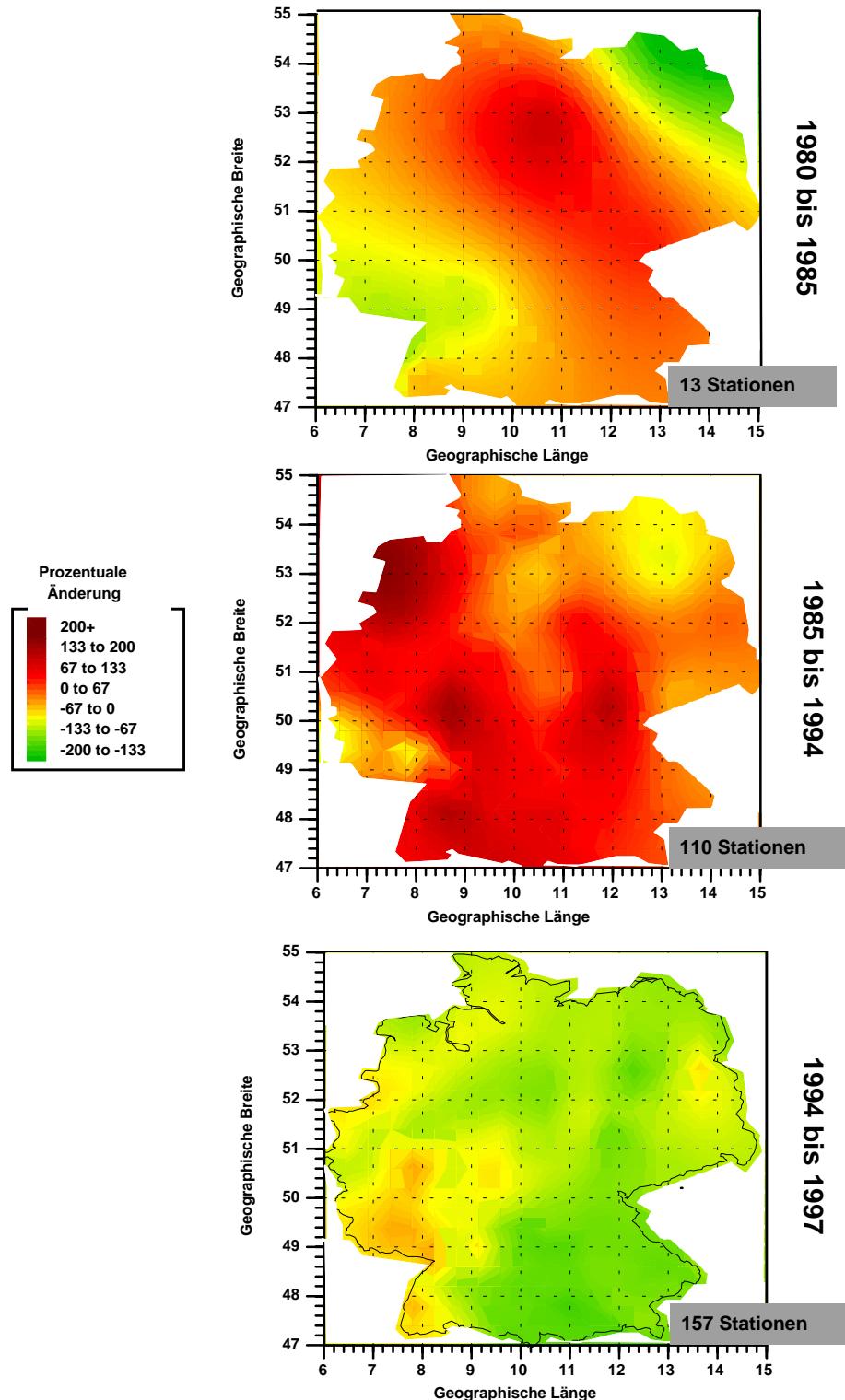
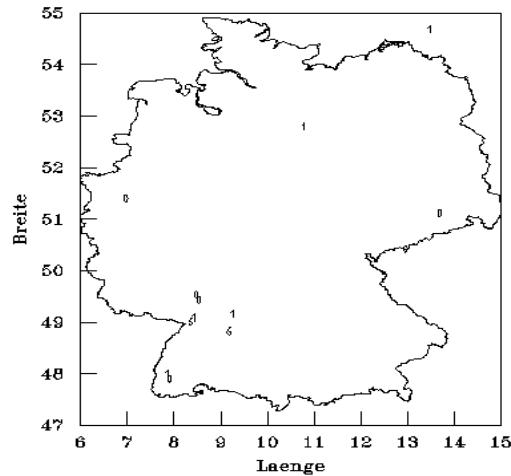


Abb. 22a: Mittlere Überschreitungshäufigkeit  
der Ozontagesmaxima  $> 180 \mu\text{g}/\text{m}^3$

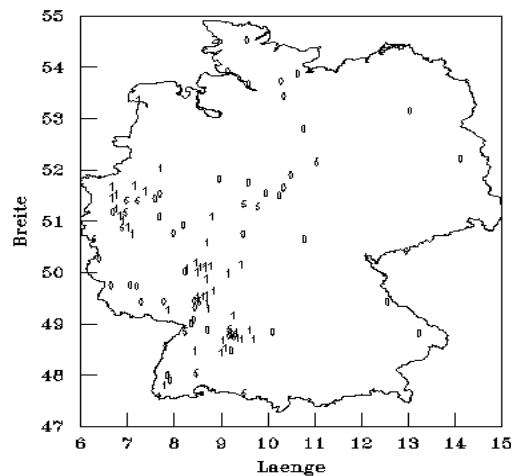


**Abb. 22b: Prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeit gegenüber der mittleren Überschreitungshäufigkeit des entsprechenden Zeitintervalls - Ozontagesmaxima  $> 180 \mu\text{g}/\text{m}^3$**

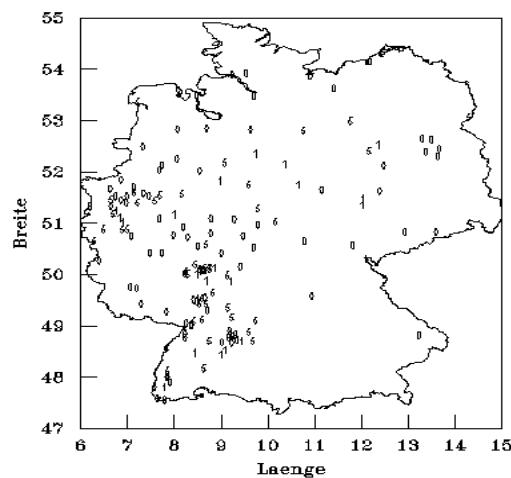
1980 bis 1985 13 Stationen



1985 bis 1994 110 Stationen



1994 bis 1997 157 Stationen



**Abb. 22c: Stationsverteilung und Signifikanz des einfachen Trendkorrelationskoeffizienten für Schwellenwerte der Ozontagesmaxima  $> 180 \mu\text{g}/\text{m}^3$**

### 3.2.5 Trends der AOT40 Ozonwerte als Deutschlandmittel und als geographische Verteilung für 4 Zeitintervalle

Von allgemeinem pflanzenphysiologischen Interesse sind sowohl die AOT40 Ozonwerte. AOT40 bedeutet die Summe der Differenz zwischen stündlichen Konzentrationen  $>80\mu\text{g}/\text{m}^3$  und  $80\mu\text{g}/\text{m}^3$  während einer gegebenen Zeitspanne – hier April bis September – unter ausschließlicher Verwendung der stündlichen Ozonwerte zwischen  $8^{\circ}\text{ MEZ}$  morgens und  $20^{\circ}\text{ MEZ}$  abends für jeden Tag. Zusätzlich wurden die Sommer- und Wintermittelwerte der

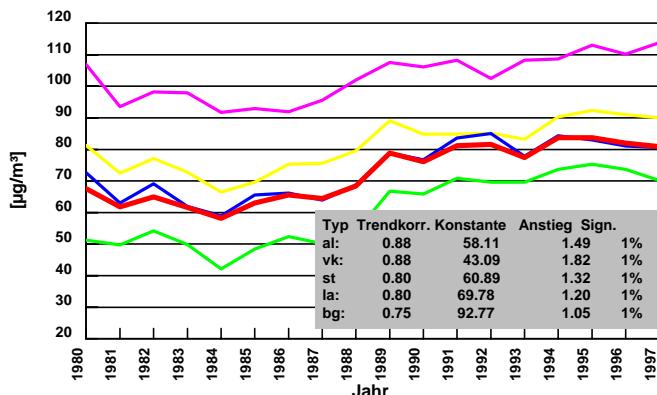


Abb. 23a: Sommermittelwerte der Tagesmaxima der 8-stündig gleitenden Ozonmessungen, als Mittel über alle im entsprechenden Jahr zur Verfügung stehenden Stationen, getrennt nach Stationstypen und über alle Stationen

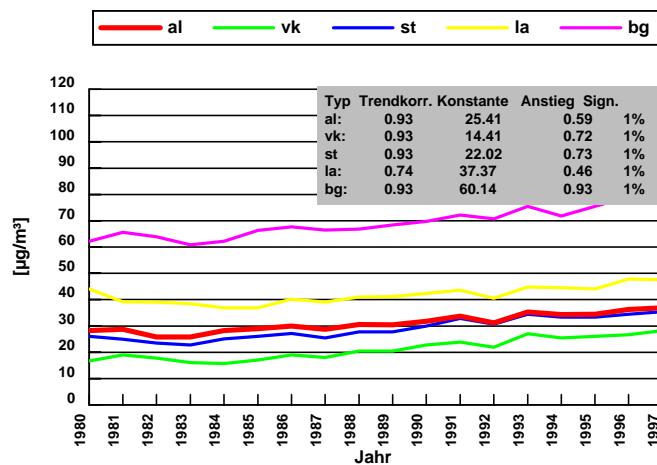


Abb. 23b: Wintermittelwerte der Tagesmaxima der 8-stündig gleitenden Ozonmessungen, als Mittel über alle im entsprechenden Jahr zur Verfügung stehenden Stationen, getrennt nach Stationstypen und über alle Stationen

Ozontagesmaxima aus den 8stündig gleitenden Mittelwerten der stündlichen Bodenozonkonzentration berechnet. Sie stellen quasi den akkumulierten Anteil potentiell schädlicher Ozonkonzentrationen über den gesamten Sommer bzw. Winter dar.

Die Abb.23a zeigt den zeitlichen Verlauf der Halbjahresmittelwerte der 8stündigen Ozontagesmaxima für den Sommer und Abb.23b für den Winter. Gut sichtbar ist in beiden Abbildungen das unterschiedliche mittlere Niveau der Stationskategorien, die schon mehrfach erwähnte Welle für das Sommerhalbjahr (Abb.23a) und der stetige Anstieg der Bodenozonkonzentration zwischen 1980 und 1997 im Winterhalbjahr. Den beiden Abbildungen sind je eine Tabelle

hinzugefügt, aus denen der lineare Trend, der Trendkorrelationskoeffizient und die Irrtumswahrscheinlichkeit für die Stationskategorien ersichtlich ist. Der stärkere Anstieg ist im Sommer mit ca.  $1,5\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Jahr}$  zu verzeichnen. Er fällt am höchsten bei den "vk" Stationen mit  $1,8\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Jahr}$  und am niedrigsten bei den Bergstationen mit  $1,1\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Jahr}$  aus. Im Winterhalbjahr kehren sich die Verhältnisse um. Der größte Anstieg ist bei den Bergstationen zu beobachten mit  $0.9\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Jahr}$  und der geringste Anstieg bei den ländlichen Stationen mit  $0.5\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{Jahr}$ .

Der zeitliche Verlauf der AOT40 Ozonwerte (Abb.24) zeigt einen sehr ähnlichen Verlauf wie die Sommermittelwerte der Ozontagesmaxima (Abb.23a), wenn man die unterschiedliche Skalierung unberücksichtigt lässt.

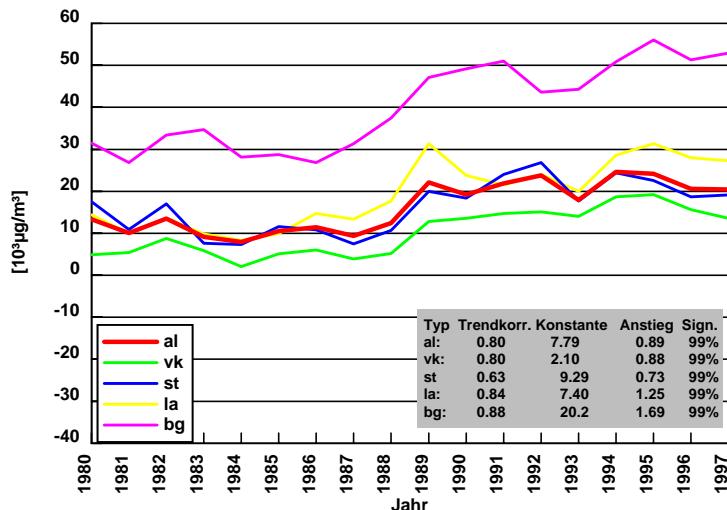


Abb. 24: AOT40 Werte als Mittel über alle im entsprechenden Jahr zur Verfügung stehenden Stationen, getrennt nach Stationstypen und über alle Stationen

Hieraus lassen sich folgende Aussagen gewinnen:

- Auch bei den AOT40-Ozonwerten findet sich als Mittel über alle Stationen die schon mehrfach erwähnte Welle wieder.
- Die Bergstationen haben die höchsten- und die verkehrsnahen Stationen die niedrigsten Ozonwerte.
- Berechnet man den linearen Ozontrend, so ist für alle Stationskategorien ein signifikant zunehmender Ozontrend festzustellen (Abb.23 und Abb.24).
- Der Aufwärtstrend ist am stärksten bei den Bergstationen zu beobachten

Die Abb.25 zeigt die geographische Verteilung der AOT40 -Ozonwerte für 4 Zeitintervalle.

- Aus Gründen der geringen Stationsdichte ist die räumliche Interpretation des Zeitraumes 1982/85 kaum möglich (vgl. Abb.21c).
- Die Küstenregionen weisen in allen 4 Zeitintervallen die niedrigsten Werte auf, aber auch hier ist ein langsamer Anstieg der AOT40 Ozonwerte über die 4 Perioden zu verzeichnen.
- Die Bergregionen zeichnen sich mit besonders hohen AOT40-Ozonwerten aus. In diesen Regionen ist auch der stärkste Anstieg der AOT40 Ozonwerte zu beobachten

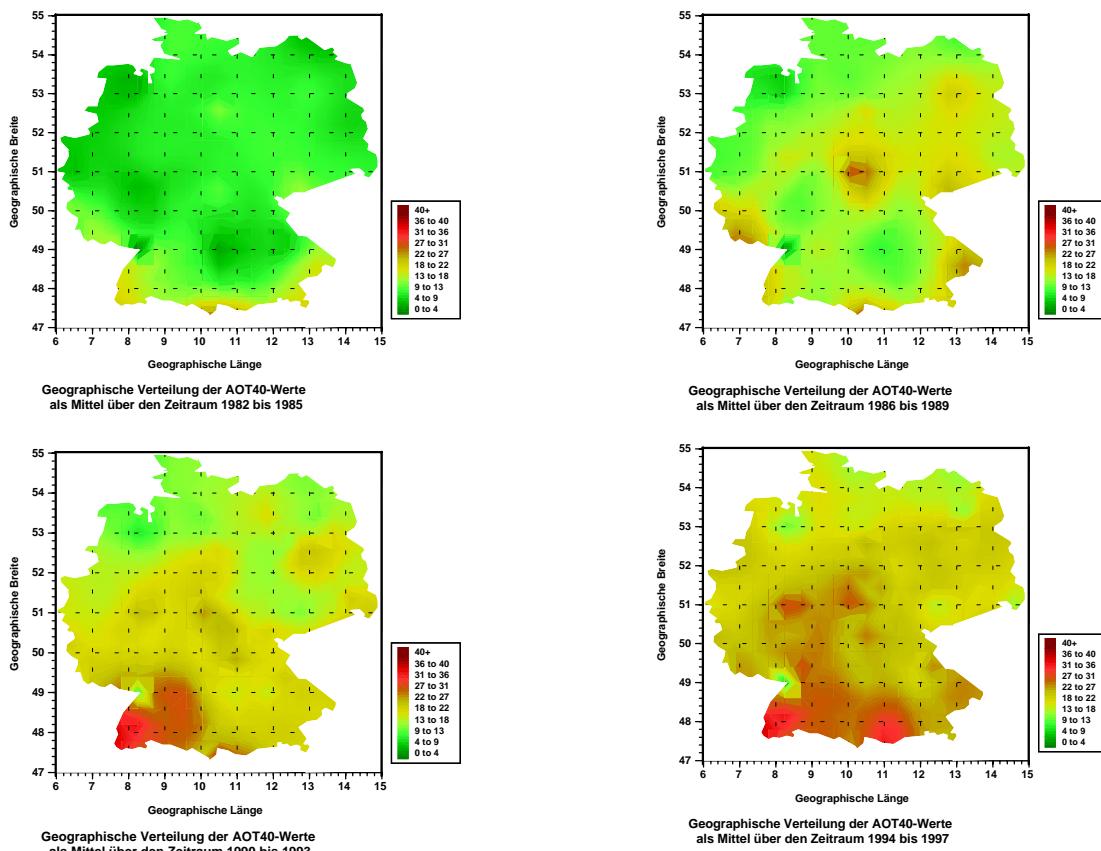


Abb. 25

### 3.3 Kopplung von Jahresmittelwerten der Bodenozonkonzentration mit Jahresmittelwerten der NO<sub>2</sub> bzw. VOC Emissionen

Von großem politischen als auch von gesellschaftlichem Interesse ist die Fragestellung in wie weit emissionsmindernde Maßnahmen, wie sie von der Bundesregierung beschlossen und seit Ende der achtziger Jahre wirksam werden, zu einer Verminderung der Ozonbelastung beitragen.

In diesem Abschnitt wird zu dieser Fragestellung eine Interpretation der aufgefundenen Ozontrends vorgestellt.

Zur Vorbereitung einer Kopplung von Emissionswerten mit Ozonmessungen, werden Jahresmittelwerte der Ozonkonzentration über alle Tage, Stunden und Stationen berechnet. Dies ist notwendig, da emissionsseitig nur ein Jahresmittelwert als Mittel für ganz Deutschland vorliegt.

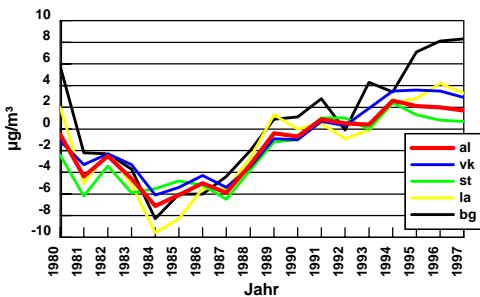


Abb. 26a: Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration als Abweichung vom stationsspezifischen Stichprobenklima und als Mittel über alle im betreffenden Jahr vorhandenen Stationen

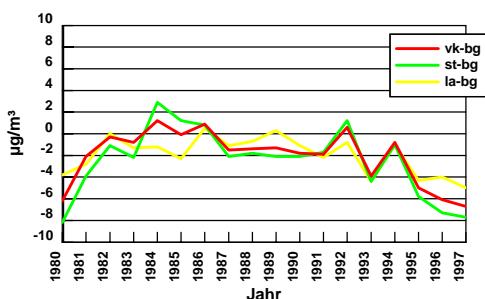


Abb. 26b: Abweichung der Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration von den Jahresmittelwerten der Bodenozonkonzentration der Bergstationen

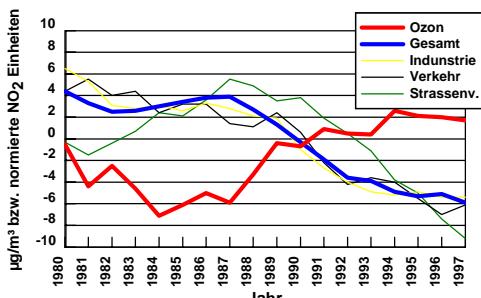


Abb. 27a: Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration im Vergleich zum normierten jährlichen NO<sub>2</sub> Ausstoß

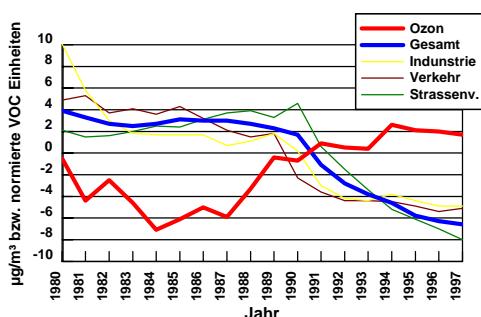


Abb. 27b: Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration im Vergleich zum normierten jährlichen VOC Ausstoß

Abb.26a zeigt die Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration als Abweichung vom langjährigen Mittel (stationsspezifisches Stichprobenklima) der einzelnen Stationen für die bekannten 4 Stationsarten und als Mittel über alle Stationen. Man beobachtet auch hier die bekannte Welle und die Unterschiede zwischen den Stationskategorien. Bemerkenswert ist, dass die Ozonjahresmittelwerte für die Bergstationen ab 1994 weiter ansteigen, während die Ozonjahresmittelwerte der anderen Stationstypen einen Abwärtstrend einleiten.

Um die sektoralen Emissionen, die betragsmäßig sehr verschiedene Größenordnungen haben, mit den jährlichen Mittelwerten der Ozonkonzentration vergleichbar zu machen, werden sowohl die sektoralen VOCs als auch die NO<sub>2</sub> Emissionen normiert (Subtraktion des entsprechenden Mittelwertes und Division durch die Streuung der Zeitreihe). Koppelt man die so normierten NO<sub>2</sub> Emissionen mit den Jahresmittelwerten der Ozonkonzentration (Abb.27a), so erhält man einen hohen negativen Korrelationskoeffizienten, der je nach Emissionssektor (Industrie, Gesamtverkehr oder Straßenverkehr) zwischen 0.5 und 0.8 liegt. Dies bedeutet auf den ersten Blick: Je höher die Emission von NO<sub>2</sub>, desto niedriger die Ozonkonzentration. Einen vergleichbaren Zusammenhang findet man auch bei den VOCs (Abb.27b). Dies ist zunächst sehr verblüffend und widerspricht scheinbar jeglichen theoretischen Überlegungen.

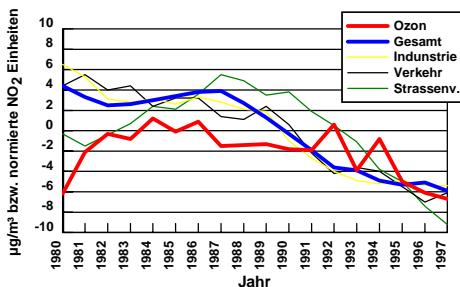


Abb. 28a: Abweichungen der Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration von den Jahresmittelwerten der Bergstationen (mittlere regionale Komponente der Ozonkonzentration) im Vergleich zum normierten jährlichen NO<sub>2</sub> Ausstoß

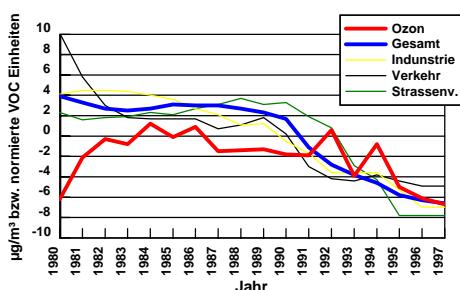


Abb. 28b: Abweichungen Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration von den Jahresmittelwerten der Bergstationen (mittlere regionale Komponente der Ozonkonzentration) im Vergleich zum normierten jährlichen VOC Ausstoß

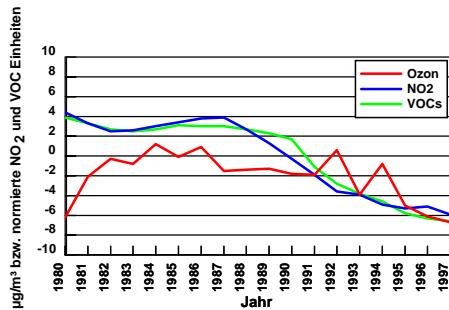


Abb. 29: Abweichungen der Jahresmittelwerte der Bodenozonkonzentration von den Jahresmittelwerten der Bergstationen (mittlere regionale Komponente der Ozonkonzentration) im Vergleich zum normierten jährlichen NO<sub>2</sub> und VOC Ausstoß

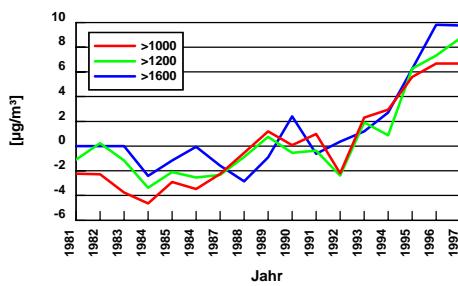


Abb. 30: Jahresmittelwerte der Ozonkonzentrationen für Bergstationen über >1000, 1200 und 1600m Höhe

Eine Auflösung des Widerspruchs erzielt man, wenn das Jahresmittel der Ozonkonzentration über alle Stationen, das sich aus Anteilen des regionalen (deutschlandweiten) Maßstabes und aus Anteilen des großräumigen (europäischen) Hintergrundes zusammensetzt, vom großräumigen Ozonkonzentrationshintergrund bereinigt. Um dies zu erreichen wird postuliert, dass die Ozonbelastung der Bergstationen (Ozonmessstationen >1000m) die großräumige Ozonhintergrundbelastung darstellt. Ein Hinweis darauf, dass das in erster Näherung zutrifft, ist die im Gegensatz zu den anderen Stationstypen beobachtete weitere Zunahme der Ozonjahresmittelwerte nach 1994 bei den Bergstationen.

Eine stetige Zunahme der europäischen Hintergrundbelastung finden auch Beilke 2000, Simmonds 1996, Roemer 1997 und Ozonbulletin 2000. Der Zusammenhang zwischen Trends der Ozonkonzentration und Trends der Vorläuferstoffen sowie der zunehmende Trend des europäischen Hintergrundes wird bei Borrell u.a. 1997 beschrieben.

Die Differenz zwischen den Ozonjahresmittelwerten aller Stationen zu den Ozonjahresmittelwerten der Bergstationen kann also als mittlere regionale (deutschlandweite) Komponente der Ozonkonzentration verstanden werden. Der Kurvenverlauf dieser Differenzgröße ist in Abb. 26b dargestellt.

Koppelt man nun die Differenz zwischen den Ozonjahresmittelwerten aller Stationen zu den Ozonjahresmittelwerten der Bergstationen mit den Jahresmittelwerten der NO<sub>2</sub> Emission, so erhält man einen synchronen Kurvenverlauf mit den mittleren Emissionen in Deutschland. Die Korrelationskoeffizienten liegen je nach Emissionstyp hier zwischen 0.4 und 0.8. Einen ähnlichen Zusammenhang findet man bei der Kopplung mit den Jahresmittelwerten der VOC Emissionen (siehe Abb.28a und Abb.28b für die sektoralen Emissionen und Abb.29 als Gesamtemission der VOCs und NO<sub>2</sub>). Als Bergstationen wurden alle Stationen oberhalb 1000m über Meeresniveau betrachtet. Die gefundenen Zusammenhänge wären vermutlich noch stärker, wenn man nur höher liegende (>1600m) Stationen verwendet. Diese repräsentieren die europäische Hintergrundbelastung natürlich besser als Stationen, die zumindest teilweise durch die Grundschicht beeinflusst sind. Abb.30 unterstreicht diese Aussage: Die höher gelegenen Bergstationen zeigen den stärksten Anstieg der Jahresmittelwerte der Ozonkonzentration. Da dann aber nur noch 3 Stationen >1600m in die Untersuchung einfließen würden, wurden aus Gründen der statistischen Stabilität auch Stationen bis 1000m über Meeresniveau einbezogen.

**Die Schlussfolgerung aus diesen Zusammenhängen ist:**

Eliminiert man aus den mittleren jährlichen Ozonkonzentrationen den ‘europäischen Hintergrund’, so zeigt sich, dass emissionsmindernde Maßnahmen auf regionaler Ebene durchaus einen Sinn haben. Die Tatsache, dass jedoch der großräumige Anstieg der Hintergrundbelastung zum Teil den Rückgang auf lokaler oder regionaler Skala wieder kompensiert, zeigt, dass auch weltweit oder wenigstens im europäischen Maßstab weitere emissionsmindernde Maßnahmen zwingend von Nöten sind.

#### 4 Literaturangaben

- 01 Beilke, S.: 1991 'Meteorologische Voraussetzungen für die Bildung von Ozon und Sommersmog'  
Proceedings Ozon-Symposium München, 2.4 Juli 1991, Herausgeber: TÜV Akademie Bayern/Hessen GmbH München
- 02 Beilke, S.: 1996 'Räumliche Verteilung und zeitliche Entwicklung der Ozonbelastung in Mitteleuropa'  
interner Arbeitsbericht des Umweltbundesamtes
- 03 Beilke, S.: 2000 'Langzeitentwicklung der Ozonbelastung im globalen, nationalen und regionalen Maßstab'  
Paper presented the VDI\_symposium on tropospheric ozone, 8-10 February 2000, Braunschweig
- 04 Borrell, P., Builtjes, P.J.H. Grennfelt, P. And Hov, O.: 1997 'Fotooxidants, acidification and tools: policy applications of EUROTRAC' results in Borrel, P., Borrell, P.M., Cvitas, T., Kelly, K. And Seiler, W., Transport and chemical transformation of Pollutants in the Troposphere, Vol. 10, Springer Verlag, Berlin.
- 05 De Leeuw, F.: 2000 'Trends in ground level ozone concentrations in the European Union'  
Preprint
- 06 De Leeuw, F. And Camu, A.: 1999 'Exceedances of EC ozone thresholds values in Europe in 1998'  
Available from: <http://europe.eu.int/comm/environment/air/ozonerep/htm>
- 07 Enke, W.: 1986 'Ein Verfahren zur Aufstellung statistischer Prognosealgorithmen als Einheit von Cluster-, Diskriminanz- und Regressionsanalyse'  
Z.f. Meteorol.,36, 2, S. 117-122.
- 08 Enke, W.: 1988 'Ein erwartungstreues lineares Selbstorganisationsmodell'  
Z.f. Meteorol.,35,5,s.308-314
- 09 Enke, W.: 1997 'Untersuchung möglicher wetterlagenspezifischer Trends des Bodenozons' 4. Deutsche Klimatagung vom 1. bis 3. Oktober 1997 in Frankfurt a.M., Anna- len der Meteorologie, 34, 85-86.
- 10 Enke, W.: 1998 'Untersuchungen des Einflusses der Photolyseraten auf die Bildung des bodennahen Ozons'  
Abschlußbericht im Rahmen des Forschungsvorhabens 10402817 des Umwelt- bundesamtes
- 11 Fricke, W.: 1996 'Bodennahes Ozon: Anstieg der Mittelwerte, aber kein Anstieg der Maxima seit 1971'  
Ozonbulletin des Deutschen Wetterdienstes Nr. 34
- 12 Fricke, W. und K. Uhse: 1994 'Anteil von Witterungs und Emissionsminderung am SO<sub>2</sub>-Rückgang in Deutschland'  
Staub - Reinhaltung der Luft, 54, 7/8, 289-296
- 13 Förderer, L., P.Maly, M. Wolf, T. Bitter und J. Thudium: 1996 'Trendanalyse schweizeri- scher Luftschadstoff-Immissionsdaten'  
Umweltmaterialien Nr. 53 Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft, Bern 1996
- 14 Hess, P. and H. Brezowsky: 1969 'Katalog der Großwetterlagen Europas'  
Ber. Dt. Wetterdienst, 133, Offenbach, 1969.

- 15 Kirch, H.-D.: 1997 'Methoden und Prozesse der atmosphärischen Chemie' PROMET, 26, 1/2, 61 - 68.
- 16 Mayer, H. und J. Schmidt: 1997 'Analyse von sogenannten 'Ozon Wetterlagen'' Ann. Meteorol. 33, 81-86
- 17 Mayer, H. und J. Schmidt: 1998 'Problematik der Kennzeichnung von sogenannten 'Ozon Wetterlagen'' Meteorol. Zeitschrift, N.F. 7, 41-48
- 18 Neininger, B., J. Dommen u.A.: 1996 'Luftverschmutzung und Meteorologie in der Schweiz' Umweltmaterialien Nr. 63 - Luft, Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft (BUWAL)
- 19 Ozonbulletin des Deutschen Wetterdienstes, 2000: 'Zum Trend der Hintergrundkonzentration von Ozon' Ausgabe Nr. 75, Erscheinungstermin: 06. Juni 2000
- 20 Roemer, M.G.M.: 1997 'Trend analysis of ground level ozone concentrations in Europe' EMEP/CCC-Note 01/97, NILU, Kjeller, Norway.
- 21 Ruggaber, A.: 1994 'Modellierung photolytischer Prozesse in der Troposphäre' Universität München - Meteorologisches Institut, Wissenschaftliche Mitteilungen Nr. 68.
- 22 Simmonds, P.G., Derwent, R.G., McCulloch, A., O'Doherty, S. And Gaudry, A., 1996: 'Long term trends in concentrations of halocarbons and radiatively active gases in Atlantic and European air masses monitored at Mace Head, Ireland from 1987-1994' Atmospheric Environment, 30, 4041-4063
- 23 Spichtinger, N., M. Winterhalter, P. Fabian: 1996 'Ozone and Großwetterlagen' ESPR - Environment. Sci.& Pollut. Res. 3 (3) 145 - 152
- 24 Winkler, P., Enke, W.: 2001 'Langzeitrends der mittleren Konzentrationen und von Spitzenwerten von Ozon' PROMET, 2001, im Druck

## 5 Danksagung

Für die stets anregenden Diskussionen möchte ich Herrn Dr. Garber, Herrn Lacombe und besonders Herrn Kahra meinen herzlichen Dank aussprechen.