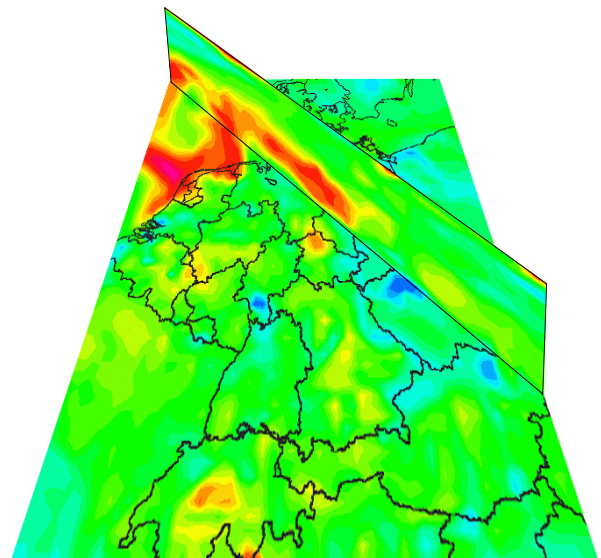


**Berechnung
anthropogener
Emissionen in
Deutschland für
Ozonsimulationen**

**Modellentwicklung
und
Sensitivitätsstudien**



Burkhard Wickert

Berechnung anthropogener Emissionen in Deutschland für Ozonsimulationen

Modellentwicklung und Sensitivitätsstudien

Von der Fakultät Energietechnik der Universität Stuttgart zur Erlangung der Würde eines
Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.) genehmigte Abhandlung

Vorgelegt von
Burkhard Wickert
geboren in Erlangen

Hauptberichter: Prof. Dr.-Ing. R. Friedrich
Mitberichter: Prof. Dr. rer. nat. A. Ebel (Universität zu Köln)

Tag der Einreichung: 29. Juni 2001
Tag der mündlichen Prüfung: 11. September 2001

Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung
Prof. Dr.-Ing. A. Voß
Abteilung Technikfolgenabschätzung und Umwelt (TFU)
Prof. Dr.-Ing. R. Friedrich

Meinen Eltern und meiner Oma gewidmet

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart (IER).

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Rainer Friedrich für die Anregung und Förderung dieser Arbeit sowie für die mit ihm geführten ergiebigen Diskussionen. Herrn Prof. Dr. rer. nat. Adolf Ebel danke ich für die Übernahme des Koreferats und vor allem für die Überlassung des „Tafelsilbers“ seiner Arbeitsgruppe, nämlich des EURAD-Chemie-Transport-Modells für drei Nestgebiete mit kompletten Eingangsdatensätzen, ohne das die Durchführung dieser Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Vier Kollegen haben besonders zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen, am Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung Herr Dr.-Ing. Andreas Obermeier und Herr Dipl.-Phys. Alfred Trukenmüller sowie am Institut für Geophysik und Meteorologie Herr Dr. rer. nat. Michael Memmesheimer und Herr Dr. rer. nat. Joachim Tippke. Ihnen sei herzlich dafür gedankt.

Bedanken möchte ich mich auch für wertvollen wissenschaftlichen Austausch und kollegiale Atmosphäre bei Frau Dipl.-Ing. Petra Blank, Herrn Dipl.-Phys. Bert Droste-Franke, Herrn Dipl.-Ing. Jörg Haigis, Frau Birgit Haßmann, Herrn Dr. rer. nat. Thomas Heck, Herrn Dipl.-Phys. Andre Heidegger, Frau Dipl.-Inf. Katharina Jaspers, Herrn Dr.-Ing. Wolfram Krewitt, Herrn Dr.-Ing. Christian John, Herrn Dipl.-Ing. Jörg Kühlwein, Herrn Dipl.-Ing. Markus Müller, Herrn Dipl.-Ing. Thomas Pregger, Herrn Dipl.-Ing. Stefan Reis, Herrn Ralph Schelle, Herrn Dipl.-Ing. Stefan Schmid und Herrn Dipl.-Chem. Jochen Theloke vom IER sowie Herrn Dipl.-Met. Hendrik Feldmann von der EURAD-Arbeitsgruppe des IGM.

Daneben danke ich Freunden und Verwandten für ihre Unterstützung, vor allem meiner Lebensgefährtin Nicole Sachs und meiner Schwester Hildegard Wickert für die kritische Durchsicht und das Korrekturlesen dieses Manuskripts.

Stuttgart, im September 2001



Burkhard Wickert

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung / Abstract.....	9
1 Einleitung	13
2 Grundlagen und Problemstellung	15
2.1 Prinzipielles Vorgehen zur Berechnung hochaufgelöster Emissionen.....	15
2.2 Bisherige Untersuchungen	19
2.2.1 Emissionsstudien	19
2.2.2 Sensitivitätsrechnungen	20
2.3 Notwendige Arbeiten	21
3 Berechnung der Jahresemissionen	23
3.1 Überblick über die relevanten Quellen.....	23
3.2 Feuerungsemissionen	25
3.2.1 Kleinf Feuerungen der Haushalte und Kleinverbraucher	25
3.2.2 Industrie	29
3.3 Emissionen aus der Lösemittelanwendung	32
3.3.1 Genehmigungsbedürftige Anlagen	32
3.3.2 Nicht genehmigungsbedürftige Anlagen	32
3.4 Prozessbedingte Emissionen	33
3.5 Emissionen des Straßenverkehrs	33
3.5.1 Abgasemissionen	33
3.5.2 Kaltstartemissionen.....	38
3.5.3 Tankatmung (Diurnal Losses)	44
3.5.4 Hot Soak Losses.....	48
3.5.5 Running Losses.....	51
3.5.6 Betankungsverluste	52
3.6 NH ₃ -Emissionen aus der Landwirtschaft	52
3.6.1 Emissionen aus der Viehhaltung.....	53
3.6.2 Emissionen aus dem Einsatz von Kunstdünger	53
3.7 Übrige Emissionsquellen.....	54
4 Räumliche, zeitliche und stoffliche Verteilung	55
4.1 Räumliche Verteilung der Emissionen.....	55
4.1.1 Methoden der räumlichen Verteilung	55
4.1.2 Räumliche Verteilung im Emissionskataster für Deutschland	58
4.2 Erstellung von stündlichen Zeitkurven für 1994	59
4.3 Verteilung der NMVOC-Emissionen auf Stoffgruppen.....	60
5 Ergebnisse der Emissionsberechnung	61
5.1 Jahresemissionen	61
5.2 Räumliche Verteilung.....	64
5.3 Zeitliche Verteilung.....	67
5.4 Stoffliche Auflösung	73
5.5 Zukünftige Entwicklung der Emissionen	74
5.6 Unsicherheitsbetrachtungen	76

6 Sensitivitätsrechnungen mit einem Chemie-Transport-Modell	79
6.1 Methode	79
6.2 Randbedingungen der Sensitivitätsexperimente	79
6.3 Kurzbeschreibung des EURAD-CTM	83
6.4 Meteorologische Situation	83
6.5 Auswertemethode	85
6.6 Die Sensitivitätsfälle	87
6.6.1 Der Referenzfall REF	87
6.6.2 Einfluss anthropogener und biogener Emissionen	101
6.6.3 Variation der biogenen Emissionen	104
6.6.4 Variation des VOC/NO _x -Verhältnisses	105
6.6.5 Variation der räumlichen Verteilung	110
6.6.6 Variation des zeitlichen Verlaufs	112
6.6.7 Variation der stofflichen Auflösung	116
6.7 Gesamtbetrachtung aller Sensitivitätsfälle	118
6.7.1 Untersuchung der Konzentrationsänderungen	119
6.7.2 Vergleich der 0,95-Quantile der Konzentrationsdifferenzen	124
6.7.3 Abhängigkeit der AOT60-Werte von den Emissionen	129
7 Schlussfolgerungen	131
Literaturverzeichnis	135
Anhang: Ergebnisse der Sensitivitätsexperimente	145

Kurzfassung

Anthropogene Emissionen tragen in erheblichem Maß zur Beeinträchtigung der Luftqualität in Deutschland und Europa bei. Von besonderem Interesse sind Emissionen von Ozonvorläufer-substanzen, die gerade in den Sommermonaten bei geeigneten meteorologischen Bedingungen Ursache für hohe Ozonkonzentrationen sind. Wissenschaftliche Forschung kann dazu beitragen, die ursächlichen Prozesse der Ozonbildung zu verstehen und Möglichkeiten zur Verringerung der Ozonproduktion durch Emissionsminderung zu analysieren. Die Unsicherheiten, die sich bei modellgestützten Luftqualitätsuntersuchungen ergeben, sind allerdings noch weitgehend unbekannt.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, ein hochauflösendes Emissionsmodell für Deutschland zu entwickeln. Durch Sensitivitätsrechnungen mit einem gekoppelten Emissions- und Chemie-Transportmodell soll herausgefunden werden, wie groß die Auswirkungen von Unsicherheiten im Emissionsmodell auf die Ergebnisse der atmosphärischen Modellierung sind.

Um diese Ziele zu erreichen, wird zunächst ein räumlich, zeitlich und stofflich hochauflösendes Emissionsmodell für Deutschland entwickelt, um die erforderlichen Emissionsdatensätze in höchster Genauigkeit bereitstellen zu können. Das Emissionsmodell soll alle relevanten Quellgruppen und die wichtigsten Ozonvorläufersubstanzen NMVOC und NO_x , aber auch die übrigen klassischen Spurenstoffe CO , NH_3 und SO_2 berücksichtigen. Um das Modell nach dem Stand der Forschung zu entwickeln, war es nötig, bestehende Ansätze auf Deutschland zu übertragen und zu modifizieren, insbesondere im Bereich der Feuerungsanlagen und des Straßenverkehrs. Weitere Verbesserungen betreffen vor allem die Methoden zur räumlichen und zeitlichen Verteilung, die hier erstmals auf das Gebiet der gesamten Bundesrepublik angewendet werden. Die Ergebnisse der Emissionsberechnung für 1994 sowie eine Szenariorechnung für 2010 werden ausführlich diskutiert.

Variationen des Emissionsmodells liefern die zu den Sensitivitätsrechnungen benötigten Eingangsdatensätze für ein Chemie-Transport-Modell, das aus Emissionen, Landnutzung, Orographie und meteorologischen Daten die Konzentrationen von bodennahem Ozon und anderen Spurengasen simuliert. Es werden Fälle zu verschiedenen Emissionsstärken der Ozonvorläufersubstanzen untersucht, aber auch Änderungen in der räumlichen Verteilung der Emissionen, in der zeitlichen Lage und im stündlichen Verlauf sowie in der Zusammensetzung der VOC-Komponenten. Darüber hinaus werden die unterschiedlichen Auswirkungen von Variationen der NMVOC-Emissionen aus biogenen bzw. anthropogenen Quellen analysiert. Die Auswertung erfolgt hinsichtlich absoluter Konzentrationswerte, Überschreitungshäufigkeiten, AOT60-Werte sowie eines speziellen Parameters zur Untersuchung der Sensitivitäten, nämlich des 0,95-Quantils der Konzentrations-differenzen.

Die Ergebnisse der Sensitivitätsrechnungen zeigen für die betrachtete Episode, dass Unsicherheiten in den Emissionsdaten hohen Einfluss auf die Ergebnisse der Chemie-Transport-Modellierung haben können. Große Bedeutung kommt der richtigen Erfassung der NO_x -Emissionen und der Einbeziehung wichtiger Einzelemittenten als Punktquellen zu. Die zeitliche Lage des täglichen Anstiegs und Abfalls der Emissionen spielt offensichtlich eine größere Rolle als deren stündliche Variation. Die Verwendung vieler unterschiedlicher VOC-Profile führt zu keiner signifikanten Verbesserung der Modellierungsqualität gegenüber dem Einsatz eines einzigen Profils.

Abstract

Anthropogenic emissions contribute to a large extent to the deterioration of air quality in Germany and Europe. In this context emissions of so-called ozone precursor substances are of special interest, since in summer months with suitable meteorological conditions they are responsible for high ozone concentrations. Scientific research can contribute to understand the processes of ozone formation and to analyse possibilities for the decrease of ozone production by emission control. However, the uncertainties, which are inherent in model-supported air quality studies, are mostly unknown.

Objective of this study is the development of a model for the calculation of anthropogenic emissions in Germany with high resolution. Sensitivity analyses with a coupled emission and chemistry transport model will be performed to examine the effects of uncertainties in the emission model on the results of atmospheric modelling.

In order to achieve these goals, first a complex emission model for Germany is developed enabling the estimation of data sets of highest possible accuracy. Therefore the emission model should take into account all relevant source groups and the most important ozone precursor substance classes NMVOC and NO_x , and, in addition, also other classical pollutants like CO, NH_3 and SO_2 . In order to develop a state of the art model, it was necessary to transfer and modify existing methodologies for Germany, in particular for combustion plants and road traffic. Further improvements concern the methods for the calculation of spatial and temporal distributions which are applied here for the first time to the whole of Germany. The results of the emission calculation for 1994 as well as an emission scenario for 2010 are presented.

Variations of the emission model supply input data for a chemistry transport model, which simulates near-surface ozone concentrations for given land use, orographical and meteorological data. In this way sensitivity analyses can be carried out with respect to changes of emission input data. A large variety of cases is examined for different emission strengths of ozone precursor substances as well as modifications of the spatial distribution of the emissions, the temporal allocation and the VOC composition. Furthermore the different effects of variations of the NMVOC emissions from biogenic and anthropogenic sources are analysed. The evaluation is performed regarding concentration totals, threshold exceedances, AOT60 values as well as a special parameter for the investigation of sensitivities, the 0.95 quantile of concentration differences.

The results of the sensitivity analysis show for the episode of investigation that uncertainties in emission data can have a strong influence on the results of the chemistry transport calculations. Of great importance is the correct estimation of NO_x emissions and the inclusion of large emitters as point sources. The allocation of the daily increase and decrease of emissions is obviously more important than the shape of the time curve. The use of many different VOC profiles does not improve the modelling quality significantly compared to the application of a single profile.

1 Einleitung

Die Auswirkungen von Luftverunreinigungen auf den Menschen – sei es direkt durch das Verursachen gesundheitlicher Beeinträchtigungen oder indirekt durch Schädwirkungen in seiner Umwelt – sind seit langem Gegenstand wissenschaftlicher Forschung. Gerade vor dem Hintergrund des Zusammenwachsens der europäischen Staaten gewinnt die zunehmend überregionale Betrachtungsweise von Umweltproblemen und damit auch der Problematik von Luftverunreinigungen immer mehr an Bedeutung. Infolge des schnell steigenden Kenntnisstandes und eines wachsenden Umweltbewusstseins versuchen Regierungen über Gesetze und Verordnungen regulierend einzugreifen. Ziel europäischer Luftreinhaltepolitik ist dabei der Schutz des Menschen, seiner natürlichen Umwelt und materieller Güter vor schädlichen Schadstoffkonzentrationen.¹ Dies spiegelt sich nicht zuletzt in der „Richtlinie 96/62/EG vom 27.09.1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität“ (EU, 1996) mit ihren Tochterrichtlinien (EU, 1999; EU, 1999a) wieder. Sie schreiben eine Verschärfung der in den Luftqualitätsrichtlinien der ersten Generation festgelegten Grenzwerte für Luftverunreinigungen (EU, 1980; EU, 1985; EU, 1982; EU, 1992) innerhalb einer Übergangszeit fest.

In Deutschland sind die häufigen Grenzwertüberschreitungen von bodennahem Ozon in den Sommermonaten als besonders kritisch einzuschätzen (UMWELTBUNDESAMT, 2000). Grund für die Ozonbildung in der Troposphäre sind – begünstigt durch meteorologische Randbedingungen – so genannte Ozonvorläufersubstanzen, deren Ursprung unter anderem auf menschliche Aktivitäten zurückzuführen ist. Ozon gehört aufgrund seines Oxidationsvermögens auch in geringen Konzentrationen zu den stärksten Reizgasen. Es beeinträchtigt beim Menschen die Lungenfunktionen und kann akute und chronische Gewebeschäden hervorrufen. Darüber hinaus führt es zu Hustenreiz und Augenreizung und erhöht die Anfälligkeit gegenüber Infektionen. Neben den Auswirkungen auf die menschliche Gesundheit verursacht es auch Schäden an materiellen Gütern und Pflanzen (BAUMBACH, 1990; BENK, 1994).

Von wissenschaftlicher Seite wird zum besseren Verständnis der Ozonproblematik und zur Hilfestellung beim Entwurf von politischen Instrumenten zur Ozonminderung beigetragen, indem die Prozesse, die zur Bildung von Ozon führen, identifiziert und quantifiziert werden. Mit Hilfe von computergestützten Modellen können Ozonepisoden simuliert und die Maßnahmen ermittelt werden, die ökologisch und ökonomisch am effizientesten zur Minderung der Ozonkonzentrationen führen. Derartige Modellsysteme bestehen im Wesentlichen aus drei

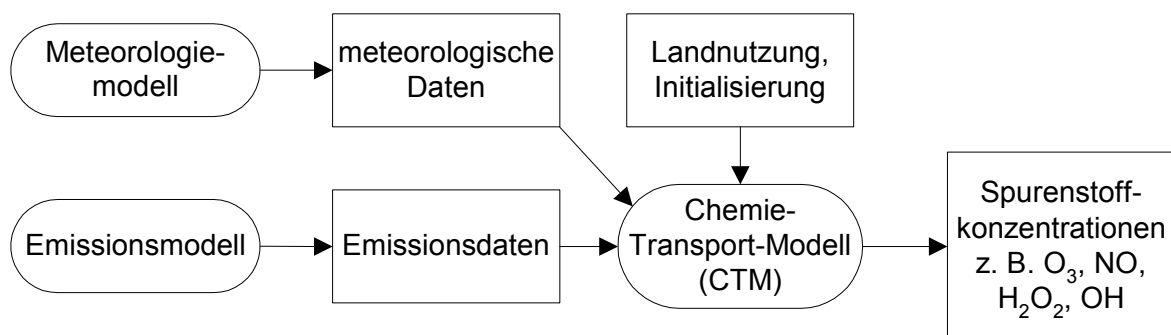


Abb. 1-1: Modellsystem für computergestützte Luftqualitätsuntersuchungen.

¹ „Luftschadstoff“ wird – wie es gebräuchlich ist – im Folgenden als Synonym für „Luftverunreinigung“ verwendet.

Hauptkomponenten, einem meteorologischen Modell, einem Emissionsmodell und einem Chemie-Transport-Modell (Abb. 1-1). Während das Meteorologiemodell zur Simulation und Vorhersage der meteorologischen Felder dient, muss das Emissionsmodell ein möglichst genaues Abbild der Emissionssituation wiedergeben. Beide Komponenten liefern die Eingangsdaten für das Chemie-Transport-Modell (CTM), das durch Lösung physikalisch-chemischer Transport- und Reaktionsgleichungen die Konzentrationen und Depositionen von Spurenstoffen innerhalb des Modellgebiets berechnet.

Ziele der Arbeit

In der vorliegenden Arbeit werden zwei wesentliche Ziele verfolgt:

- Die Entwicklung und Implementierung eines Modellsystems zur Berechnung anthropogener Emissionen für Deutschland in hoher räumlicher, zeitlicher und stofflicher Auflösung.
- Die Durchführung von Sensitivitätsstudien mit dem neuen Instrumentarium in Kopplung mit einem atmosphärischen Ausbreitungsmodell zur Untersuchung der Auswirkungen von Unsicherheiten im Emissionsmodell auf Luftqualitätsstudien.

Zum Erreichen dieser Ziele werden folgende Arbeitsschritte durchgeführt: Zunächst wird ein Instrumentarium zur Berechnung möglichst genauer anthropogener hochaufgelöster Emissionsdaten in Deutschland für die Weiterverwendung in Chemie-Transport-Modellen nach dem Stand der Technik entwickelt und beispielhaft für das Jahr 1994 angewendet. Die Modellentwicklung konzentriert sich auf die Ozonvorläufersubstanzen NO_x , NMVOC (VOC ohne Methan) und CO. Im Hinblick auf Reaktionen der Nassphasenchemie werden auch die Emissionsquellen von SO_2 und NH_3 berücksichtigt. Ein Ausblick auf die zukünftige Entwicklung der Emissionen in Deutschland wird durch die Berechnung eines Trendszenarios für das Jahr 2010 gegeben.

In einem zweiten Schritt werden Sensitivitätsrechnungen mit einem gekoppelten Modellsystem aus dem neu entwickelten Emissionsmodell und einem Chemie-Transport-Modell durchgeführt. Hierbei werden die Algorithmen einzelner Module des Emissionsmodells variiert, um verschiedene Emissionsdatensätze zu erhalten. Diese werden dann im Chemie-Transport-Modell für Ozonsimulationen einer zweitägigen Sommersmogepisode eingesetzt. Die resultierenden Ozonkonzentrationen werden schließlich mit einem Referenzfall, der sich aus der genauest möglichen Emissionsberechnung ergibt, verglichen. Mit Hilfe dieser Analyse können die Bereiche im Emissionsmodell identifiziert werden, in denen Unsicherheiten große oder weniger große Auswirkungen auf die Ozonsimulation haben. Dadurch lassen sich sowohl Unsicherheitsquellen in der Emissionsberechnung feststellen, als auch weiterer Forschungs- und Entwicklungsbedarf für Emissionsmodelle ermitteln.

Die Methoden der Ermittlung hochaufgelöster Emissionsdaten werden, ausgehend von der prinzipiellen Berechnungsstruktur bis zur Anwendung der verschiedenen Verteilungsparameter, in den Kapiteln 2 bis 4 dargestellt. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse der Emissionsberechnung für das Jahr 1994 und beispielhaft für eine mehrtägige Episode wird in Kapitel 5 gegeben. Grundlagen und Ergebnisse der Sensitivitätsrechnungen werden in Kapitel 6 beschrieben. Kapitel 7 enthält die sich daraus ergebenden Schlussfolgerungen. Im Anhang sind die Ergebnisse der Sensitivitätsanalyse detailliert zusammengestellt.

2 Grundlagen und Problemstellung

Neben einer Einführung in die generelle Methodik zur Berechnung von Luftschadstoffemissionen wird ein kurzer Überblick zum Stand der Emissionsberechnung in Deutschland und zu vorhandenen Sensitivitätsuntersuchungen von Ozonmodellen bezüglich der verwendeten Emissionsdaten gegeben.

2.1 Prinzipielles Vorgehen zur Berechnung hochaufgelöster Emissionen

Aufgrund der großen Anzahl von einzelnen Emissionsquellen – im Jahr 1994 betrug z. B. der Kraftfahrzeugbestand in der Bundesrepublik 32,4 Mio. Fahrzeuge (BUNDESVERKEHRSMINISTERIUM, 1996) – können nicht alle Emissionen innerhalb eines großräumigen Gebiets gemessen werden. Sie werden daher im Allgemeinen aus statistischen Daten anhand der Gleichung

$$E_{p,t} = f_p(A_{t,1}, \dots, A_{t,n}) \quad (2-1)$$

$E_{p,t}$	Emission von Schadstoff p einer Quelle oder Quellgruppe zur Zeit t
f_p	Funktion, die den Emissionsprozess von Stoff p der Quelle beschreibt
$A_{t,i}$	Emissionsrelevante Aktivität i zur Zeit t

berechnet. Die hier als Aktivität bezeichnete Größe A kann dabei direkt in den Emissionsprozess eingebunden (z. B. Energieeinsatz in Feuerungsanlagen) oder nur als Proportionalitätsfaktor mit den Emissionen korreliert sein (z. B. Viehbestand).

Nur für wenige Quellgruppen kann mit der Funktion f_p ein komplexes Prozessschema der Emissionsentstehung flächendeckend abgebildet werden (z. B. biogene Emissionen). In den meisten Fällen wird der obige Ansatz vereinfacht, d. h. linearisiert:

$$E_{p,t} = \sum_i e_{p,i} \cdot A_{t,i} \quad (2-2)$$

$E_{p,t}$	Emission von Schadstoff p einer Quelle oder Quellgruppe zur Zeit t
$e_{p,i}$	Emissionsfaktor (= Proportionalitätsfaktor) für Aktivität A
$A_{t,i}$	Aktivität i der Quelle zur Zeit t

Die Summe schließt die Möglichkeit ein, dass mehrere verschiedene Emissionsprozesse innerhalb einer Quelle zur Gesamtemission eines Stoffes führen, wie dies z. B. in einer Mischfeuerungsanlage der Fall ist. Zu beachten bei der Realisierung von Emissionsmodellen ist die wechselseitige Abhängigkeit von Emissionsfaktor und Aktivität: Die Emission kann nur dann nach Gleichung (2-2) berechnet werden, wenn sowohl Daten zur Aktivität als auch korrespondierende Emissionsfaktoren zur Verfügung stehen.

Emissionsfaktoren können der Literatur entnommen werden (z. B. UMWELTBUNDESAMT, 1999; EUROPEAN ENVIRONMENTAL AGENCY, 1999; ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY, 1998). Bei der Ableitung aus Messungen ist besonders wichtig, dass sie repräsentativ für den untersuchten Emissionsprozess sind und in Abhängigkeit von der korrespondierenden Aktivität durchgeführt werden. Fehlerbandbreiten von Emissionsfaktoren sind nur sehr selten dokumentiert.

Werden Emissionen zunächst mit hohem Detaillierungsgrad ermittelt, d. h. in feiner Prozessuntergliederung sowie in hoher räumlicher, zeitlicher und stofflicher Auflösung, und erst dann zur gewünschten Stufe aggregiert, spricht man von einem *Bottom-Up-Ansatz*. Im *Top-*

Down-Ansatz werden dagegen die Emissionen zunächst auf einer hohen Aggregierungsstufe berechnet und erst dann mit Hilfe von geeigneten Faktoren disaggregiert. Beide Ansätze können jedoch fast nie in Reinform angewendet werden, meistens handelt es sich um Mischansätze. Dies hat methodische Gründe: Häufig werden zur Verminderung von Unsicherheiten Emissionen, die mit hochaufgelösten Aktivitätsdaten in einem Bottom-Up-Ansatz berechnet werden, mit aggregierten Aktivitätsdaten abgeglichen, wenn die aggregierten Daten als Summe zuverlässiger erscheinen (z. B. der Energieverbrauch auf Kreisebene mit Daten aus der Bundesenergiebilanz), was wiederum einem Top-Down-Ansatz entspricht. Darüber hinaus werden bei der programmtechnischen Umsetzung der Emissionsberechnung immer wieder verschiedene Aggregierungs- und Disaggregierungsschritte zur Erhöhung der Rechengeschwindigkeit durchgeführt.

Der Vektoransatz (Zeit-, Raum- und Stoff-Verteilungsvektoren)

Für die Berechnung hochaufgelöster Emissionsdaten hat sich der Vektoransatz nach LAING (1996) als besonders flexibel erwiesen. Als Vektor wird hier ein Satz von Parametern bezeichnet, der die Verteilung eines Jahresemissionswertes beschreibt. Zunächst werden für das zu untersuchende Gebiet die Jahresemissionen der einzelnen Quellgruppen berechnet. Die räumliche Charakteristik (punkt-, linien- oder flächenförmig) der den Eingangsdaten zu Grunde liegenden Geometrie bleibt dabei erhalten. Die eigentliche Berechnung der hochaufgelösten Daten erfolgt dann durch Multiplikation mit Zeit-, Raum- und Stoffvektoren, die die jeweiligen Disaggregierungsanteile der benötigten Emissionsdaten enthalten (Gleichung (2-3)). Mit dem Zeitvektor werden z. B. Jahresemissionen auf einzelne Stunden verteilt, mit dem Raumvektor die als Punkt-, Linien- oder Flächenquellen vorliegenden Emissionen auf ein Raster. Die Verteilung von Emissionen mit Stoffvektoren („Stoff-Profilen“) bietet sich z. B. bei der Berechnung von Feinstaubemissionen nach verschiedenen Größenklassen oder bei der Verteilung von NMVOC-Emissionen auf verschiedenen reaktive Stoffgruppen an.

$$E_{t,c,p} = \sum_a E_{a,P,G,T} \cdot z_{a,t,T} \cdot r_{a,c,G} \cdot s_{a,p,P} \quad (2-3)$$

$E_{t,c,p}$	Emission in der Stunde t in Rasterzelle c von Schadstoff p
$E_{a,P,G,T}$	Emission von Quelle a von Schadstoffgruppe P im Jahr T aus geographischer Einheit G
$z_{a,t,T}$	Anteil der Emissionen von Quelle a des Jahres T an Stunde t
$r_{a,c,G}$	Anteil der Emissionen von Quelle a der geographischen Einheit G an Rasterzelle c
$s_{a,p,P}$	Anteil der Emissionen von Quelle a der Schadstoffgruppe P an Schadstoff p

Beispielhafter Parametersatz:

a	Haushalte, Lösemittelanwendung
T	1994
t	8. Stunde des Tages am 25.07.1994
G	Kreis Stuttgart
c	1 km x 1 km Zelle mit den Gauß-Krüger-Koordinaten: 4.293.000/5.408.000
P	NMVOC (leichtflüchtige Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe)
p	Ethen

Rechentechnisch kann die Datenhaltung von Emissionen, Disaggregierungsvektoren und Zuordnungstabellen mit einer relationalen Datenbank umgesetzt werden. Jahresemissionen und

Verteilungsvektoren werden dabei in getrennten Tabellen abgelegt. Die Verknüpfung der Jahresemissionen mit den einzelnen Vektoren erfolgt über Zuordnungstabellen, die die Attribute der Jahresemissionen und die Bezeichnung der jeweils anzuwendenden Vektoren in Beziehung zueinander setzen. Die Anzahl und Art der Attribute der Jahresemissionen (z. B. Land, Quelle, Jahr, Sektor, Technik, Einsatzstoff, Schadstoff, Einheit) hängt davon ab, wie viele unterschiedliche Verteilungsvektoren verwendet werden. So werden z. B. die Feuerungsemissionen von Haushalten ebenso wie die innerörtlichen Emissionen des Straßenverkehrs innerhalb eines Kreises auf die bebauten Gebiete verteilt und könnten daher in der Jahresemissionstabelle zusammengefasst werden. Da die Emissionen dieser beiden Quellgruppen aber einen unterschiedlichen Zeitgang aufweisen, müssen sie getrennt mit verschiedenen Attributen gespeichert werden, um sie den jeweiligen Zeitvektoren zuordnen zu können.

Der Vektoransatz ist von seiner Struktur her ein Top-Down-Ansatz, da aggregierte Emissionen feiner verteilt werden. Allerdings kann die Berechnung der Jahresemissionen oder die Ableitung der Raum- und Zeitvektoren für bestimmte Emissionsquellen durchaus in einem vorhergehenden Schritt als Bottom-Up-Ansatz erfolgen. Insgesamt betrachtet liegt also ein Mischansatz vor. Bei der Berechnung hochaufgelöster Emissionen für die Bundesrepublik Deutschland 1994 werden ca. 180.000 Aktivitätsdaten, 164 Zeitkurven, 2795 Raumvektoren und 96 NMVOC-Profile verarbeitet. Die Ermittlung der Jahresemissionen sowie der verschiedenen Disaggregierungsvektoren für diese Berechnungen wird in Kapitel 3 und 4 beschrieben.

Beispiel

In Abb. 2-1 ist ein vereinfachtes Beispiel zur Anwendung des Vektoransatzes dargestellt. Die Aktivitätstabelle enthält die **Jahresemissionen** der einzelnen Quellen oder Quellgruppen, in diesem Fall Emissionen einer Flächenquelle (Haushalte) und einer Punktquelle (Modellkraftwerk KW 5 in Baden-Württemberg).

Über die Attribute in den **Zuordnungstabellen** werden die Jahresemissionen mit den Disaggregierungsvektoren verknüpft. Im Fall der flächenhaften Emission aus Kleinfeuerungen wird die Emission mit dem **Raumvektor** über mehrere Zellen des Emissionsgitters verteilt, im Fall der punktförmigen Emissionen aus dem Kraftwerk nur auf eine Gitterzelle. Die Summe über alle Zellanteile muss 1 ergeben, wenn die Emissionsquelle vollständig innerhalb des Gitters liegt. Von der **Zeitvektortabelle** wird im Beispiel nur jeweils eine 3-Stundenepisode angezeigt. Um bei einer Berechnung der Emissionen über alle Stunden des Jahres die Werte aus der Jahresemissionstabelle zu erhalten, muss die Summe aller Stundenanteile wieder 1 ergeben. Die SO₂-Emissionen der Kleinfeuerungen werden in der **Stoffvektortabelle** nicht weiter aufgeteilt (Anteil = 1), die NMVOC-Emissionen werden dagegen verschiedenen Stoffklassen zugeordnet.

Die Emissionen von SO₂ in Gitterzelle 230 zur 8. Stunde bzw. die Emissionen von Aldehyden in Gitterzelle 50 zur 9. Stunde ergeben sich nach Gleichung (2-3) zu

$$E_{8,230,2} = 7,2 \cdot 0,0015 \cdot 0,3 \cdot 1 [t] = 3,24 \cdot 10^{-3} [t]$$

$$E_{9,50,26} = 3,1 \cdot 0,0003 \cdot 1 \cdot 0,11 [t] = 1,023 \cdot 10^{-4} [t]$$

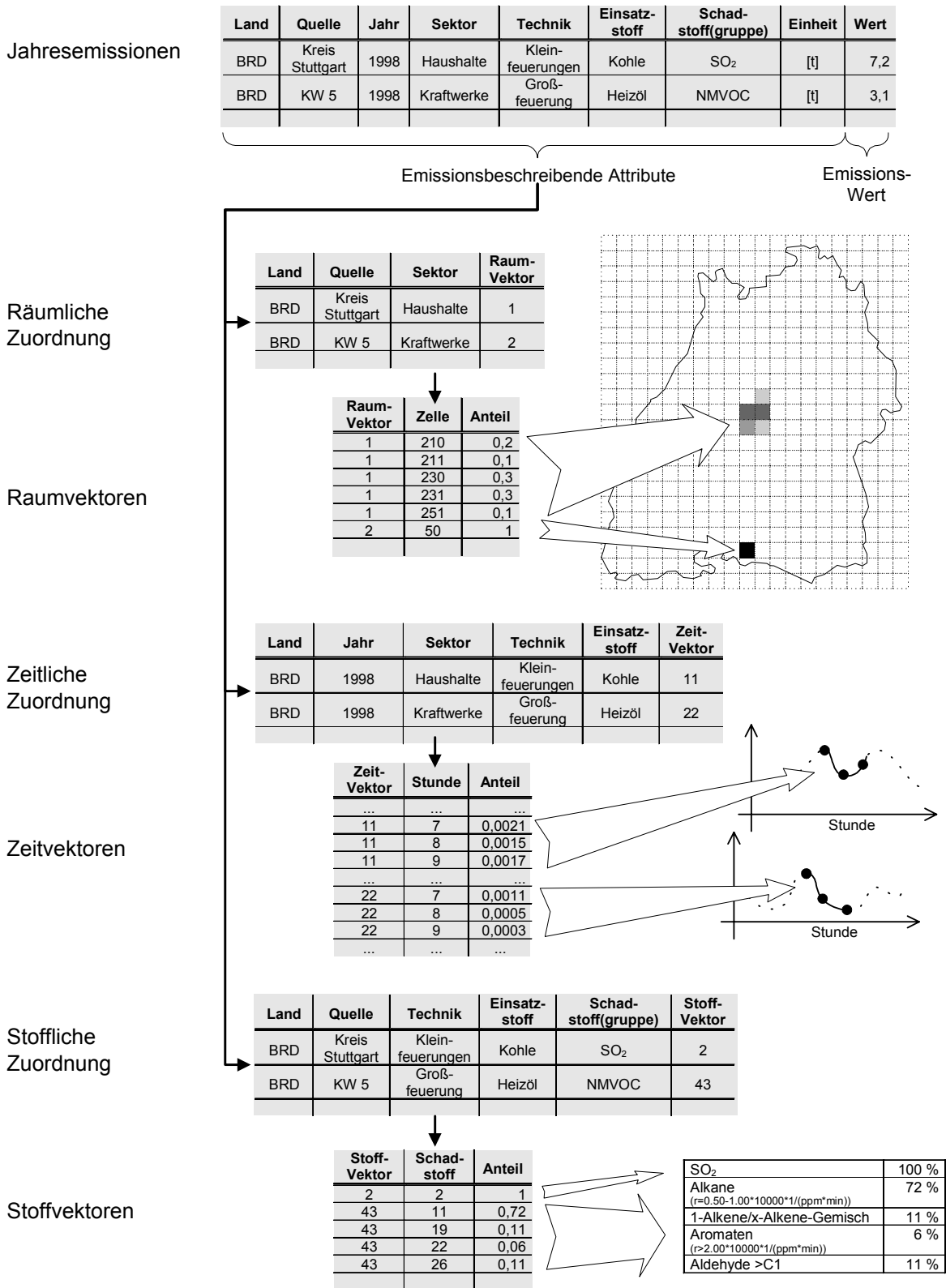


Abb. 2-1: Berechnung von hochaufgelösten Emissionsdaten aus Jahresemissionen, Raum-, Zeit- und Stoffvektoren.

2.2 Bisherige Untersuchungen

2.2.1 Emissionsstudien

An die Ergebnisse eines Modells zur Ermittlung anthropogener Emissionen müssen, wenn diese zur Simulation von Ozonepisoden verwendet werden sollen, folgende Anforderungen gestellt werden:

- **Betrachtete Schadstoffe:** Die wichtigsten Vorläufersubstanzen anthropogenen Ursprungs von Ozon sind NO_x und die Kohlenwasserstoffe. Auch CO spielt eine – wenn auch geringere – Rolle bei der Ozonbildung. Die Aufteilung der Kohlenwasserstoffe in Einzelsubstanzen oder Substanzklassen muss in Anlehnung an den im CTM verwendeten Chemie-Mechanismus erfolgen. Die anderen klassischen Luftschadstoffe SO_2 und NH_3 sollten für die im Modellgebiet gegebenenfalls auftretende Nassphasenchemie berücksichtigt werden.
- **Vollständigkeit:** Um die Vollständigkeit der Emissionen für die betrachteten Schadstoffe zu gewährleisten, müssen alle in Betracht kommenden Emissionsprozesse genau analysiert werden.
- **Zeitliche Auflösung:** Chemie-Transport-Modelle rechnen mit Zeitkonstanten bis zu wenigen Sekunden. Die Berechnung von Emissionen kann wegen fehlender Grundlagendaten nicht in dieser Auflösung erfolgen. Ein Zeitschritt von einer Stunde sollte aber nicht überschritten werden, da sonst der tägliche Anstieg bzw. Abfall der Emissionen nicht ausreichend genau modelliert werden kann.
- **Räumliche Auflösung:** Der Ozonbildungsmechanismus ist extrem nicht-linear und kann – je nach meteorologischen Randbedingungen – von lokalen Emissionen ebenso abhängen wie von überregionalem Transport von Ozonvorläufersubstanzen. Ein Emissionsmodell muss also in der Lage sein, auch auf sehr großen Gebieten von mehreren hundert Kilometern kleinräumige Emissionsdaten mit Gitterweiten bis 2 km zu liefern.

In Deutschland wurden und werden Emissionen aus anthropogenen Quellen für vielfältige Zwecke berechnet, die diesen Ansprüchen allerdings nicht genügen.

Die Landesregierungen sind nach § 44 des Bundes-Immissionsschutzgesetzes dazu angehalten, Untersuchungsgebiete auszuweisen, „in denen Luftverunreinigungen auftreten oder zu erwarten sind, die wegen der Häufigkeit und Dauer ihres Auftretens, ihrer hohen Konzentration oder der Gefahr des Zusammenwirkens verschiedener Luftverunreinigungen schädliche Umwelteinwirkungen hervorrufen können“. Für diese Gebiete sollen räumlich und zeitlich aufgelöste Emissionskataster als Grundlage für Immissionsuntersuchungen aufgestellt werden (z. B. MINISTERIUM FÜR UMWELT UND NATURSCHUTZ DES LANDES SACHSEN-ANHALT, 1994; AMIAN et al., 1995). Darüber hinaus werden von den einzelnen Bundesländern in unregelmäßigen Zeitabständen Emissionskataster in unterschiedlicher Darstellungsweise herausgegeben (z. B. MINISTERIUM FÜR UMWELT UND VERKEHR BADEN-WÜRTTEMBERG, 1998; LUA-NRW, 1999; PREGGER et al., 2001; UMWELTBEHÖRDE HAMBURG, 1997; Übersicht in PIEPER, 2000). Diese Kataster unterscheiden sich allerdings in ihrer Erhebungsmethodik, der Quellgruppensystematik, der räumlichen Auflösung, den berücksichtigten Schadstoffen und im Bezugsjahr. Deutschlandweit liegt kein flächendeckendes einheitliches Emissionskataster vor.

Das Umweltbundesamt berechnet jährliche Emissionen von Luftverunreinigungen aufbauend auf vielfältigen wissenschaftlichen Studien (UMWELTBUNDESAMT 1998). Diese Emissionsdaten werden für ausgewählte Bezugsjahre auf die einzelnen Kreise innerhalb Deutschlands verteilt und in das europäische Emissionskataster CORINAIR¹ des Europäischen Umweltamtes (European Environment Agency) übernommen. Im zugehörigen CORINAIR-Handbuch (EUROPEAN ENVIRONMENT AGENCY, 1999) werden einfache Berechnungsmethoden zur Ermittlung der Emissionen vorgeschlagen. Allerdings werden keine Methoden für die Verfeinerung der räumlichen, zeitlichen und stofflichen Auflösung dieser Jahreswerte geliefert.

Dieselben Jahresemissionsdaten – zumindest für Deutschland – liegen auch dem EMEP²-Emissionskataster (z. B. EMEP, 1999) zu Grunde, einem europäischen Emissionsdatensatz, der jährlich aktualisiert und veröffentlicht wird. Die Daten werden auf einem 50 km x 50 km Gitter geliefert, hinsichtlich der zeitlichen und stofflichen Auflösung bestehen dieselben Einschränkungen wie bei den CORINAIR-Daten.

Hochaufgelöste Emissionsdaten aus Forschungsprojekten liegen vielfach auf Ebene der Bundesländer oder Regionen Deutschlands für unterschiedliche Bezugsjahre und Verursachergruppen vor (z. B. SCHNEIDER, 1994; OBERMEIER, 1995; SEIER, 1996; JOHN, 1999; JOHN et al., 1995; WICKERT et al., 1998), allerdings mit verschiedenem Stoffspektrum und in nicht einheitlicher Methodik.

2.2.2 Sensitivitätsrechnungen

Die Reaktionen von atmosphärischen Ausbreitungsmodellen auf Variationen der Eingangsdaten ist vor allem für die Entwickler und Anwender dieser Modelle von höchstem Interesse. Da die Berechnung der Emissionsdaten aber in der Regel funktional und institutionell getrennt von der Anwendung der Meteorologie- und Ausbreitungsmodelle erfolgt, beschränken sich diesbezügliche Untersuchungen bis auf einige Ausnahmen auf die Betrachtung der übrigen Eingangsdaten (Meteorologie, Topographie, Landnutzung).

In SCHLÜNZEN und LENZ (in prep.) wurde unter anderem der Einfluss der anthropogenen Emissionsdaten auf die Güte des METRAS³-Modells (SCHLÜNZEN, 1990) für die TRACT⁴-Episode (OBERMEIER et al., 1996) analysiert, indem die NMVOC- und NO_x-Emissionen in sechs Fällen mit festen Faktoren variiert wurden. Dazu wurden die mit METRAS ermittelten Ozon- und NO_x-Konzentrationen sowohl mit Flugzeugmessungen als auch mit Bodenstationsdaten verglichen und die Güte der Modelldaten für den Referenzfall und die Sensitivitätsfälle über Trefferquoten innerhalb fester Fehlergrenzen bestimmt und untereinander verglichen. Da zur Definition der Sensitivitätsfälle nur ein Emissionsdatensatz zur Verfügung stand, konnten keine Änderungen von Variationen in der zeitlichen, stofflichen oder räumlichen Auflösung ermittelt werden.

Sensitivitätsrechnungen mit einem gekoppelten Emissions-Ausbreitungsmodell (MARS⁵/MEMO: MOUSSIOPOULOS, 1989; FLASSAK, 1990) wurden in SCHNEIDER (1994) durchgeführt. Die Variationen wurden quellgruppenspezifisch für die einzelnen Emissionsprozesse des Straßenverkehrs und die Lösemittelanwendung vorgenommen. In einem Fall wurde

¹ The Core Inventory of Air Emissions in Europe

² European Monitoring and Evaluation Programme

³ Mesoscale Transport and Fluid Model

⁴ Transport of Air Pollutants over Complex Terrain

⁵ Mathematisches Modell zur Berechnung der Ausbreitung reaktiver Schadstoffe

durch Variation von Punktquellenemissionen auch die räumliche Komponente einbezogen. Fälle zur zeitlichen oder stofflichen Auflösung der Emissionen von Ozonvorläufersubstanzen wurden nicht definiert. Wie bei SCHLÜNZEN und LENZ (2001) konzentrierten sich die Untersuchungen auf das Gebiet des Oberrheingrabens.

Europaweite Berechnungen zum Einfluss von Emissionsdaten auf die Ozonbildung wurden z. B. von BUILTJES (1992) durchgeführt. Eine Zusammenfassung älterer europawweiter Untersuchungen (OECD, 1990) ergab folgende qualitativen Sensitivitäten bei großräumiger Ozonmodellierung:

Tabelle 2-1: Sensitivitäten bei europawweiter Ozonmodellierung

Komponente des Emissionsmodells	Sensitivität
zeitlicher Verlauf VOC/NO _x	hoch
zeitliche Lage VOC/NO _x	hoch
anthropogene VOC	hoch
biogene VOC	mittel
VOC Split	hoch
anthropogene NO _x	mittel
Punktquellen	mittel
räumliche Auflösung	niedrig

Weitere Hinweise über Auswirkungen von Änderungen in den Emissionsdaten kann auch den in vielen Luftqualitätsstudien erstellten Emissionsminderungsszenarien entnommen werden (z. B. OBERMEIER et al., 1995a, SCHOENEMEYER et al., 1995, MEMMESHEIMER et al., 1995). Diese sind aber nur bedingt geeignet, um Sensitivitäten des Gesamtsystems abzuleiten, da es sich bei den Minderungsszenarien meist nur um eine pauschale Verringerung der Emissionen handelt. Zeitliche, räumliche oder stoffliche Aspekte sowie Auswirkungen von erhöhten Emissionen werden bei derartigen Szenarienrechnungen in der Regel nicht berücksichtigt. Darüber hinaus liegen nur in seltenen Fällen Detailergebnisse für die einzelnen Emissionsszenarien vor, so dass eine konsistente Verknüpfung von Ursache und Wirkung kaum möglich ist.

2.3 Notwendige Arbeiten

Die Zusammenfassung der bisherigen Untersuchungen (Kapitel 2.2.1 und 2.2.2) lässt folgende Defizite erkennen:

- Es liegen keine Emissionsdatensätze für Deutschland vor, die den in 2.2.1 genannten Anforderungen genügen und die für die in dieser Arbeit beabsichtigten Untersuchungen herangezogen werden könnten.
- Sensitivitätsrechnungen zur Analyse der Auswirkungen von Unsicherheiten oder Vereinfachungen in Emissionsmodellen auf die mit einem gekoppelten atmosphärischen Modell simulierten Ozonkonzentrationen beschränken sich auf pauschale Änderungen der Emissionshöhe. Zeitliche, räumliche und stoffliche Variationen wurden nicht durchgeführt. Es gibt nur wenige quantitative Sensitivitätsstudien.

Aus diesen Voraussetzungen ergibt sich die Notwendigkeit, einen räumlich, zeitlich und stofflich hochaufgelösten Emissionsdatensatz zu erzeugen, der für nachfolgende Sensitivitätsstudien mit einem chemischen Ausbreitungsmodell geeignet ist. Dazu sollen Methoden aus vorhandenen Untersuchungen übernommen sowie erweiterte und verbesserte Ansätze entwickelt und erstmals für das Gebiet der gesamten Bundesrepublik konsistent angewandt werden.

In Sensitivitätsrechnungen sollen auch solche Fälle untersucht werden, die über die reine Änderung der Emissionshöhe einzelner Schadstoffe oder Schadstoffgruppen hinausgehen. Variationen des Zeitgangs einzelner Quellsektoren, unterschiedliche räumliche Auflösungsstufen und die Verwendung von modifizierten VOC-Profilen sind von besonderem wissenschaftlichen Interesse. Hierbei ist die komplette Neuberechnung der Emissionsdaten von Vorteil, da dadurch in jeden Bereich des Emissionsmodells eingegriffen werden kann und die einzelnen Sensitivitätsfälle relativ frei definiert werden können.

3 Berechnung der Jahresemissionen

Zur Berechnung anthropogener Jahresemissionen in Deutschland steht eine Vielzahl von Grundlagendaten und Methoden zur Verfügung, die allerdings noch weiterer Verbesserungen bedürfen. Dies betrifft vor allem den räumlichen Detaillierungsgrad. Für die weiteren Verarbeitungsschritte zur räumlichen, zeitlichen und stofflichen Auflösung ist es nämlich notwendig, schon die Jahresemissionen so genau wie möglich zu erfassen. Aggregierte Daten für die gesamte Bundesrepublik können nur in Ausnahmefällen verwendet werden, die größte räumliche Auflösung sollte mindestens die Kreisebene sein. Sektoral ist eine detaillierte hierarchische Klassifizierung (z. B. CORINAIR SNAP-Code¹, EUROPEAN ENVIRONMENTAL AGENCY, 1999) wünschenswert.

Neben der Erhöhung der räumlichen Auflösung von Jahresemissionen ist auch die Weiterentwicklung von Emissionsberechnungsmethoden erforderlich. Gegenüber existierenden Emissionsstudien werden folgende Verbesserungen durchgeführt:

- Größe des Untersuchungsgebiets: Erstmals wird ein konsistentes Modell zur Berechnung hochaufgelöster Emissionen flächendeckend für ganz Deutschland entwickelt.
- Verwendung von Emissionserklärungsdaten von elf Bundesländern: Alle für 1994 verfügbaren Emissionserklärungsdaten mit zusammen mehr als 36.000 Punktquellendaten werden in die Emissionsmodellierung einbezogen.
- Verwendung eines neuen Modells für die Ermittlung der Emissionen aus Kleinf Feuerungen.
- Entwicklung und Anwendung eines Regionalisierungsansatzes für die Berechnung von Lösemittlemissionen auf Kreisebene.
- Weiterentwicklung und Anwendung eines Verkehrsmodells: Erstmals wird ein Modell zur Ermittlung hochaufgelöster Emissionen auf ganz Deutschland angewandt.
 - Überarbeitung der Methoden zur Fahrleistungsabschätzung
 - Verbesserung der Methoden zur Berechnung von Kaltstartemissionen mit Ergebnissen neuerer Untersuchungen
 - Verbesserung und Erweiterung der Ansätze zur Ermittlung von Verdunstungsemissionen hinsichtlich der Temperaturabhängigkeit
 - Einbeziehung der Verdunstungsemissionen während der Fahrt (Running Losses)

Dieses Kapitel soll einen Überblick über Eingangsgrößen, Grundlagen und Methodik der Emissionsberechnung in der Bundesrepublik Deutschland für das Jahr 1994 geben. Eine detaillierte Beschreibung der Berechnungsmethoden und ausführliche Zwischenergebnisse werden – soweit sie für das Verständnis des Modells oder zum Vergleich mit anderen Methoden benötigt werden – vorgestellt. Eine ausführliche Ergebnisdarstellung wird in Kapitel 5 erfolgen.

3.1 Überblick über die relevanten Quellen

Tabelle 3-1 zeigt die Bedeutung der Quellgruppen für die Emissionen einzelner Schadstoffe oder Schadstoffgruppen. Die Gliederung der Emissionsquellen ist ein Kompromiss aus prozessorientierter Sichtweise des Emissionsvorgangs (z. B. Feuerungen) und einer Systematik nach Wirtschaftssektoren (z. B. Kleinverbraucher). Aus rein modelltechnischer Sicht ist eine

¹ Selected Nomenclature for Air Pollution

prozessorientierte Einteilung sicher vorzuziehen, wie dies z. B. im hierarchischen System des CORINAIR SNAP-Codes (EUROPEAN ENVIRONMENTAL AGENCY, 1999) verwirklicht wurde, während für eine branchenbezogene Beurteilung eine Klassifizierung nach SYPRO² (STATISTISCHES BUNDESAMT, 1979) oder WZ93³ (STATISTISCHES BUNDESAMT, 1996) benötigt wird. Allerdings kann weder die eine noch die andere Einteilung bei der Emissionsberechnung vollständig verwirklicht werden, da die in die Modellierung eingehenden Aktivitätsdaten meistens branchenbezogen sind, während die Emissionsfaktoren prozessbezogen vorliegen. Daher erfolgt die Einteilung in Quellgruppen je nach Datenlage entsprechend den in den folgenden Kapiteln beschriebenen Methoden zur Emissionsberechnung.

Tabelle 3-1: Luftschadstoffemissionsquellen und ihre Relevanz

Quellgruppe		SO ₂	NO _x	CO	NMVOC	NH ₃
Feuerungen	Haushalte	+	+	+	+	-
	Kleinverbraucher	+	+	+	+	-
	Industrie	HQ	++	+	+	-
Prozesse	Industrie	+	+	+	+	-
Lösemiteileinsatz	gewerblich	-	-	-	++	-
	privat	-	-	-	+	-
Mobile Quellen	Straßenverkehr	+	HQ	HQ	HQ	-
	übriger Verkehr	+	+	+	+	-
Landwirtschaft	Viehhaltung	-	-	-	-	HQ
	Düngemiteileinsatz	-	-	-	-	+
Biogene Emissionen		-	-	-	++	-

HQ: Hauptquelle > 50 % +: Quelle > 2 %
 ++: wichtige Quelle > 30 % -: keine Emission oder < 2%

Die Einteilung der **Feuerungsemissionen** in Industrie, Haushalte und Kleinverbraucher orientiert sich an der Bundesenergiebilanz. Diese dient auch zum Abgleich der für die Emissionsmodellierung ermittelten Energieverbräuche (Kapitel 3.2). Dadurch sind die auf diese Weise gewonnenen Emissionsdaten vergleichbar mit Daten aus anderen Emissionskatastern.

Die hohen SO₂-Emissionen aus Feuerungen, insbesondere aus Großfeuerungsanlagen der Industrie, beruhen auf dem hohen Anteil von schwefelhaltiger Kohle an den zur Verbrennung eingesetzten Energieträgern.

Als **Prozessemissionen** werden industrielle Emissionen bezeichnet, die nicht aus der Verbrennung von Energieträgern zum Zweck der Wärmergewinnung oder aus der Verwendung von Lösemitteln stammen, sondern aus dem Produkt selbst bei seiner Verarbeitung entstehen (z. B. Kalkbrennen).

Im Gegensatz zur Modellierung von Feuerungsemissionen ist bei der Ermittlung der Emissionen aus der **Anwendung von Lösemitteln** eine eindeutige Trennung von Industrie- oder Kleinverbrauchersektor nicht möglich, da sich hier die Anwendungsbereiche zu stark überlappen und der Produkteinsatz nicht branchenscharf aufgelöst werden kann. So wird z. B. das ganze Spektrum der Lacke sowohl in großen Industrieunternehmen als auch in kleinen

² Systematik für die Statistik im Produzierenden Gewerbe, Ausgabe 1979

³ Klassifikation der Wirtschaftszweige, Ausgabe 1996

Handwerksbetrieben eingesetzt, während die Verfeuerung von Rohbraunkohle eindeutig den Großkraftwerken zuzuordnen ist.

Bei den **mobilen Quellen** stellt der Straßenverkehr die Hauptemissionsquelle für CO, NO_x und NMVOC dar. Entsprechend dem Vorgehen bei den Feuerungsemissionen dienen die Daten aus der Bundesenergiebilanz als Referenzgröße für den gesamten Kraftstoffabsatz in Deutschland.

Der **Landwirtschaftssektor** ist, soweit es den Energieverbrauch betrifft, den Kleinverbrauchern und dem übrigen Verkehr zugeordnet. Die Ausweisung als einzelne Quellgruppe wird dadurch gerechtfertigt, dass die Viehhaltung und der Düngemittleinsatz mit einem Anteil von über 90 % an den Gesamtemissionen von NH₃ dessen Hauptquellen darstellen. Diese Emissionen gelten nicht direkt als anthropogene Emissionen, werden aber als „anthropogen induziert“ bezeichnet.

Biogene Emissionen, d. h. Emissionen aus Pflanzen oder Böden, gehören zu den Hauptemittenten einzelner NMVOC-Stoffgruppen, nämlich der atmosphärenchemisch sehr reaktiven Terpene und Pinene. Sie hängen stark von den meteorologischen Verhältnissen ab und werden daher in der Regel erst direkt in Chemie-Transport-Modellen berechnet. Sie werden im Rahmen dieser Arbeit erst für die Sensitivitätsstudien näher betrachtet (Kapitel 6).

3.2 Feuerungsemissionen

Feuerungsemissionen lassen sich meist aus Energieverbrauch und korrespondierenden Emissionsfaktoren bestimmen. Das Problem der Berechnung hochaufgelöster Emissionen verlagert sich damit auf die Ermittlung möglichst detaillierter Energieverbrauchsdaten für die einzelnen Verursachergruppen.

Für Kleinf Feuerungen wird ein Ansatz verwendet, der am IER für das Umweltbundesamt entwickelt wurde, bei der Berechnung von Feuerungsemissionen der Industrie kommen neue, auf die speziell für 1994 vorliegende Datenlage abgestimmte Methoden zum Einsatz. Erstmals werden dabei alle verfügbaren Emissionserklärungsdaten der einzelnen Bundesländer ausgewertet und zusammen mit einem Modell zur Ermittlung der Flächenquellenemissionen aus Industriefeuerungen in ein konsistentes Gesamtmodell integriert.

3.2.1 Kleinf Feuerungen der Haushalte und Kleinverbraucher

Der größte Teil der Feuerungsanlagen der Sektoren Haushalte und Kleinverbraucher ist nicht genehmigungsbedürftig nach der 4. BUNDESIMMISSIONSSCHUTZVERORDNUNG⁴ (1999), sondern fällt unter die Bestimmungen der 1. BImSchV (2000), der Kleinf Feuerungsanlagenverordnung. Diese Anlagen werden zu Heizzwecken (Raumwärme) und anderen Wärmedienstleistungen (Prozesswärme) wie z. B. die Warmwasserbereitung eingesetzt. Die Emissionen der Feuerungsanlagen unterscheiden sich im Wesentlichen nach Anlagenart, Leistung, Alter und eingesetztem Brennstoff. Entsprechend differenziert muss daher auch der Berechnungsablauf festgelegt werden. In BLANK et al. (1999) wird eine Methode zur Ermittlung der Emissionen detailliert dargestellt, die im Folgenden schematisch skizziert wird.

⁴ Im Folgenden abgekürzt als BImSchV

Haushalte

Die Berechnung der Emissionen aus Feuerungsanlagen des Haushaltssektors stellt eine typische Mischung aus einem Bottom-Up-Ansatz und einem Top-Down-Ansatz dar (Abb. 3-7).

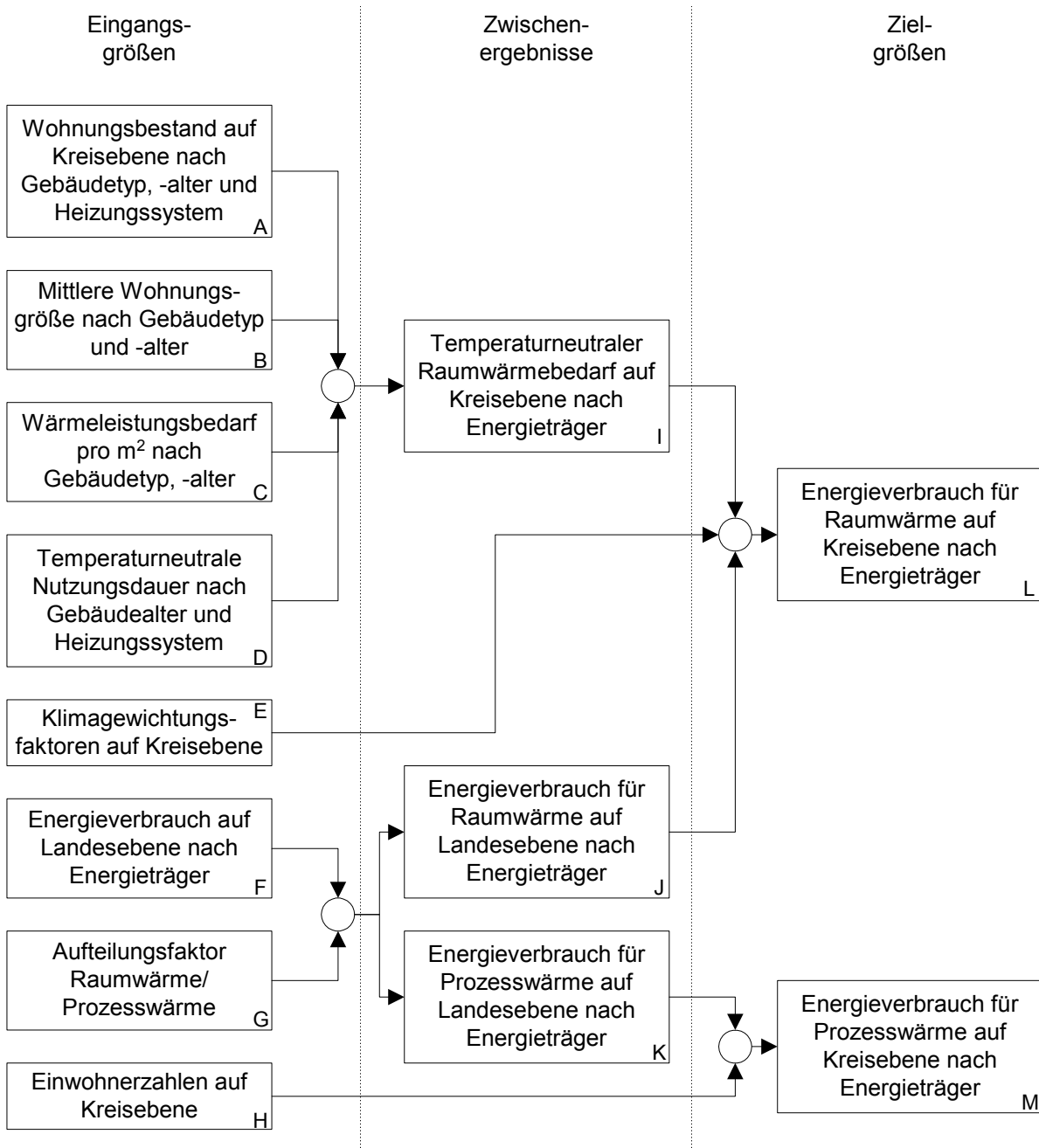


Abb. 3-1: Schematische Darstellung der Berechnung des Energieverbrauchs im Haushaltssektor auf Kreisebene.

Mit der Auswertung der Gebäude- und Wohnungszählung (A) von 1987 und 1995 auf Kreisebene (STATISTISCHES BUNDESAMT, 1987; STATISTISCHES BUNDESAMT, 1996a) und aktuellen Statistiken auf Landesebene (STATISTISCHES BUNDESAMT, 1997) sowie Daten zu mittleren Wohnungsgrößen (B) lässt sich die bewohnte Fläche pro Kreis unterteilt nach Gebäudetyp, -alter und Heizungssystem berechnen. Durch Multiplikation mit Wärmeleistungsbedarfskennziffern, die den mittleren Wärmeleistungsbedarf pro Quadratmeter (C) angeben, und der

temperaturneutralen Nutzungsdauer (D) der Heizungssysteme (PROGNOS, 1995) ergibt sich der temperaturneutrale Raumwärmebedarf (I) auf Kreisebene nach Energieträger, d. h. der Raumwärmebedarf bei einem über zehn Jahre gemittelten typischen Temperaturverlauf in Deutschland.

Der tatsächliche Energieverbrauch (J) für die Bereitstellung von Raumwärme des Haushaltssektors im Untersuchungsjahr 1994 errechnet sich aus dem Gesamtenergieverbrauch (F), der in den Energiebilanzen ausgewiesen wird, und Aufteilungsfaktoren (G) für Raum- und Prozesswärme des ARBEITSKREIS ENERGIEBILANZEN (1997). Dieser wird sich in der Regel vom Energiebedarf, der eine temperaturneutrale Nutzungsdauer voraussetzt, unterscheiden, da er den temperaturbedingten Mehr- oder Minderverbrauch im Untersuchungsjahr berücksichtigt. Aus dem Energieverbrauch und der Summe des Raumwärmebedarfs werden Abgleichsfaktoren ermittelt, mit denen der Raumwärmebedarf auf Kreisebene multipliziert wird, so dass eine Summation die Werte aus der Energiebilanz ergeben. Eine Ausnahme bei dieser Abgleichs-prozedur bildet der Einsatz von Brennholz, da in den Energiebilanzen nur der kommerzielle Holzverbrauch ausgewiesen ist und der Holzeinschlag in Privatwäldern unberücksichtigt bleibt. Eine Abschätzung dieses Anteils wird BLANK et al. (1999) entnommen. Um die innerhalb eines Bundeslandes unterschiedliche Höhenstruktur und die dadurch bedingten Unterschiede der Jahresmitteltemperaturen für die einzelnen Kreise zu berücksichtigen, wird der Energieverbrauch noch mit Klimagewichtungsfaktoren (E) für jeden Kreis multipliziert. Diese lassen sich aus der mittleren Höhe der bebauten Gebiete innerhalb eines Kreises und einem Temperaturkoeffizienten von $0,65 \text{ }^\circ\text{C}/100 \text{ m}$ (SEINFELD, 1998) ableiten. Aus dem temperaturneutralen Raumwärmebedarf auf Kreisebene (I), den Klimagewichtungsfaktoren (E) und den berechneten Abgleichsfaktoren ergibt sich der tatsächliche Energieverbrauch für Raumwärme auf Kreisebene (L).

Die Verteilung des aus den Energiebilanzen (F) und Aufteilungsfaktoren (G) ermittelten Energieverbrauchs für Prozesswärme (K) erfolgt proportional zur Einwohnerzahl (H), woraus sich der Energieverbrauch für Prozesswärme (M) auf Kreisebene ableiten lässt.

Durch Multiplikation der Menge der für Raum- und Prozesswärme eingesetzten Energieträger mit prozessbezogenen Emissionsfaktoren werden schließlich die Emissionen berechnet.

Kleinverbraucher

Der Sektor Kleinverbraucher setzt sich aus den Branchen Landwirtschaft, Gärtnereien, industrielle Kleinbetriebe, Handwerk, Baugewerbe, Gebietskörperschaften sowie privaten und öffentlichen Dienstleistungen zusammen. In der Bundesenergiebilanz sind aber nur Daten über den Energieverbrauch des gesamten Kleinverbrauchersektors ausgewiesen. Eine Aufteilung auf die einzelnen Branchen gibt eine Abschätzung von PROGNOS (1995) (Abb. 3-2). Demnach dominiert keine der hier aufgeschlüsselten Gruppen bezogen auf den Gesamtenergieverbrauch. In der Summe betrachtet ist dem Bereich der Dienstleistungen mit Handel, Banken, Versicherungen, Wäschereien, Reinigungen und sonstigen privaten Dienstleistungen etwa ein Drittel des Energieverbrauchs zuzuschreiben.

Für die Verteilung des branchenbezogenen Energieverbrauchs auf Kreisebene wird der Indikatoransatz verwendet (SEIER, 1996; siehe Abb. 3-3). Für jede Branche werden so genannte Indikatorgrößen (A) ermittelt, die auf Kreisebene vorliegen und ursächlich mit dem Energieverbrauch zusammenhängen (z. B. Beschäftigtenzahlen im Einzel- und Großhandel, Bestandszahlen der verschiedenen Vieharten für die Landwirtschaft). Diese Indikatorgrößen werden mit

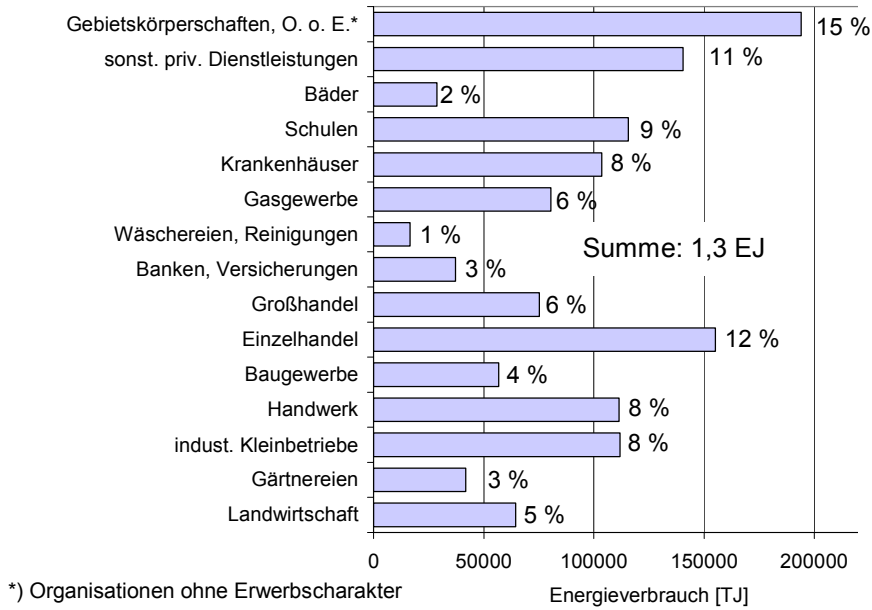


Abb. 3-2: Aufteilung des Energieverbrauchs 1994 im Kleinverbrauchersektor.

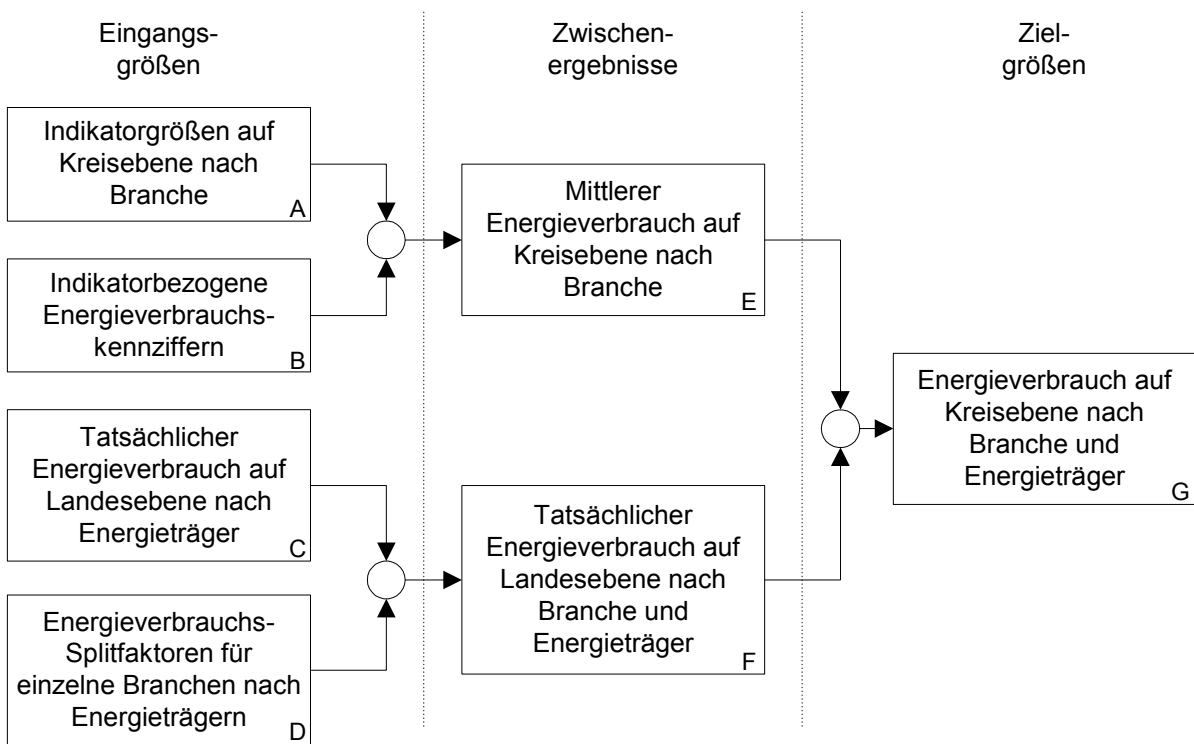


Abb. 3-3: Ermittlung des Energieverbrauchs von Kleinverbrauchern auf Kreisebene mit dem Indikatoransatz.

indikatorbezogenen Energieverbrauchskennziffern (B), die entweder aus anderen Studien vorliegen oder aus dem Gesamtenergieverbrauch errechnet werden, multipliziert, um den mittleren Energieverbrauch (E) der Branchen auf Kreisebene zu berechnen. Analog zum Haushaltssektor wird ein Abgleich (C, D) mit den Länderdaten durchgeführt, damit die Summe des Energieverbrauchs dem tatsächlichen Energieverbrauch (F) auf Landesebene für das Untersuchungsjahr

entspricht. So ergibt sich der Energieverbrauch (G) auf Kreisebene nach den einzelnen Branchen des Kleinverbrauchersektors.

Der Energieverbrauch des Militärs wird aus Angaben der Wehrbereichsverwaltungen zum Energieeinsatz in den einzelnen Dienststellen berechnet und mit der Bundesenergiebilanz abgeglichen. Die zur Berechnung der Emissionen benötigten Emissionsfaktoren werden PFEIFFER et al. (1998) entnommen.

3.2.2 Industrie

Zu den Feuerungsemissionsquellen der Industrie gehören die meisten genehmigungsbedürftigen Feuerungsanlagen, insbesondere die in der 13. BImSchV (2000) aufgeführten Großfeuerungsanlagen, sowie viele kleinere nicht genehmigungsbedürftige Anlagen.

Genehmigungsbedürftige Anlagen

Die genehmigungsbedürftigen Anlagen nehmen eine Sonderstellung bei der Ermittlung von räumlich hochaufgelösten Emissionen ein, da es sich hierbei um detailliert beschriebene Punktquellen handelt. Nach der 4. BImSchV des Bundesemissionsschutzgesetzes muss für jede Anlage, die hinsichtlich ihrer Größenklasse oder der Menge ihrer Einsatzstoffe eine bestimmte Grenze überschreitet, nach einem festgelegten Turnus (derzeit vier Jahre) eine Emissionserklärung erstellt werden. In diesen Erklärungen werden alle emissionsrelevanten Daten und Parameter eines Jahres erfasst, so dass sich ein komplettes Bild des Emissionsvorgangs ergibt (Abb. 3-4): In einem Werk eines Betriebes werden eine oder mehrere genehmigungsbedürftigen Anlagen betrieben, die sich je nach Größe und Gliederungsmöglichkeit noch in die funktionalen Untergruppen Anlagen, Anlagenteile und Nebeneinrichtungen sowie einzelne Betriebseinheiten aufteilen lassen. Der Umsatz der gehandhabten Stoffe beim emissionsverursachenden Betriebsvorgang bewirkt die Entstehung der Emissionen. Der Abgasstrom wird in eventuell installierten Abgasreinigungsanlagen gereinigt, bevor er über die Quellen, die mit einer oder mehreren Anlagen verbunden sind, abgeleitet wird. Volumenströme und Abgastemperaturen der Emissionen, die zur Berechnung der aufgrund der Fahnenüberhöhung resultierenden effektiven Emissionshöhe benötigt werden, lassen sich aus den Daten der einzelnen Anlagen gewinnen. Die in den Emissionserklärungen letztlich ausgewiesenen Emissionen sind Jahresemissionen einzelner Stoffe oder Stoffklassen, aufgeteilt nach den Aggregatzuständen flüssig, fest und gasförmig. Die Emissionsableitungssysteme sind durch Höhe, Volumenstrom, Temperatur und Geometrie des Quellaustritts charakterisiert.

Die Eignung der Emissionserklärungen für die Weiterverwendung in Emissionsmodellen ist vor allem von der Vollständigkeit („Jede Emission lässt sich einer Quelle zuordnen, jede Quelle einem Betrieb ...“) und der Qualität der Daten abhängig. Zur Berechnung der Emissionen des Jahres 1994 liegen von elf Bundesländern in Deutschland Daten aus den Emissionserklärungen vor. Diese unterscheiden sich in ihrer Qualität sehr stark voneinander, insbesondere in folgenden Punkten:

- Koordinaten: Sie fehlen ganz, sie beziehen sich nicht auf das angegebene Koordinatensystem, einzelne Ziffern der Koordinaten fehlen oder die Koordinaten stimmen nicht mit der für das Werk angegebenen Kreisnummer überein.
- Quellhöhe: Verwechslung von geodätischer und geometrischer Höhe.
- Gehandhabte Stoffe: Diese Angaben müssen in Tonnen erfolgen, werden offensichtlich

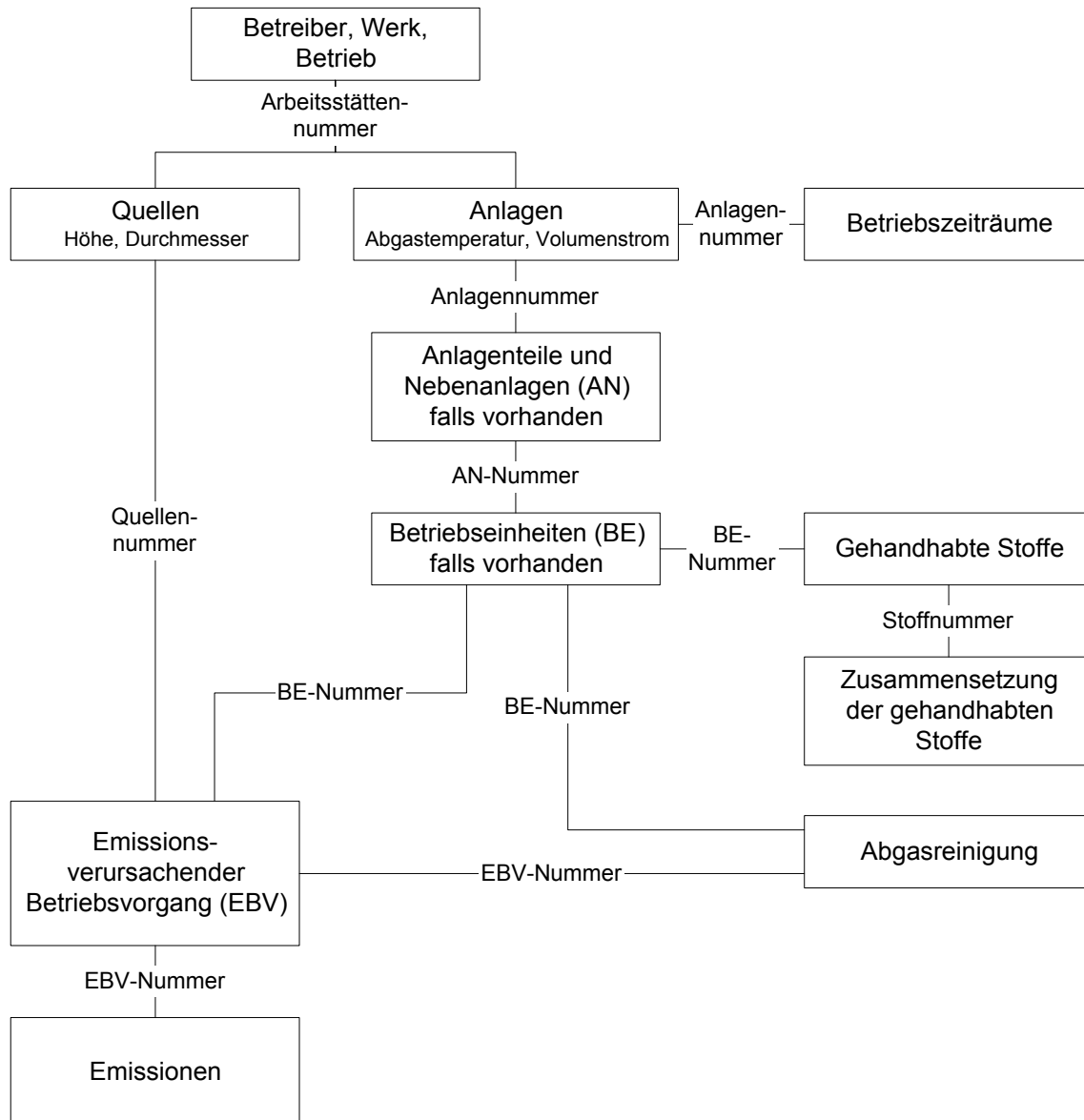


Abb. 3-4: Struktur der Emissionserklärungsdaten nach SÄCHSISCHE STAATSKANZLEI (1993).

aber auch in Litern bei flüssigen oder in Kubikmetern bei gasförmigen Energieträgern deklariert.

- Zuordnung von Emissionen zu Quellen: In einigen Fällen werden die Emissionen summarisch einer Quelle zugeordnet, die gehandhabten Stoffe dagegen über verschiedene Anlagen mehreren Quellen. Dadurch wird die Plausibilitätsprüfung der Emissionsfaktoren erheblich erschwert.

Für die Erfassung der Emissionen aus genehmigungsbedürftigen Feuerungsanlagen in Deutschland des Jahres 1994 wird auf die Datenauswertung der Emissionserklärungen von elf Bundesländern zurückgegriffen. Für die übrigen fünf Bundesländer werden Punktquellendaten aus dem CORINAIR-Emissionskataster übernommen.

Nicht genehmigungsbedürftige Anlagen

Während die Emissionserklärungen detaillierte Angaben zum Einsatz von Energieträgern und den daraus resultierenden Emissionen genehmigungsbedürftiger Anlagen enthalten, gibt es keine sichere statistische Datengrundlage zur Abschätzung der Zahl, Größe und geographischen Lage der nicht genehmigungsbedürftigen Kleinf Feuerungsanlagen. Die Emissionen dieser Kleinf Feuerungsanlagen werden daher über die Energiebilanzen der Länder als Flächenquellen ermittelt. Die hierfür eingesetzten Emissionsfaktoren werden vom Umweltbundesamt für die unterschiedlichen Energieträger und Branchen bereitgestellt (UMWELTBUNDESAMT, 1999a). In Tabelle 3-2 sind die daraus resultierenden jährlichen Emissionen zusammengefasst.

Tabelle 3-2: Feuerungsemissionen des Umwandlungssektors und des verarbeitenden Gewerbes 1994 in Deutschland vor Punktquellenabgleich

Energieträger	Emissionen [t]				
	SO ₂ [kt]	NO _x [kt]	CO [kt]	NMVOC [t]	NH ₃ [t]
Braunkohle	1570	207	115	3817	1168
Steinkohle	190	176	582	6059	234
Holz	0	1	0	283	2
sonst. feste Energieträger	32	21	5	904	1466
Heizöl leicht	15	17	3	483	456
Heizöl schwer	119	34	21	960	633
sonst. flüssige Energieträger	61	7	1	142	103
Erdgas	1	102	108	1648	207
sonst. gasförmige Energietr.	5	31	15	852	699
Summe	1993	595	850	15147	4968

Da die Angaben zum Energieeinsatz einzelner Branchen in der Energiebilanz keine Unterscheidung von genehmigungsbedürftigen und nicht genehmigungsbedürftigen Feuerungsanlagen zulassen, muss zur Vermeidung von Doppelzählungen ein Abgleich der Punkt- und Flächenquellen durchgeführt werden. Dieser erfolgt auf Ebene des Energieeinsatzes, der über die Angaben zu den eingesetzten Stoffen aus den Emissionserklärungen der Punktquellen hervorgeht. Demnach ergibt sich die in Kleinf Feuerungen eingesetzte Menge an Brennstoffen aus der Differenz des in den Länderenergiebilanzen ausgewiesenen gesamten Energieträgereinsatzes und den in den genehmigungsbedürftigen Anlagen eingesetzten Brennstoffen. Es wird vorausgesetzt, dass in Kleinf Feuerungen nur die Energieträger Kohle, Holz, Gas und leichtes Heizöl zum Einsatz kommen und dass Abweichungen bei den Angaben anderer Energieträger wie z. B. Gichtgas auf Unsicherheiten der Energiebilanzen bzw. Fehler in den Emissionserklärungen zurückzuführen sind. Aus diesem Abgleich resultiert der Energieträgereinsatz auf Länderebene für Kleinf Feuerungsanlagen, aus dem wiederum die Emissionen unter Verwendung der UBA-Emissionsfaktoren berechnet werden können. Unter der Annahme, dass die Anzahl der Kleinf Feuerungsanlagen einer Branche innerhalb eines Kreises nicht von dem Vorhandensein einer genehmigungsbedürftigen Anlage abhängt, werden diese Feuerungsemissionen über Beschäftigtenzahlen auf die einzelnen Kreise verteilt.

Für die Bundesländer, die keine Emissionserklärungsdaten von 1994 geliefert haben, werden Punktquellendaten aus der CORINAIR-Emissionsdatenbank übernommen. Allerdings ist dann ein entsprechender Punkt-Flächenquellen-Abgleich nicht möglich, da für die Punktquellen aus CORINAIR kein Energieträgereinsatz ausgewiesen ist. Ein Abgleich auf Ebene der Emissionen erscheint aufgrund der methodischen Unterschiede von CORINAIR und des hier beschriebenen Ansatzes nicht vertretbar. Daher werden für diese Länder ebenfalls die in CORINAIR ausgewiesenen Flächenquellendaten übernommen.

3.3 Emissionen aus der Lösemittelanwendung

Die Vorgehensweise zur Berechnung von Emissionen aus dem Einsatz von Lösemitteln unterscheidet sich erheblich von der Ermittlung von Feuerungsemissionen, da es keine vollständigen verlässlichen Statistiken über den Lösemittelgehalt einzelner Produkte, die Einsatzmenge der Produkte oder die Zusammensetzung der Lösemittel gibt. Die Verwendungsvielfalt von Lösemitteln ist wesentlich variabler als die von Brennstoffen und nur ein kleiner Teil der Emissionen wird in den detailliert erfassten genehmigungsbedürftigen Anlagen erzeugt.

Die Gesamtemissionen für Deutschland werden einem vom IER durchgeführten Forschungsvorhaben entnommen und zur Erhöhung der räumlichen Auflösung auf Kreisebene disaggregiert. Punktquellendaten werden den Emissionserklärungen bzw. dem CORINAIR-Kataster entnommen und mit den Flächenquellenemissionen abgeglichen. Dadurch wird ein konsistentes deutschlandweites Kataster von Lösemittlemissionen generiert.

3.3.1 Genehmigungsbedürftige Anlagen

Aufgrund der in den Emissionserklärungen angegebenen Anlagenart lässt sich für die meisten Anlagen eine grobe Aufteilung in Feuerungsemissionen, Prozessemissionen oder Emissionen aus Lösemittleinsatz treffen. Diese Einteilung wird verwendet, um die Lösemittlemissionen der genehmigungsbedürftigen Anlagen zu identifizieren.

3.3.2 Nicht genehmigungsbedürftige Anlagen

Der größte Teil der Emissionen aus der Verwendung von Lösemitteln kommt aus nicht genehmigungsbedürftigen Anlagen, wobei hierzu auch der Einsatz ohne technische Hilfsmittel, z. B. die Verwendung von Putz- und Pflegemitteln im privaten Bereich, zählt. Die Methoden zur Berechnung der Jahresemissionen für Deutschland auch ohne räumliche Disaggregation sind so komplex, dass im Rahmen dieser Arbeit auf eine erneute Berechnung verzichtet werden muss. Die Gesamtabschätzungen werden THELOKE et al. (2000) und THELOKE et al. (2001) entnommen.

Die Disaggregation der aus diesen beiden Arbeiten in SNAP-Nomenklatur vorliegenden Lösemittlemissionen für Deutschland auf Kreisebene wird wieder mit Hilfe von Indikatorindikatordaten durchgeführt. Diese umfassen nach Branchen aufgeschlüsselte Beschäftigtenzahlen, Einwohnerdaten, Anzahl der Studenten pro Universitätsstandort, Bettenzahlen in Krankenhäusern, Flugbewegungen und Landnutzungsdaten.

Ein Abgleich der so gewonnenen Flächenquellen mit den Daten aus den Punktquellen ist nicht möglich, da einerseits die in den Emissionserklärungen vorhandenen Angaben zur Einsatzmenge lösemittelhaltiger Stoffe nicht ausreichen, andererseits auch bei den Flächenquellen eine eindeutige Zuordnung von Produkt und Höhe der Lösemittlemission aufgrund der großen

Bandbreite des Lösemittelanteils (z. B. in Lacken und Farben) nicht möglich ist. Daher wird dieser Abgleich auf Ebene der Emissionen vorgenommen, d. h. die Punktquellenemissionen innerhalb eines Kreises werden von den Flächenquellen abgezogen und die Differenz als die resultierende Flächenquelle deklariert.

3.4 Prozessbedingte Emissionen

Bei den wenigen relevanten Prozessen, die zur Entstehung der Prozessemissionen beitragen, handelt es sich in der Regel um Großtechnologien (z. B. Stahlgewinnung, Zementherstellung, Raffinerien, Salpeter- und Schwefelsäureherstellung). Es kann davon ausgegangen werden, dass diese nur in genehmigungsbedürftigen Anlagen auftreten und daher durch die Emissionserklärungsdaten erfasst werden. Für die Bundesländer, die keine Emissionserklärungsdaten von 1994 zur Verfügung stellen konnten, werden wieder CORINAIR-Daten herangezogen.

3.5 Emissionen des Straßenverkehrs

Die Emissionen des Straßenverkehrs lassen sich in folgende Emissionsprozesse unterteilen:

- Abgasemissionen im betriebswarmen Zustand (Abgasemissionen)
- Verdunstungsemissionen während der Fahrt (Running Losses)
- Zusätzliche Abgasemissionen bei Kalt- bzw. Kühlstart (Kaltstartzuschlag)
- Erhöhte Verdunstungsemissionen nach Abstellen des Fahrzeugs (Hot Soak Losses)
- Verdunstungsemissionen des stehenden, nicht in Betrieb befindlichen Fahrzeugs (Diurnal Losses)
- Betankungsverluste

Für die Berechnung der Emissionen dieser Prozesse werden schon bekannte Methoden weiterentwickelt bzw. modifiziert und erstmalig für ganz Deutschland angewandt.

3.5.1 Abgasemissionen

Zur Ermittlung von Abgasemissionen kann auf vielfältige methodische Vorarbeiten zurückgegriffen werden. Für die vorliegende Untersuchung wird insbesondere die Berechnung der Fahrleistungen verbessert, da entsprechende Daten nicht im notwendigen räumlichen Detaillierungsgrad flächendeckend vorliegen.

Prinzipielles Vorgehen

Die Abgasemissionen von Fahrzeugen werden grundsätzlich nach Gleichung (2-1) berechnet, wobei als Aktivitäten Fahrleistungsdaten und als Emissionsfaktoren die Emissionen pro Fahrzeugkilometer verwendet werden. Das Emissionsverhalten einzelner Kraftfahrzeuge unterscheidet sich in Abhängigkeit von Fahrzeugparametern (Fahrzeugkategorie, Hubraumklasse, Minderungskonzept), Verkehrssituation, Streckencharakteristik (z. B. Neigungswinkel, Fahrbahnbreite) und meteorologischen Einflüssen (Temperatur, Luftdruck). Ein entsprechend hoher Detaillierungsgrad liegt zwar für Emissionsfaktoren, nicht aber für Fahrleistungsdaten in Deutschland vor. Daher werden die Emissionsfaktoren zu mittleren Emissionsfaktoren aggregiert (Abb. 3-5). Grundlage hierfür sind Häufigkeitsverteilungen von Verkehrssituationen, Steigungsklassen und Fahrleistungsanteilen der einzelnen Fahrzeugschichten.

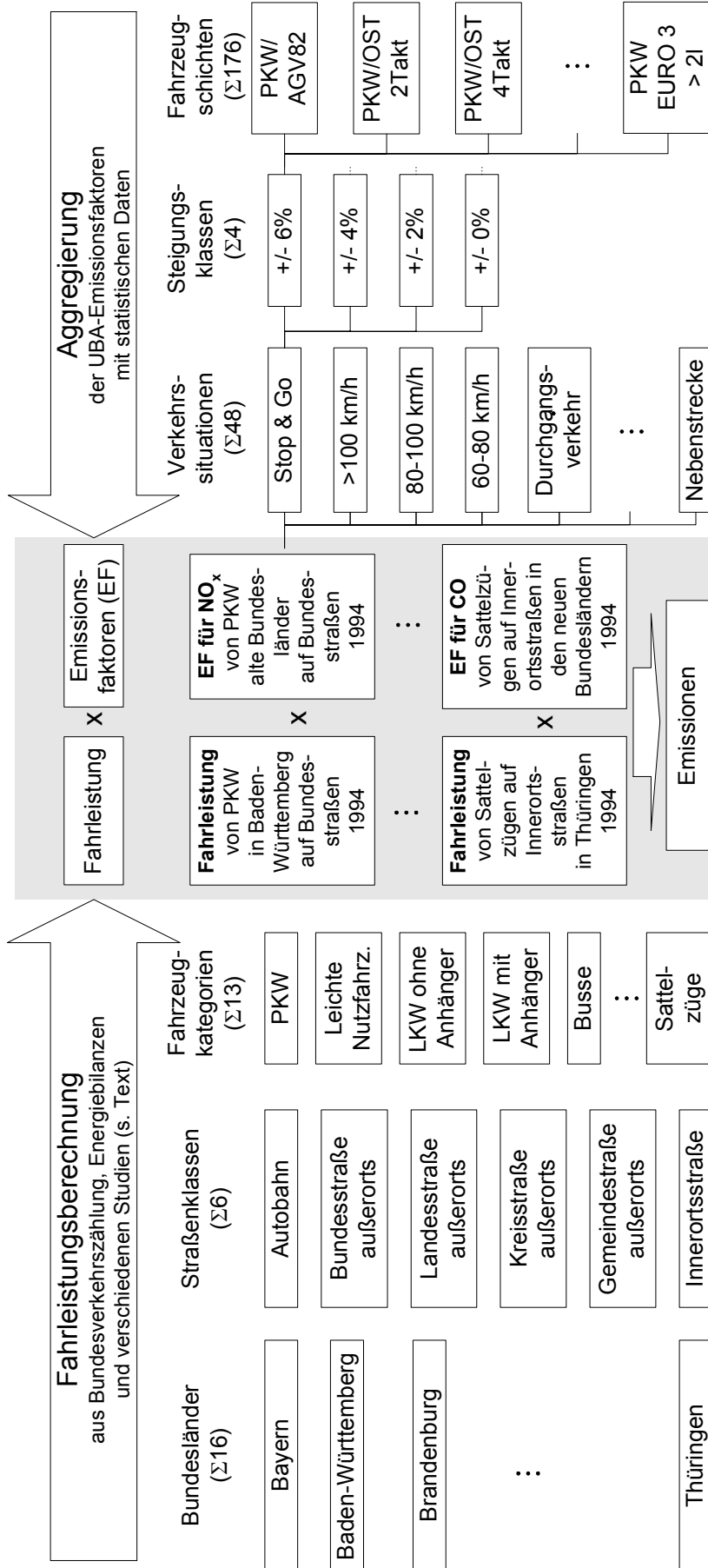


Abb. 3-5: Berechnung der Abgasemissionen in Deutschland (schematische Darstellung).

Emissionsfaktoren

Bei der Bestimmung von Abgasemissionsfaktoren für Kraftfahrzeuge besteht die grundsätzliche Schwierigkeit, dass die Emissionen sehr stark von der gerade vorherrschenden Verkehrssituation abhängig sind (z. B. Innerortsverkehr, Autobahnfahrt bei 140 km/h, Stop and Go). Zudem ist aufgrund der Vielfältigkeit dieser Situationen, die während einer Fahrt auftreten können, eine große Anzahl von Messungen auf einem Rollenprüfstand notwendig. Zur Ermittlung der Emissionsfaktoren hat sich daher folgendes weniger kostspieliges Verfahren etabliert: Zunächst werden repräsentative Fahrzeugschichten ausgewählt, das sind Kollektive von Fahrzeugen, die eine ähnliche Emissionscharakteristik aufweisen und deren Anteil an der Gesamtfahrleistung innerhalb Deutschlands nicht unerheblich ist. Die Emissionen dieser Fahrzeuge und gleichzeitig auch die beiden wesentlichen emissionsrelevanten Parameter v (Geschwindigkeit) und b (Beschleunigung) werden auf einem Rollenprüfstand für einige wenige Fahrtzyklen gemessen (z. B. US-Test-75, siehe Abb. 3-6). Aus den gewonnenen Messdaten werden Emissionsfunktionen abgeleitet, die die Abhängigkeit der Abgasemissionen von v und ($v \cdot b$) beschreiben. Daraus wiederum lassen sich die Emissionen von typischen repräsentativen Fahrmustern zusammensetzen, für die ebenfalls v und $v \cdot b$ vorliegen. Bei der Erstellung eines Emissionskatasters muss nur noch bestimmt werden, welche Fahrmuster welchen Anteil an der Gesamtfahrleistung haben, um für die einzelnen Fahrzeugschichten über alle Fahrmuster gewichtete Emissionsfaktoren zu erhalten.

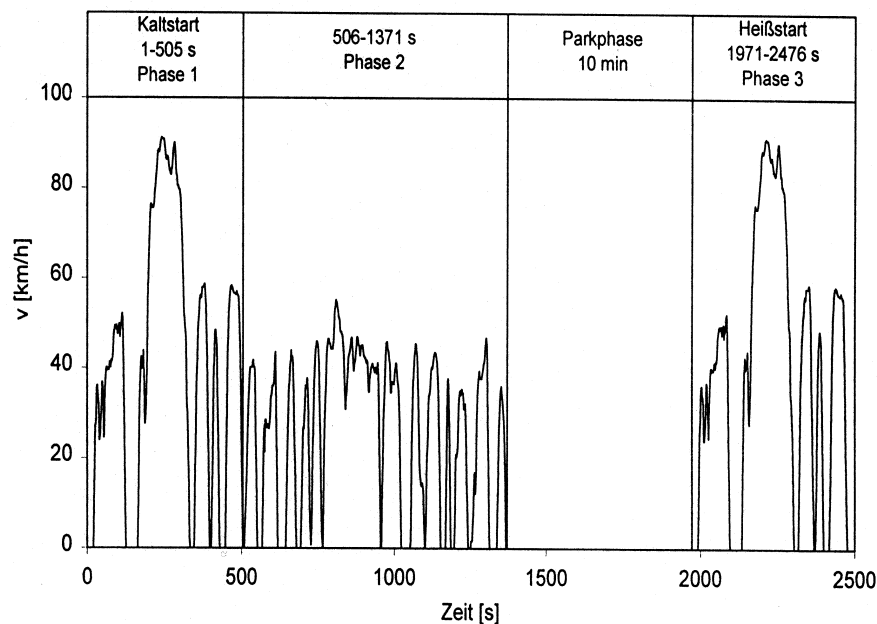


Abb. 3-6: Fahrtzyklus nach dem standardisierten US-Test-75.

In verschiedenen Untersuchungen (HASSEL et al., 1993, 1995, 1997) wurden nach oben beschriebener Methode die Emissionsfaktoren einzelner Fahrzeugschichten für ausgewählte Fahrmuster ermittelt. Die Ergebnisse sind im Handbuch Emissionsfaktoren des Umweltbundesamts („UBA-Handbuch“), einem Computerprogramm zur Berechnung von Emissionsfaktoren für Kraftfahrzeuge, zusammengestellt (UMWELTBUNDESAMT, 1999). Aus diesem Programm werden die Abgasemissionsfaktoren für mittlere Fahrmuster (innerorts, außerorts,

Autobahn) nach verschiedenen Straßenneigungsklassen sowie aus Fahrzeugbestandsdaten abgeleitete Fahrleistungsanteile übernommen.

Berechnung der Fahrleistungen

Nachdem die Emissionsfaktoren in einem geeigneten Detaillierungsgrad vorliegen, erfolgt die Bestimmung der emissionsbestimmenden Aktivität, der Fahrleistung. Hierbei kann nicht auf vorhandene Studien zurückgegriffen werden, da diese sich auf die gesamte Bundesrepublik oder auf einzelne Bundesländer beziehen und damit nicht die erforderliche räumliche Auflösung von Linienquellen aufweisen.

In Abb. 3-7 ist der Berechnungsweg zur Ermittlung der Fahrleistung getrennt nach Fahrzeugkategorien und Straßenklassen skizziert. Für die Bundesfernstraßen (Autobahnen und Bundesstraßen) wird alle fünf Jahre eine Straßenverkehrszählung (LENSING, 1997) durchgeführt, deren Ergebnis durchschnittliche tägliche Verkehrsstärken (DTV) sind, getrennt nach den Fahrzeugkategorien Pkw, motorisiertes Zweirad, Lieferwagen, Bus, Lkw mit Anhänger und Lkw ohne Anhänger für jeden Außerortsabschnitt (A). Durch Multiplikation mit der jeweiligen Straßenabschnittslänge (B) kann hieraus die Jahresfahrleistung (J) von 1995 berechnet werden. Für Landes- und Kreisstraßen wird die Bundesverkehrszählung nicht flächendeckend durchgeführt, so dass nur durchschnittliche DTV-Mengen (C) abgeleitet werden können. Hier ergibt sich die Fahrleistung (K) durch Multiplikation mit den Straßennetzlängen (D) der Bundesländer. Zur Berechnung der Fahrleistung auf Gemeindestraßen (L) dient eine Untersuchung von HAUTZINGER et al. (1994), aus der der Anteil der Fahrleistungen auf Gemeindeaußerortsstraßen am gesamten Außerortsverkehr (E) abgeleitet werden kann. Die so für das Jahr 1995 berechneten Außerortsfahrleistungen auf den verschiedenen Straßenkategorien werden über Fahrleistungszeitreihen aus BUNDESVERKEHRSMINISTERIUM (1996) auf 1994 zurückgerechnet.

Von UMWELTBUNDESAMT (1999) werden Kraftstoffverbrauchsfaktoren (F) im selben Detaillierungsgrad wie die Emissionsfaktoren zur Verfügung gestellt. Daraus lässt sich in Verbindung mit den Außerortsfahrleistungen der Kraftstoffeinsatz auf Außerortsstraßen (M) ermitteln. Die Differenz zum in der Bundesenergiebilanz (DEUTSCHES INSTITUT FÜR WIRTSCHAFTSFORSCHUNG, 1997) ausgewiesenen Kraftstoffabsatz (G) – bei vorherigem Abzug des Kraftstoffverlusts, der bei der Betankung und durch Verdunstung entsteht – ergibt den Kraftstoffeinsatz auf Innerortsstraßen (N). Daraus können schließlich die Innerortsfahrleistungen (O) berechnet werden. Die Verteilung auf die einzelnen Kreise in Deutschland (P) erfolgt nach der Einwohnerzahl mit der empirisch ermittelten Relation (I) von SCHMITZ et al. (1997), wonach die Fahrleistung in Städten proportional zu $(\text{Einwohner})^{1,0257}$ ist.

Die Ergebnisse der Fahrleistungsberechnung nach der hier beschriebenen Methode für das Jahr 1994 sind in Tabelle 3-3 dargestellt. Die größten Fahrleistungen erbringen Pkw mit etwa 560 Mio. Fzg-km (87 %), gefolgt vom Schwerlastverkehr mit zusammen knapp 50 Mio. Fzg-km (8 %). Bei den unterschiedlichen Straßenklassen haben die Fahrleistungen auf Autobahnen mit 28 % und innerorts mit 30 % etwa gleiche Anteile. Auf den übrigen Außerortsstraßen tragen die Fahrleistungen auf Bundesstraßen 16 % zu den Gesamtfahrleistungen bei, auf Landesstraßen 14 %, auf Kreisstraßen 7 % und auf Gemeindestraßen 5 %.

Es gibt nur wenige originäre Untersuchungen, die zum Vergleich der Ergebnisse dieser Fahrleistungsabschätzung herangezogen werden können. Die meisten Studien bauen auf Erhebungen des Instituts für angewandte Verkehrs- und Tourismusforschung e. V. auf, das diese Berechnungen im Auftrag der Bundesanstalt für Straßenwesen durchführt (HAUTZINGER et

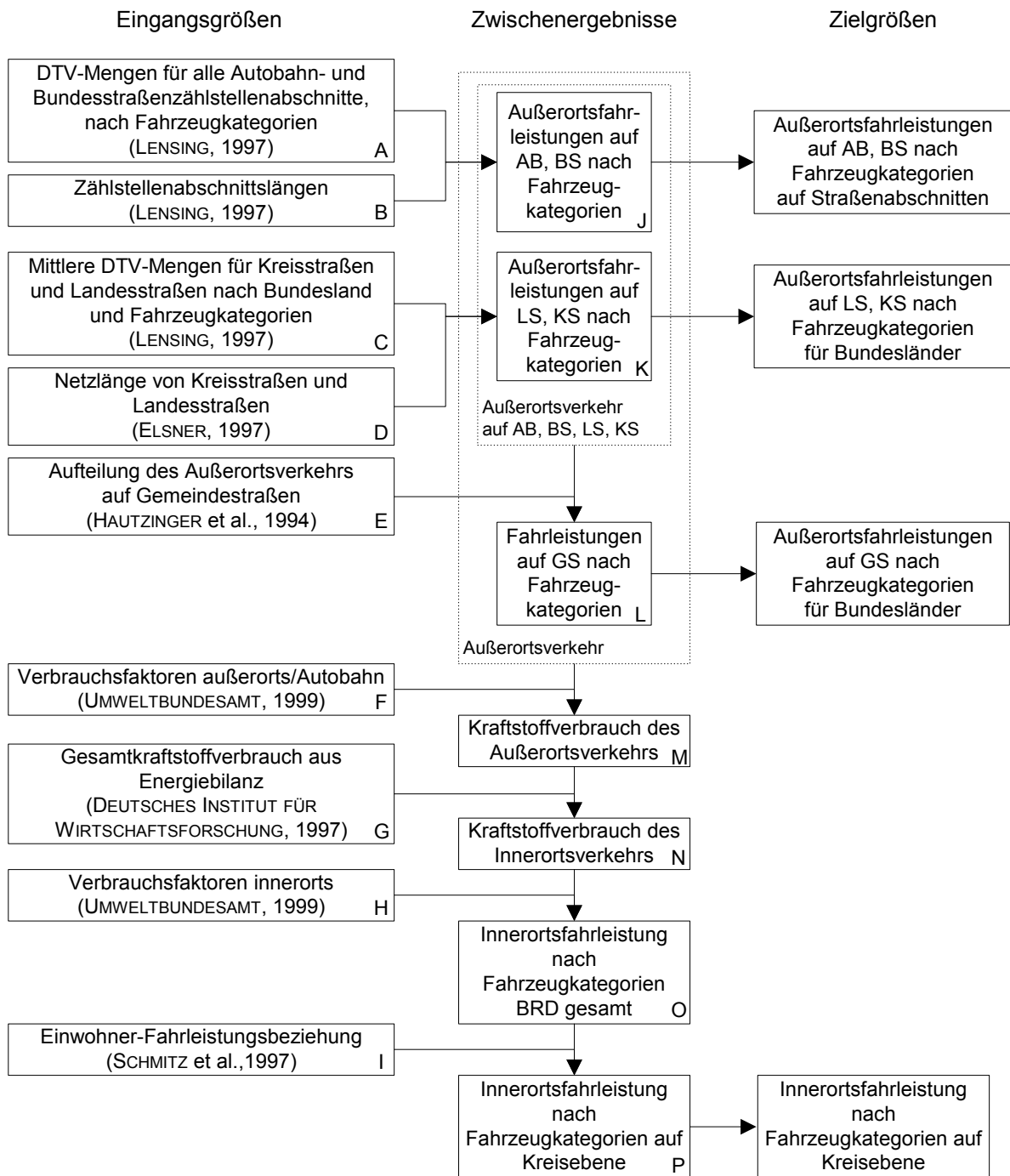


Abb. 3-7: Vereinfachte Darstellung des Berechnungsweges zur Ermittlung der Fahrleistungen in Deutschland.

al., 1994, 1996, 1996a). In HAUTZINGER et al. (1996a) wird die Gesamtfahrleistung in Deutschland für das Jahr 1993 mit 622.586 Fzg-km angegeben, wobei der wesentliche Unterschied zur hier beschriebenen Methode darin besteht, dass die Innerortsfahrleistungen über empirische Erhebungen abgeschätzt wurden und nicht über den Kraftstoffabsatz im Inland. Die Ergebnisse für die Innerortsfahrleistungen mit der hier beschriebenen Methode hängen dagegen von der Güte der in UMWELTBUNDESAMT (1999) angegebenen Kraftstoffverbrauchsfaktoren und den Daten in der Bundesenergiebilanz ab. Außerdem wird davon ausgegangen, dass der in der Energiebilanz angegebene Kraftstoffabsatz im Inland tatsächlich dem Inlandsverbrauch ent-

Tabelle 3-3: Fahrleistungen in Deutschland nach Fahrzeugkategorie und Straßenklasse 1994 in Mio. Fzg-km

Fahrzeugkategorie	außerorts					innerorts	Summe
	AB	BS	LS	KS	GS		
Mofa/Moped	-	249	485	426	252	2634	4046
Motorräder	1404	1909	1782	864	372	1235	7566
Pkw	148157	92242	78750	39672	29317	169076	557215
Busse	1238	741	682	335	222	1415	4633
Leichte Nutzfahrzeuge	5386	3272	2963	1441	1067	6485	20614
Lkw ohne Anhänger	5776	3603	2884	1408	785	4738	19193
Lkw mit Anhänger	13829	3251	1595	632	1108	3199	23615
Sattelzüge	3939	926	454	180	316	911	6727
Summe	179730	106192	89596	44959	33439	189693	643608

AB: Autobahn

BS: Bundesstraße

LS: Landes- bzw. Staatsstraße

KS: Kreisstraße

GS: Gemeindestraße

spricht. Insgesamt kann die Übereinstimmung unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Bezugsjahre und der verschiedenen Berechnungsmethoden als zufriedenstellend bezeichnet werden.

3.5.2 Kaltstartemissionen

Beim Start eines Fahrzeugs entstehen Emissionen, die sich in der Regel von den Emissionen nach vollständigem Erreichen der Betriebstemperatur von Motor und Abgassystem unterscheiden, die so genannten Kaltstartemissionen. Die Differenz zwischen Kaltstartemission und Warmbetriebsemission wird als Kaltstartzuschlag bezeichnet. Je nach Antriebsart und Abgasminderungstechnik hat der Kaltstartzuschlag unterschiedliche Ursachen. Bei Katalysatorfahrzeugen sind die Emissionen von CO, NO_x und VOC bei Fahrtbeginn zunächst höher, weil der Katalysator erst nach einer Aufheizphase seine vollständige Funktionsfähigkeit erreicht. Darüber hinaus sind kurz nach dem Start Motor und Brennkammerwände noch nicht aufgeheizt, was eine unvollständige Verbrennung und damit höhere Emissionen von CO und VOC zur Folge hat. Negative Kaltstartzuschläge sind bei den NO_x-Emissionen von Otto-Fahrzeugen ohne Katalysator zu beobachten, da hier die anfangs niedrigere Verbrennungstemperatur zu einer geringeren Bildung von NO_x aus dem Luftstickstoff führt.

Die hier verwendete Methode zur Berechnung der Kaltstartemissionen fußt auf der Datenbank von Kaltstartemissionsfaktoren im UBA-Handbuch sowie dem in JOHN (1999) beschriebenen Vorgehen. Eine wesentliche Erweiterung stellen die Einbeziehung neuer Kaltstartfaktoren aus SONNBORN et al. (1998) sowie die Verwendung stündlicher Temperaturdaten unter Einbeziehung des städtischen Wärmeineffekts für die gesamte Bundesrepublik dar. Zur besseren Einordnung der so erzielten Verbesserungen wird im Folgenden auf den Modellablauf näher eingegangen.

Determinanten der Kaltstartemissionen

Vom TÜV Rheinland (HASSEL et al., 1993) wurden Kaltstartzuschläge aus der Differenz der Emissionen einzelner Fahrzeugschichten von Phase I und Phase III beim Durchfahren des US-Test-75 (siehe Abb. 3-6) gemessen. Über geeignete Faktoren wurden diese Emissionen auf die übrigen Fahrzeugschichten und auf Fahrmuster, die typisch für verschiedene Verkehrssituationen in Deutschland sind, übertragen. Im UBA-Handbuch wird von diesen Messwerten ausgegangen, um für das Jahr 1994 für 37 Fahrzeugschichten (Pkw und Leichte Nutzfahrzeuge) Kaltstartzuschläge zur Verfügung zu stellen. Die Basisfahrmuster werden unterschiedlich gewichtet zu einem mittleren Innerorts-Kaltstart-Fahrmuster kombiniert. Die Gewichtungsfaktoren für die Fahrmuster gehen auf eine Untersuchung von PALM et al. (1994) zurück.

Der Kaltstartzuschlag eines Fahrzeugs hängt ab von

- Fahrzeugschicht (Hubraum, Antriebsart, Minderungstechnik),
- Außentemperatur,
- gefahrener Strecke nach dem Start,
- gefahrenem Fahrmuster und
- Standzeit vor dem Start.

Um einen Überblick über die Größenordnung der Kaltstartzuschläge zu erhalten, sind in Tabelle 3-4 durchschnittliche Kaltstartzuschläge den mittleren innerörtlichen Abgasemissio-

Tabelle 3-4: Gegenüberstellung von Pkw-Kaltstartzuschlägen und Warmemissionen nach UMWELTBUNDESAMT (1999)

Minderungskonzept	Kaltstartzuschlag			Warmemission innerorts		
	[g/Start]			[g/km]		
	CO	VOC	NO _x	CO	VOC	NO _x
Otto konventionell	41,74	6,45	-0,13	11,68	1,74	1,59
Otto G-Kat vor 1991	33,80	3,80	1,13	2,21	0,22	0,34
Otto G-Kat EURO1	17,83	2,16	0,79	1,62	0,11	0,28
Otto 2-Takt Ost	56,59	40,96	-0,06	15,71	11,12	0,81
Diesel konventionell	0,55	0,26	0,10	0,67	0,14	0,66
Diesel gemindert	0,52	0,18	0,10	0,63	0,09	0,65

nen für Pkw mit verschiedenen Antriebs- und Minderungskonzepten gegenübergestellt. Die Kaltstartzuschläge von NO_x sind für konventionelle Pkw mit Ottomotor ohne Katalysator negativ, d. h. die Emissionen liegen innerhalb der ersten Kilometer nach dem Start unter denen eines warmgelaufenen Motors, was auf die niedrigeren Verbrennungstemperaturen in der Brennkammer während der Startphase zurückzuführen ist. Nur die NO_x-Kaltstartzuschläge von Fahrzeugen mit Katalysator liegen über den innerörtlichen Warmbetriebsemissionen. Dieselfahrzeuge weisen generell eher geringere Kaltstartzuschläge als die anderen Fahrzeugkonzepte auf.

Die vom UBA-Handbuch berechnete Abhängigkeit der Kaltstartzuschläge von der Fahrtstrecke nach dem Start ist in Abb. 3-8 für Otto-Pkw mit und ohne Katalysator dargestellt. Diese beiden Fahrzeugklassen hatten 1994 mit 63,5 % den größten Anteil an den Pkw-Gesamtfahrleistungen. Auffallend ist vor allem der zunächst ansteigende und nach dem zweiten Kilometer

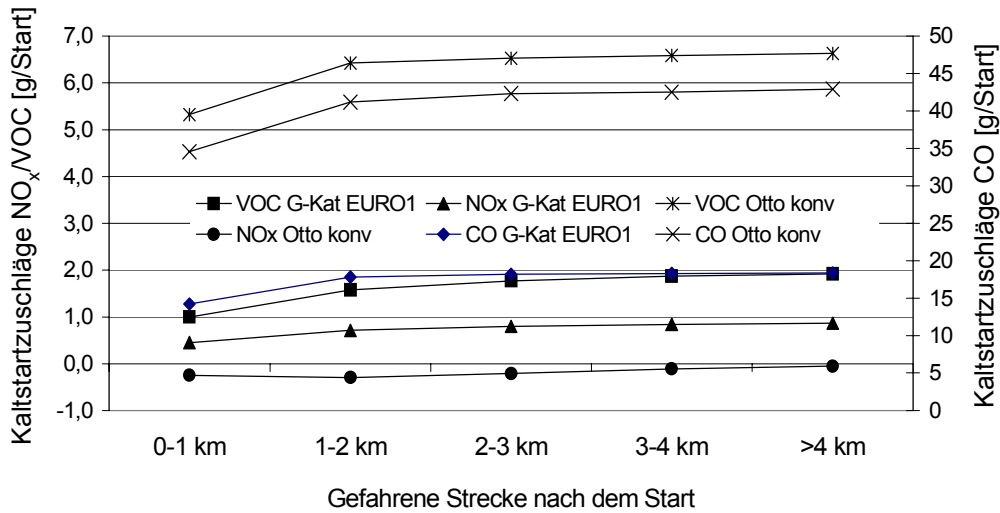


Abb. 3-8: Abhängigkeit der Kaltstartemissionen von der gefahrenen Strecke. Gezeigt wird das Verhältnis der Kaltstartzuschläge nach verschiedenen Fahrtstrecken zu den Kaltstartzuschlägen innerhalb des ersten Kilometers für Otto-Pkw mit und ohne Katalysator bei einer Außentemperatur von 10 °C.

abfallende Verlauf der NO_x-Emissionen bei den Fahrzeugen ohne Katalysator. Der Verlauf von VOC- und CO-Emissionen ist dagegen bei beiden Fahrzeugkonzepten sehr ähnlich.

Die Verteilung der verschiedenen Fahrtstreckenlängen von Pkw wird in UMWELTBUNDESAMT (1995) angegeben (Abb. 3-9). Für Lkw, Busse, Sattelzüge und leichte Nutzfahrzeuge wird angenommen, dass jede Fahrt mehr als 8 km beträgt.

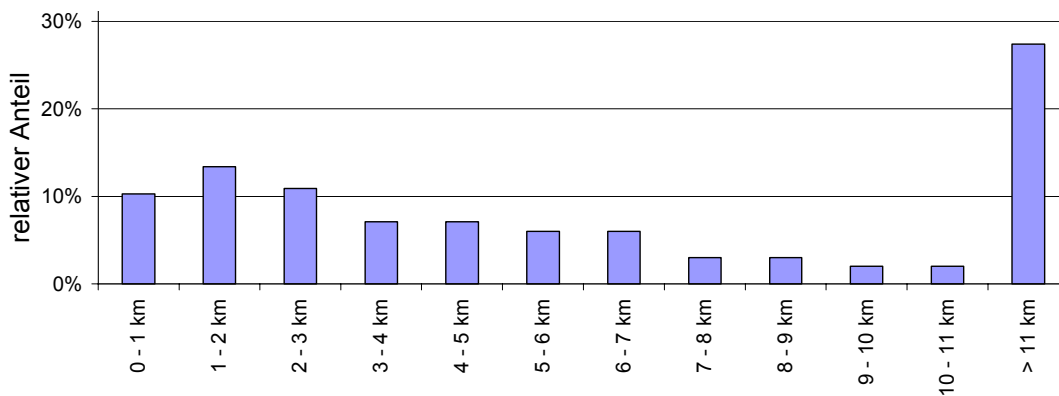


Abb. 3-9: Fahrtlängenverteilung von Pkw in der Bundesrepublik nach UMWELTBUNDESAMT (1995).

Abb. 3-10 zeigt die Abhängigkeit der Kaltstartzuschläge von der Außentemperatur, am Beispiel von Pkw mit und ohne Katalysator. Aus der Abbildung wird deutlich, dass alle drei Schadstoffkomponenten eine starke Abhängigkeit von der Umgebungstemperatur aufweisen. Diese muss daher bei der Erstellung zeitlich hochaufgelöster Emissionskataster berücksichtigt werden.

Schließlich wird in Abb. 3-11 noch die Abhängigkeit von der Standzeit vor dem Start dargestellt. Wird ein Fahrzeug weniger als 8 Stunden vor dem Neustart gefahren, so kann davon ausgegangen werden, dass es noch nicht vollständig abgekühlt ist. Deswegen wird in Abb. 3-11 eine maximale Standzeit von 8 Stunden betrachtet. Nur bei den NO_x-Emissionen des

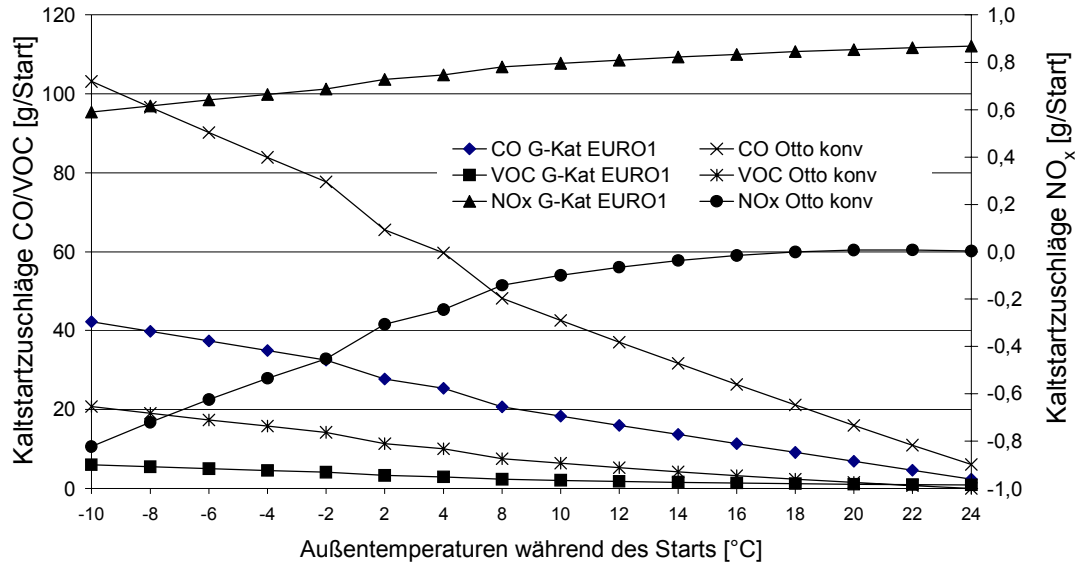


Abb. 3-10: Kaltstartzuschläge bei verschiedenen Außentemperaturen von Otto-Pkw mit und ohne Katalysator. Auf der linken Ordinate sind die Kaltstartzuschläge von CO und VOC aufgetragen, auf der rechten die von NO_x .

Otto-Pkw ohne Katalysator sinken die Emissionen mit zunehmender Standzeit, da in einem abgekühlten Fahrzeug beim Start aufgrund geringerer Verbrennungstemperaturen auch weniger NO_x gebildet wird. In JOHN (1999) werden Daten von WEISSBARTH et al. (1992) ausgewertet

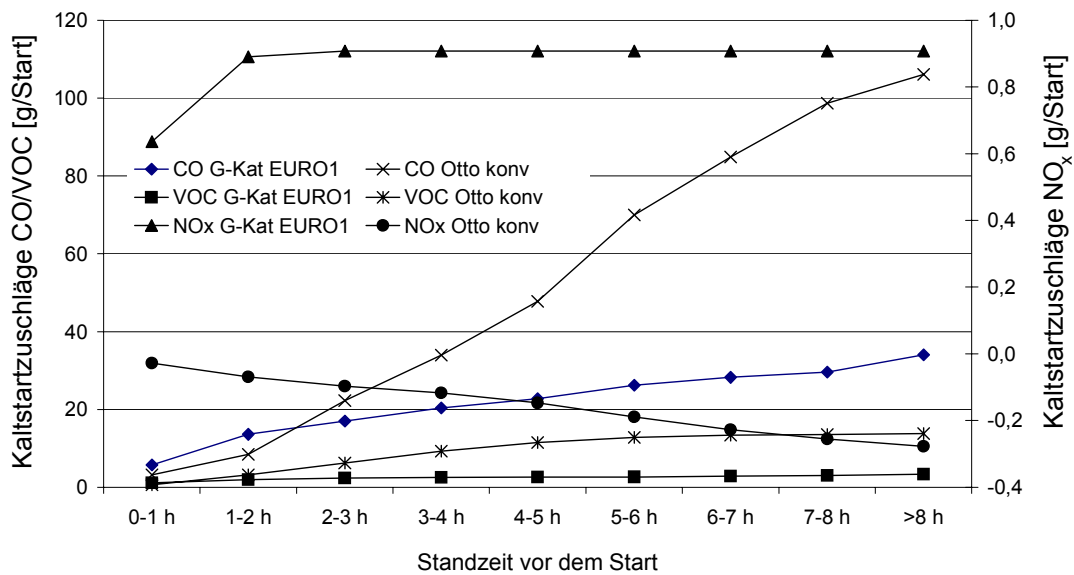


Abb. 3-11: Kaltstartzuschläge nach verschiedenen Standzeiten vor dem Start für Otto-Pkw mit und ohne Katalysator. Auf der linken Ordinate sind die Kaltstartzuschläge von CO und VOC aufgetragen, auf der rechten die von NO_x .

und eine mittlere Standzeitverteilung im Tagesverlauf ermittelt, die den Emissionsberechnungen zugrunde gelegt werden.

Verbesserung der Berechnungsmethode

In der Untersuchung von HASSEL et al. (1993), die die Basis der Kaltstartfaktoren aus dem UBA-Handbuch bildet, wurden Kaltstartzuschläge nur auf Basis des Fahrzyklus US-Test-75 berechnet. Um die Kaltstartzuschläge auf andere Fahrmuster zu übertragen, wird dort vorgeschlagen, diese Zuschläge mit so genannten Schichtfaktoren, die aus dem Verhältnis der Warmemissionen für die einzelnen Fahrmuster und dem US-Test-75 ermittelt werden, zu multiplizieren. Dabei wird allerdings davon ausgegangen, dass die Kaltstartphase bei allen Fahrmustern eine gleiche Länge aufweist, was aufgrund der unterschiedlichen Motorbelastung in den einzelnen Basisfahrmustern nicht gegeben sein muss. In einer neueren Untersuchung (SONNBORN et al., 1998) wird dagegen durch Unterteilung der aus dem US-Test-75 gewonnenen Messdaten die Korrelation zwischen der während eines Zeitabschnitts geleisteten Arbeit des Motors und den in dieser Zeit auftretenden Mehremissionen des Kaltstarts ermittelt. Mit den so gewonnenen, von der Motorlast abhängigen Kaltstartemissionen werden schließlich die für Deutschland repräsentativen Fahrmuster (BARRTET et al., 1994) zusammengesetzt und der jeweilige Kaltstartzuschlag in Abhängigkeit von der gefahrenen Strecke berechnet.

Abb. 3-12 zeigt diese neuen vom TÜV berechneten Kaltstartzuschläge von CO für verschiedene Fahrmuster (UMWELTBUNDESAMT, 1995a) in Abhängigkeit von der nach dem Start

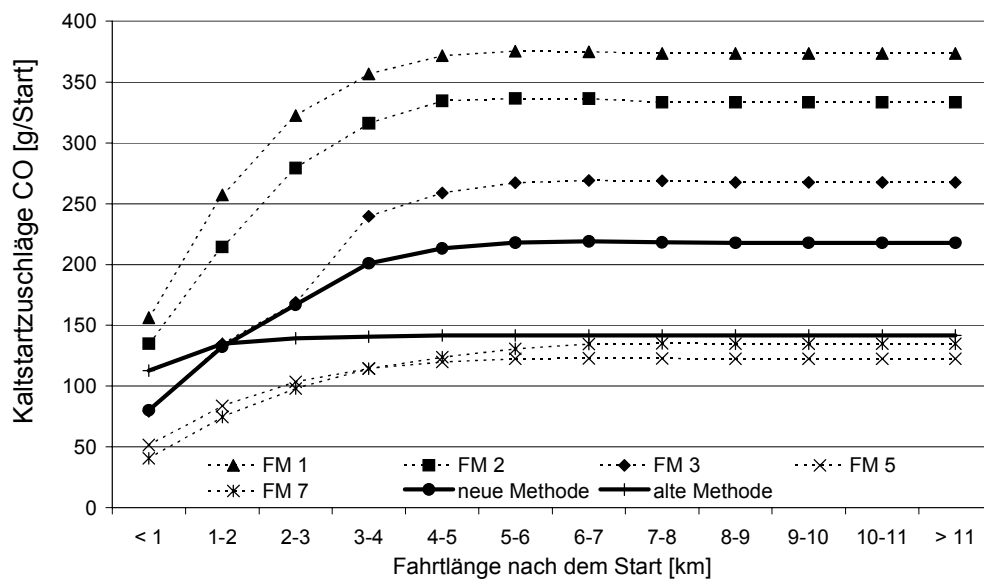


Abb. 3-12: Kaltstartzuschläge bei 5 °C von Otto-Pkw ohne Katalysator (1,4 – 2 l). Angegeben sind die Zuschläge für verschiedene Fahrmuster (Umweltbundesamt, 1995a) nach der TÜV-Methode und gemittelte Emissionen für das Kaltstart-Innerorts-Fahrmuster nach neuer und alter Methode.

gefahrenen Strecke. Der Kurve, die sich aus der neuen Methode ergibt, liegt das aus den Basisfahrmustern ermittelte mittlere Kaltstart-Innerorts-Fahrmuster von Pkw aus UMWELTBUNDESAMT (1999) zugrunde. Ihr werden die nach der alten Methode berechneten mittleren Kaltstartzuschläge des UBA-Handbuchs gegenübergestellt.

Während nach der neuen Methode die Kaltstartzuschläge innerhalb des ersten Kilometers nach dem Start noch unterhalb der nach der alten Methode berechneten Emissionen liegen, ergibt sich für Fahrten, die länger als 2 km sind, eine deutliche Erhöhung. Um diesem Resultat bei der Emissionsberechnung für Deutschland Rechnung zu tragen, werden über die Fahrtstre-

ckenverteilung gewichtete Korrekturfaktoren für die in SONNBORN et al. (1998) betrachteten Fahrzeugschichten ermittelt und auf alle anderen Fahrzeugschichten übertragen. Für NO_x -Emissionen und für Diesel-Pkw wird dieses Verfahren allerdings nicht angewendet, da nur eine geringe Korrelation von Lastzustand und Kaltstartemissionen festzustellen war. Wie in SONNBORN et al. (1998) vorgeschlagen, werden in diesen Fällen weiterhin die Kaltstart-Emissionsfaktoren aus dem UBA-Handbuch verwendet.

Tabelle 3-5 zeigt die für CO und VOC gewonnenen Korrekturfaktoren für die drei angegebenen Temperaturstützstellen. Offensichtlich werden die Kaltstartemissionen durch die An-

Tabelle 3-5: Korrekturfaktoren für die Kaltstartemissionsberechnung bei Pkw

	CO			VOC		
	- 10	5	20	- 10	5	20
Pkw/Benzin/ECE 15'04 <1,4 l	1,84	1,65	2,16	1,48	1,81	2,90
Pkw/Benzin/ECE 15'04 1,4 – 2 l	1,08	0,95	1,24	1,02	1,25	1,98
Pkw/Benzin/ECE 15'04 >2 l	2,26	2,09	2,74	1,84	2,26	3,70
Pkw/Benzin/GKat 87 – 90 <1,4 l	1,33	1,26	1,26	1,29	1,25	1,29
Pkw/Benzin/GKat 87 – 90 1,4 – 2 l	1,13	1,07	1,06	1,11	1,07	1,11
Pkw/Benzin/GKat 87 – 90 >2 l	1,87	1,78	1,79	1,41	1,36	1,41
Pkw/Benzin/GKat vor 87	0,86	0,82	0,82	0,82	0,79	0,82

wendung der Kaltstartzuschläge des UBA-Handbuchs außer bei Pkw mit Katalysator vor 1987 unterschätzt. Dadurch liegen in der Summe die CO-Emissionen für das Jahr 1994 um 40 % über denen, die mit der alten Methode berechnet werden, die VOC-Emissionen sogar um 43 %.

Zum Einsatz im Emissionsmodell werden die Emissionen der übrigen Temperaturbereiche durch eine polynomiale Regressionsfunktion zweiten Grades bestimmt. Die Korrekturfaktoren für die übrigen Fahrzeugschichten werden analog der Zuordnung des UBA-Handbuchs durchgeführt. Zu den Kaltstartemissionen von Bussen und Lkw werden im UBA-Handbuch keine Angaben gemacht. Um eine untere Grenze der Emissionen abschätzen zu können, wird angenommen, dass die Kaltstartzuschläge mindestens den Kaltstartemissionen von Leichten Nutzfahrzeugen mit Dieselantrieb entsprechen. Weiterhin wird für die Ermittlung der Korrekturfaktoren von Bussen und Lkw unterstellt, dass jedes Fahrzeug mehr als 8 km Fahrtstrecke nach dem Start zurücklegt, wodurch diese Faktoren höher liegen als die von Pkw.

Eine für die konkrete Berechnung der Kaltstartemissionen notwendige Abschätzung der Startvorgänge pro gefahrenem Fahrzeugkilometer für Pkw, leichte Nutzfahrzeuge und Motorräder wird JOHN (1999) entnommen. Eine Ergänzung dieser Daten erfolgt durch eigene Abschätzungen für Lkw, Busse und Sattelzüge.

Tabelle 3-6: Anzahl der Starts von Pkw, Lkw, Bussen, Sattelzügen, leichten Nutzfahrzeugen und Motorrädern

	Pkw	Motorräder	leichte Nfz	Lkw	Busse	Sattelzüge
Zahl der Starts pro km	0,059	0,024	0,038	0,046	0,047	0,011

Zusammenfassung der Kaltstartemissionsberechnung

Mit den nach obiger Methode ermittelten Kaltstartemissionsfaktoren können die Kaltstartemissionen für jede Stunde nach folgender Gleichung berechnet werden:

$$E_{f,h} = \sum_l \sum_t e_{f,t,l}(T_h) \cdot \eta_{t,h,f} \cdot \gamma_h \cdot g_f \cdot c_f \cdot \lambda_l \quad (3-1)$$

$E_{f,h}$	Kaltstartzuschlag von Fahrzeugschicht f zur Stunde h in [g]
$e_{f,t,l}(T_h)$	Kaltstartemissionsfaktor von Fahrzeugschicht f für Fahrtstrecke l und Standzeit t in [g/km] abhängig von der Außentemperatur T zur Stunde h
t	Standzeit in [min]
l	Fahrlänge
f	Fahrzeugschicht
T_h	Temperatur zur Stunde h
λ_l	Anteil der Fahrlänge l aus der Fahrlängenverteilung
$\eta_{t,h,f}$	Anteil der Standzeit t zur Stunde h für Fahrzeugschicht f
γ_h	Anteil der Fahrleistung zur Stunde h an der Gesamtjahresfahrleistung
g	Jahresfahrleistung der Fahrzeugschicht f in [Fzg-km]
c	Anzahl der Starts von Fahrzeugschicht f pro [Fzg-km]
h	Stunde des Tages (1 bis 24)

Für die Berechnung aller Kaltstartemissionen für Deutschland ist wegen der starken Abhängigkeit von der Außentemperatur einerseits und der regionalen Temperaturunterschiede andererseits eine Modellierung auf Kreisebene sinnvoll. Dazu werden die in Kapitel 3.5.1 für Deutschland berechneten Fahrleistungen mit Hilfe der Formel von SCHMITZ (1997) auf die Kreise verteilt und dann Gleichung (3-1) für jeden Kreis, jede Fahrzeugschicht und jede Stunde des Jahres ausgeführt. Es ist davon auszugehen, dass der überwiegende Teil der Kaltstartemissionen innerhalb besiedelter Gebiete verursacht wird. Deshalb muss bei der Berechnung der Emissionen mit Gleichung (3-1) der so genannte Wärmeinseleffekt und die Höhenabhängigkeit der Temperatur berücksichtigt werden (siehe folgendes Kapitel).

3.5.3 Tankatmung (Diurnal Losses)

Bei nicht im Betrieb befindlichen Fahrzeugen entstehen durch Aufheizung und Abkühlung des Kraftstoffs im Kraftstofftank aufgrund äußerer Witterungseinflüsse Druckunterschiede, die durch Ventile ausgeglichen werden. Bei Fahrzeugen mit Katalysator findet der Druckausgleich über ein Aktivkohlefiltersystem statt, das die Kohlenwasserstoffemissionen erheblich reduziert. Emissionen aus Dieselfahrzeugen können aufgrund des niedrigen Dampfdrucks von Diesel vernachlässigt werden.

Die hier entwickelte Methode ist eine leichte Modifikation von OBERMEIER (1995) und wird erstmals für ganz Deutschland angewandt.

Berechnungsmethode

Verschiedene Messprogramme (HEINE et al., 1989; HEINE, 1993) enthalten Angaben zu den Emissionen von Kraftfahrzeugen mit Ottomotor in Abhängigkeit von der Temperaturerhöhung im Kraftstofftank. Die Messergebnisse sind in folgender Gleichung zusammengefasst:

$$E_{15} = A \cdot (1 - e^{-B \cdot \Delta T}) + C \quad \text{für } \Delta T > 0 \quad (3-2)$$

E_{15} Emissionen pro Fahrzeug in [g] bei einer Temperaturerhöhung des Kraftstoffs um ΔT ausgehend von 15 °C

ΔT Temperaturerhöhung in [K]

A, B, C Regressionsparameter:

	A	B	C
mit Aktivkohlefiltersystem	-0,229	-0,1420	0,0313
ohne Aktivkohlefiltersystem	-10,499	-0,0875	0,0911

Gleichung (3-2) gilt allerdings nur bei einer Ausgangstemperatur von 15 °C. Um die Emissionen bei beliebigen Temperaturen zu berechnen, muss die Gleichung mit dem Verhältnis des Dampfdrucks bei der betrachteten Temperatur zum Dampfdruck unter Messbedingungen multipliziert werden (Gleichung (3-3)). Die in dieser Gleichung auftretenden Dampfdruckparameter für Sommer- und Winterbenzin müssen bei der Emissionsberechnung entsprechend den Jahreszeiten berücksichtigt werden.

$$E_T = E_{15} \cdot k = E_{15} \frac{a(e^{bT} + e^{b(T+\Delta T)})}{a_o(e^{b_o T_o} + e^{b_o(T_{15} + \Delta T)})} \quad \text{für } \Delta T > 0 \quad (3-3)$$

E_T Emissionen pro Fahrzeug in [g] bei einer Temperaturerhöhung des Kraftstoffs um ΔT ausgehend von Ausgangstemperatur T

k Dampfdruckkorrekturfaktor

T Ausgangstemperatur

ΔT Temperaturerhöhung des Kraftstoffs in [K]

T_{15} 288,15 K (15 °C)

E_{15} Emissionen unter Laborbedingungen aus Gleichung (3-2)

a, a_o, b, b_o Dampfdruckparameter:

	a	b
Sommerbenzin	0,3003	0,0248
Winterbenzin	0,0402	0,0320
Messung (a_o, b_o)	0,2643	0,0254

Die Faktoren von Sommerbenzin werden für den Zeitraum vom 15. April bis zum 15. September eingesetzt, die von Winterbenzin für den Rest des Jahres.

Ermittlung der Temperaturen auf Kreisebene

Mit Gleichung (3-3) können unter Verwendung auf Kreisebene vorliegender Kfz-Bestände und von Temperaturdaten für diese Kreise Verdunstungsemissionen für jede Stunde des Jahres berechnet werden. Der Kraftfahrzeugbestand wird dabei tagsüber um den Anteil der in Betrieb befindlichen Fahrzeuge (7 % nach OBERMEIER, 1995) verringert.

Die in Gleichung (3-3) verwendete Temperatur entspricht der des Kraftstoffs im Kraftstoffbehälter. Um diese Temperatur aus stündlichen Außentemperaturmessungen von Wetterstationen zu ermitteln, sind folgende Punkte zu beachten:

- Da Deutschland zum Teil eine ausgeprägte Höhenstruktur aufweist, muss die höhenabhängige Schichtung der Temperaturen berücksichtigt werden, wenn Temperaturen in besiedelten Gebieten von entfernt liegenden Messstationsdaten abgeleitet werden sollen.
- Es kann angenommen werden, dass ein Großteil der Tankatmung aus nicht im Betrieb befindlichen Kraftfahrzeugen innerhalb von Ortschaften entsteht. Aufgrund des „Wärmeinseleffekts“ liegt die Lufttemperatur in städtisch geprägten Gebieten über der außerhalb gemessenen.
- Die Kraftstofftemperatur folgt etwa mit einer Verzögerung von ca. 3 – 4 Stunden der Außentemperatur.

Die Zuordnung der 446 Kreise (Gebietsstand 1994) in Deutschland zu 21 Temperaturmessstationen erfolgt nach Auswertung von räumlich hochaufgelösten Daten zur mittleren Jahrestemperatur (DEUTSCHER WETTERDIENST, 1998) sowie Untersuchungen zur Klimazonenaufteilung in Deutschland (FORTAK 1986, PIEHL 1980).

Zur Berücksichtigung der höhenabhängigen Temperaturschichtung wird unter Verwendung von digitalen Höhen- und Landnutzungsdaten die mittlere Höhe der bebauten Gebiete in jedem Kreis berechnet. Die Temperaturdifferenz zwischen Kreis und Messstation ergibt sich aus der Höhendifferenz und einem Temperaturkoeffizienten von $k_T = 0,65 \text{ °C}/100 \text{ m}$ (SEINFELD 1998).

Mit Daten zum zeitlichen Verlauf von mittleren Temperaturtagesgängen in freier Tallage, Stadtrand sowie kleinem und großem Stadtkern wird in EDMONDS (1978) der Wärmeinseleffekt untersucht. Es zeigt sich, dass während des für die Tankatmung relevanten Temperaturanstiegs in bebautem Gebiet eine um im Mittel $0,9 \text{ °C}$ höhere Temperatur herrscht als im Freiland. Diese Temperaturerhöhung wird bei der Verwendung von Daten außerhalb geschlossener Ortschaften liegender Messstationen einbezogen.

Somit ergibt sich für die Berechnung der stündlichen Emissionen eines stehenden Kraftfahrzeugs:

$$E_i = (A \cdot (1 - e^{-B \cdot (T_{i-3} - T_{i-4})}) + C) \cdot k \quad \text{für } T_{i-4} > T_{i-3} \quad (3-4)$$

$$T_i = T_{s,i} + \Delta h \cdot 0,65 + \vartheta$$

E_i	Emissionen pro Fahrzeug in [g] zur Stunde i
T_i	Temperatur in der Umgebungsluft des Fahrzeugs
$T_{s,i}$	Temperatur an der dem Kreis zugeordneten Messstation
Δh	Höhendifferenz von Station und Kreis
ϑ	$0,9 \text{ °C}$, Korrekturfaktor für den Wärmeinseleffekt, falls die Messstation nicht innerhalb einer größeren Stadt liegt
A, B, C	Regressionsparameter, siehe Gleichung (3-2)
k	Dampfdruckkorrekturfaktor, siehe Gleichung (3-3)

Fahrzeugbestandsdaten, die in Verbindung mit Gleichung (3-4) zur Ermittlung der Emissionen auf Kreisebene herangezogen werden können, liefert z. B. KRAFTFAHRT-BUNDESAMT (1994).

Vergleich mit anderen Berechnungsmethoden

In OBERMEIER (1995) wird ein Verfahren angegeben, das sich nur auf die Untersuchungen von HEINE (1987) bezieht. Es wird dort eine vereinfachte Form von Gleichung (3-4) für Fahrzeuge ohne Aktivkohlefilter angegeben:

$$E_i = m \cdot (T_{i-3} - T_{i-4}) \cdot a \cdot e^{b \cdot \frac{(T_{i-3} + T_{i-4})}{2}} \quad \text{für } T_{i-4} > T_{i-3} \quad (3-5)$$

E_i	Emission eines Fahrzeugs in [g/h] während der Stunde i
T_{i-3}	Lufttemperatur in Kelvin zur Stunde $i - 3$
T_{i-4}	Lufttemperatur in Kelvin zur Stunde $i - 4$
m	Empirischer Faktor: 0,002895
a, b	Dampfdruckparameter, siehe Gleichung (3-3)

Für Fahrzeuge mit Aktivkohlefilter wird eine um 90 % verminderte Emission vorausgesetzt.

Das UBA-Handbuch gibt saisonale Tankatmungsemissionsfaktoren für Fahrzeuge mit und ohne Aktivkohlefilter an (Tabelle 3-7). Die Unterschiede der nach den drei Methoden (die-

Tabelle 3-7: Emissionsfaktoren zur Berechnung der Tankatmung aus UMWELTBUNDESAMT (1999)

Minderungskonzept	Emissionen [g/(Fahrzeug · Tag)]			
	Frühling	Sommer	Herbst	Winter
mit Aktivkohlefilter	0,4785	0,5060	0,1657	0,1587
ohne Aktivkohlefilter	9,7226	10,3524	3,5700	3,4220

se Arbeit, OBERMEIER 1995, UMWELTBUNDESAMT 1999) berechneten Jahresemissionen eines Fahrzeugs im Jahr 1994 sind in Tabelle 3-8 dargestellt. Beispielhaft werden für die ersten beiden Methoden die stündlichen Temperaturen der Station Augsburg / Mühlhausen verwendet,

Tabelle 3-8: Jahresemissionen eines Fahrzeugs nach verschiedenen Methoden berechnet

Minderungskonzept	Jahresemissionen 1994 [g/(Fahrzeug · Jahr)]				
	Methode 1		Methode 2		Methode 3
	mit Wärmeinseleffekt	ohne Wärmeinseleffekt	mit Wärmeinseleffekt	ohne Wärmeinseleffekt	
mit Aktivkohlefilter	246	240	333	325	120
ohne Aktivkohlefilter	3674	3583	3331	3230	2480

Methode 1: Gleichung (3-4)

Methode 2: OBERMEIER 1995

Methode 3: UMWELTBUNDESAMT 1999

während für Methode 3 nur mittlere Emissionen ohne die durch die Temperaturabhängigkeit verursachten regionalen Unterschiede berechnet werden können. Gegenüber der Berechnung ohne Wärmeinseleffekt liegen die Emissionen, die mit Methode 1 und 2 bei Berücksichtigung des Wärmeinseleffekts ermittelt werden, um ca. 2,5 % höher. Methode 3 zeigt – zumindest für die Emissionen im Jahr 1994 in Augsburg – eine deutliche Unterschätzung der Emissionen, was auf die Verwendung von längeren Zeitreihen der durchschnittlichen Temperaturschwankungen bei der Ermittlung der in Tabelle 3-7 angegebenen Emissionsfaktoren zurückzuführen ist.

3.5.4 Hot Soak Losses

Nach dem Abstellen eines Fahrzeugs steigt die Motorraumtemperatur aufgrund fehlender Kühlung durch spezielle Kühlsysteme oder den Fahrtwind zunächst an. Dieser Temperaturanstieg in den kraftstoffführenden Leitungen bewirkt einen Überdruck, der zu Benzindampfemissionen über die Entlüftungsventile führt. Eventuell eingebaute Aktivkohlefiltersysteme können diese Emissionen wie bei den Diurnal Losses erheblich verringern.

Auch hier baut der Berechnungsansatz im Wesentlichen auf den in OBERMEIER (1995) verwendeten Methoden auf. Durch Approximation der Messungen zur Erhöhung der Motorraumtemperatur lässt er sich rechentechnisch erheblich einfacher umsetzen.

Berechnungsmethode

Auch zu Hot Soak Losses liegen Messungen aus HEINE (1993) vor, die in folgender Gleichung resultieren:

$$E_{15} = A \cdot (1 - e^{-B \cdot \Delta t}) + C \tag{3-6}$$

- E_{15} Emissionen pro Fahrzeug in [g] bei 15 °C Labortemperatur nach einer Abstelldauer von Δt Minuten
- Δt Abstelldauer in Minuten
- A, B, C Regressionsparameter:

	Warmabstellen			Heißabstellen		
	A	B	C	A	B	C
mit Aktivkohlefiltersystem	0,831	0,0127	-0,0104	0,836	0,0203	0
ohne Aktivkohlefiltersystem	7,073	0,0185	-0,0401	10,948	0,0360	-0,302

Diese Gleichung besitzt eine ähnliche Struktur wie Gleichung (3-2), hier ist allerdings die Zeit die unabhängige Variable und nicht die Außentemperaturdifferenz. Die Hot Soak Losses werden für die Abstellvorgänge nach zwei Fahrtstreckenlängen angegeben. Heiß- bzw. Warmabstellen entspricht einer Motorraumtemperaturerhöhung um 65 °C bzw. 55 °C. Um auch den übrigen Temperaturbereich abzudecken, der bei kürzeren Fahrten zu berücksichtigen ist, kann die folgende Gleichung angewandt werden, die durch exponentielle Interpolation diese Temperaturabhängigkeit beschreibt:

$$E_{15}(t, \Delta T) = E_w(t) \left(\frac{E_h(t)}{E_w(t)} \right)^{\frac{\Delta T - T_w}{T_h - T_w}} \tag{3-7}$$

- $E_{15}(t, \Delta T)$ Emissionen pro Fahrzeug in [g] bei 15 °C Labortemperatur nach einer Abstelldauer von Δt Minuten und einer Motorraumtemperaturerhöhung um ΔT
- ΔT Motorraumtemperaturerhöhung um ΔT
- T_h Heißabstelltemperatur 65 °C
- T_w Warmabstelltemperatur 55 °C
- $E_w(t)$ Emissionen nach Gleichung (3-6) für Warmabstellen
- $E_h(t)$ Emissionen nach Gleichung (3-6) für Heißabstellen

Der exponentielle Verlauf dieser Gleichung entspricht dem Kurvenverlauf der Verdunstungsemissionsmessungen. Für die Temperaturerhöhung von 65 °C bzw. 55 °C reduziert sie sich auf Gleichung (3-6) für Heiß- bzw. Warmabstellen. Aufgrund der Eigenschaften der Exponential-

funktionen hat Gleichung (3-7) einen kleinen positiven y-Achsenabschnitt, was einer Emission ohne Temperaturerhöhung entspricht. Dieser Effekt ist aber wegen der schnellen Aufwärmung des Motors vernachlässigbar.

Um die Hot Soak Losses auch für Umgebungstemperaturen, die von der Messtemperatur abweichen, zu modellieren, muss mit dem Verhältnis der über den Abkühlungszeitraum hinweg gemittelten Dampfdrücke multipliziert werden (Gleichung (3-8)). Die Verzögerung des Temperaturverlaufs in der Schwimmerkammer zur Außentemperatur von ca. drei Stunden wird in dieser Gleichung berücksichtigt.

$$E(t, T, \Delta T) = E_w(t) \left(\frac{E_h(t)}{E_w(t)} \right)^{\frac{\Delta T - 55}{10}} \cdot \frac{a(e^{b(T_{i-3} + \Delta T)} - e^{bT_{i-3}})}{a_o(e^{b_o(T_{15} + \Delta T)} - e^{b_o T_{15}})} \quad (3-8)$$

$E(t, T, \Delta T)$ Emissionen pro Fahrzeug in [g] bei Außentemperatur T nach einer Abstell-dauer von Δt Minuten und einer Motorraumtemperaturerhöhung um ΔT

$E_w(t), E_h(t)$ siehe Gleichung (3-6)

T_{i-3} Temperatur 3 Stunden vor dem Abstellvorgang zu Stunde i in Kelvin

T_{15} 288,15 K (15 °C)

ΔT Motorraumtemperaturerhöhung

a, a_o, b, b_o Dampfdruckparameter, siehe Gleichung (3-3)

Mit Gleichung (3-8) kann die Emission eines Fahrzeugs bei gegebener Außentemperatur, Temperaturerhöhung im Motorraum und Standzeit berechnet werden. Außer der Außentemperatur liegen diese Daten allerdings für Deutschland nicht flächendeckend und zeitlich aufgelöst vor. Sie müssen von anderen Untersuchungen abgeleitet werden.

Temperaturerhöhung im Motorraum

HEINE et al. (1989) enthält Messungen über die Abhängigkeit der Temperaturerhöhung von der vor dem Abstellen gefahrenen Strecke. Durch exponentielle Regression können diese Messwerte anhand folgender Gleichung beschrieben werden:

$$\Delta T(l) = 65 \cdot (1 - e^{-0,4742 \cdot l}) \quad (3-9)$$

$\Delta T(l)$ Motorraumtemperaturerhöhung um ΔT nach Fahrtstrecke l

l Fahrlänge in [km]

Die in dieser Gleichung benötigte Fahrlängenverteilung für die einzelnen Fahrzeugkategorien kann den Daten aus Kapitel 3.5.2 entnommen werden. Angaben zur Verteilung der Fahrlängen im Tagesverlauf liegen jedoch nicht vor. Da aber fast drei Viertel der Fahrlängen unter 12 km und damit die Fahrzeit weniger als eine Stunde beträgt, kann in guter Näherung der Verlauf der Verkehrsstärke, wie er aus Ergebnissen automatischer Zählstellen abgeleitet wird, verwendet werden.

Somit lassen sich die Hot Soak Emissionen eines Fahrzeugs für einen Tag aus bekannten Größen berechnen:

$$E_{HS} = \sum_h \sum_l \sum_t E(t, T(h), \Delta T(l)) \cdot \lambda(l) \cdot \eta(t, h) \cdot \gamma(h) \cdot g \cdot c \quad (3-10)$$

E_{HS}	Hot Soak Losses eines Fahrzeugs in [g] innerhalb eines Tages
$E(t, T(h), \Delta T(l))$	Emissionen pro Fahrzeug nach Gleichung (3-8)
t	Standzeit in [min]
$T(h)$	Temperatur zur Stunde h in °K
$\Delta T(l)$	Temperaturerhöhung im Motorraum nach Gleichung (3-9)
$\lambda(l)$	Anteil der Fahrlänge l aus der Fahrlängenverteilung
$\eta(t, h)$	Anteil der Standzeit t zur Stunde h aus der Standzeitverteilung nach WEISSBARTH et al. (1992)
$\gamma(h)$	Anteil der Fahrleistung zur Stunde h an der Gesamttagesfahrleistung
g	Gesamttagesfahrleistung in Fzg-km
c	Anzahl der Starts pro Fzg-km
h	Stunde des Tages (1 bis 24)
l	Fahrlänge (1 km bis > 12 km)

Gleichung (3-10) lässt sich noch vereinfachen. Eine nähere Analyse zeigt nämlich, dass die stündlichen Emissionen nur sehr schwach von der Änderung der Verteilung der Abstellzeiten abhängen. Da die Verteilung der Fahrtstreckenlängen über den Tagesverlauf als konstant angenommen wird, sind die Emissionen hauptsächlich von der Außentemperatur, Aktivkohlefiltersystem und der Kraftstoffqualität abhängig. Eine exponentielle Regression ergibt folgende Gleichung für ein Fahrzeug:

$$E(T) = d \cdot e^{bT} \quad (3-11)$$

$E(T)$	Hot Soak Losses eines Fahrzeugs in Abhängigkeit von Umgebungstemperatur T
b	Dampfdruckparameter (Gleichung (3-3))
T	Umgebungslufttemperatur in °K
d	Emissionsparameter:

	mit	ohne
	Aktivkohlefilter	
Sommerbenzin	5,19E-04	5,26E-03
Winterbenzin	9,72E-05	1,02E-03

Alle r^2 -Werte dieser Regression liegen über 0,998. Mit diesen Emissionsparametern erhält man schließlich eine sehr einfache Gleichung für die Berechnung der stündlichen Emissionen:

$$E_{HS}(h) = d \cdot e^{bT_{h-3}} \gamma(h) \cdot g \cdot c \quad (3-12)$$

$E_{HS}(h)$	Emissionen eines Fahrzeugs in [g] zur Stunde h
d	Emissionsparameter aus Gleichung (3-11)
$\gamma(h)$	Anteil der Fahrleistung zur Stunde h an der Gesamtfahrleistung innerhalb des Kreises
T	Umgebungslufttemperatur in °K
g	Gesamttagesfahrleistung in Fzg-km
c	Anzahl der Starts pro Fzg-km

Da nach Gleichung (3-6) ca. 85 % der Emissionen innerhalb der ersten Stunde nach einem Abstellvorgang freigesetzt werden, können die Emissionen ohne zeitliche Verzögerung dieser Stunde zugerechnet werden. Für die Berechnung der Emissionen auf Kreisebene werden die Fahrleistungen wie schon bei den Kaltstartemissionen mit SCHMITZ et al. (1997) auf Kreise verteilt.

Vergleich mit anderen Berechnungsmethoden

OBERMEIER (1995) gibt für die Berechnung der stündlichen Hot Soak Emissionen eine vereinfachte Form von Gleichung (3-8) mit diskret gestufter Motorraumtemperaturerhöhung an, während in UMWELTBUNDESAMT (1999) nur Außentemperatur- und saisonunabhängige Hot Soak Emissionsfaktoren angegeben werden. Mit stündlichen Temperaturdaten werden beispielhaft die mittleren Hot Soak Emissionsfaktoren pro Abstellvorgang für Augsburg im Jahr 1994 berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3-9 zusammengestellt.

Tabelle 3-9: Mittlere Emissionsfaktoren eines Fahrzeugs pro Abstellvorgang in Augsburg 1994

	Emissionsfaktor [g/Abstellvorgang]	
	mit Aktivkohlefilter	ohne Aktivkohlefilter
Gleichung (3-12)	0,75	7,79
OBERMEIER (1995)	0,68	7,88
UMWELTBUNDESAMT (1999)	0,53	6,49

Wie bei den Diurnal Losses liegen die temperaturunabhängigen Emissionsfaktoren des UBA-Handbuchs unter denen, die mit aktuellen stündlichen Temperaturen des Jahres 1994 in Augsburg berechnet werden (ca. – 20 %). Im Vergleich zu den gesamten NMVOC-Emissionen in Deutschland ist dieser Unterschied bei der Modellierung der Hot Soak Losses zwar nicht so gravierend, werden allerdings stündliche Emissionen benötigt, ist der temperaturabhängige Ansatz vorzuziehen.

3.5.5 Running Losses

Running Losses sind Verdunstungsemissionen, die während der Fahrt eines Kraftfahrzeugs auftreten. Aufgrund der noch nicht etablierten Berechnungsmethode werden sie meist vernachlässigt (wie z. B. in JOHN, 1999; KRÜGER, 2001). Die nachfolgend beschriebene Methode stellt eine Möglichkeit zur Berücksichtigung von Running Losses in Emissionskatastern dar und wird für die vorliegende Arbeit verwendet.

Berechnungsmethode

Als Datenbasis wird MAY et al. (1993) herangezogen, worin Emissionsfaktoren für Ottomotoren mit und ohne Aktivkohlefiltersystem, die in Kalifornien an US-Fahrzeugen gemessen wurden, Emissionsfaktoren europäischer Fahrzeuge (MCARRAGHER et al. 1990, 1992) gegenübergestellt werden. Allerdings liefern die mit Hilfe dieser Faktoren berechneten Emissionen nur eine untere Grenze, da mit der für die Messungen angewandten Aktivkohlefallen-Methode die Verdunstungsemissionen um bis zu 87 % unterschätzt werden können (UMWELTBUNDESAMT, 1993). Tabelle 3-10 zeigt die Emissionsfaktoren für verschiedene Temperaturen

und Kraftstoffqualitäten. Auf Autobahnen treten wegen der Motorraumkühlung durch den Fahrtwind keine Running Losses auf. Um Faktoren für die übrigen Temperaturbereiche zu erhalten, wird linear bzw. polynomial interpoliert, wobei vorausgesetzt wird, dass unterhalb von 5 °C keine Running Losses mehr auftreten. Running Losses von Dieselfahrzeugen werden aufgrund des niedrigen Dampfdrucks vernachlässigt.

Tabelle 3-10: Emissionsfaktoren von Ottomotoren für verschiedene Außentemperaturen und Kraftstoffqualitäten in [g/Fzg-km]

		Winterkraftstoff		Sommerkraftstoff		
		5 °C	10 °C	15 °C	20 °C	25 °C
mit Aktivkohlefilter	innerorts	0	0,360	0,233	0,349	0,524
	außerorts	0	0,026	0,017	0,025	0,038
	Autobahn	0	0	0	0	0
ohne Aktivkohlefilter	innerorts	0	0,710	0,660	0,990	1,485
	außerorts	0	0,043	0,040	0,059	0,089
	Autobahn	0	0	0	0	0

Als Aktivitätsdaten für die eigentliche Emissionsberechnung wurden die Fahrleistungen aus den Berechnungen in Kapitel 3.5.1 herangezogen.

3.5.6 Betankungsverluste

Beim Betanken eines Fahrzeugs wird der im leeren Kraftstoffbehälter vorhandene Benzindampf vom einströmenden Kraftstoff verdrängt. Nach der 21. BImSchV (1992) müssen ab 1993 neu errichtete Tankstellen ein Gasrückführungssystem installieren, das den Benzindampf absaugt und dem Lagertank zuführt. Für schon in Betrieb befindliche Tankstellen gelten Übergangsregelungen mit Fristen von drei bis fünf Jahren. Ohne diese Gasrückführungen werden 1,42 kg Benzindampf pro Tonne getanktem Otto-Kraftstoff freigesetzt (UMWELTMINISTERIUM BADEN-WÜRTTEMBERG, 1993). Mit dieser zusätzlichen Minderungstechnik können laut 21. BImSchV 75 – 85 % der Emissionen vermieden werden. Aufgrund der Übergangsbestimmungen wird für das Jahr 1994 eine Minderung von 32 % angenommen. Nicht berücksichtigt dabei ist, dass die installierten Gasrückführungssysteme offensichtlich sehr fehleranfällig sind und mit Ausfallquoten von bis zu 30 % zu rechnen ist (UMWELTBUNDESAMT, 1999b).

3.6 NH₃-Emissionen aus der Landwirtschaft

Auch die Emissionen aus der Viehhaltung werden – obwohl nicht durch technische Prozesse verursacht – den anthropogen induzierten Emissionen zugerechnet. Die NH₃-Emissionen der Landwirtschaft tragen europaweit zu ca. 80 – 95 % zu den NH₃-Emissionen jedes Landes bei, darunter die Emissionen aus der Viehhaltung wiederum zu ca. 90 % und der Kunstdüngemiteinsatz zu 10 %. Ammonium wird entweder über Mikroorganismen aus dem in tierischen Exkrementen und Harnstoffdünger enthaltenen Harnstoff oder aus Nitrationen von nitrathaltigen Düngern gebildet. In Lösung stellt sich bei pH-Werten über 7 ein Ammonium-Ammoniak-Gleichgewicht ein, aus dem der Ammoniak nach Freisetzung immer wieder nachgebildet wird, solange noch Ammonium in Lösung vorliegt.

3.6.1 Emissionen aus der Viehhaltung

Als Aktivitätsdaten zur Ermittlung von Emissionen aus der Viehhaltung werden Viehbestandszahlen herangezogen, die jährlich auf Kreisebene herausgegeben werden (STATISTISCHES BUNDESAMT, 1997). Emissionsfaktoren für Rinder und Schweine werden den Auswertungen von ZAPF et al. (1995) entnommen, einer Studie, die speziell deutsche Verhältnisse berücksichtigt. Mittlere europäische Emissionsfaktoren für Geflügel und Schafe enthält z. B. EUROPEAN ENVIRONMENT AGENCY (1999) (siehe Tabelle 3-11).

Tabelle 3-11: NH₃-Emissionsfaktoren für die Viehhaltung in Deutschland in [kg/(Tier·a)]

Tierart	Haltung	Gesamt-Faktor	davon		
			Stall	Lagerung	Ausbringung
Rinder	Gülle	30,0	4,2	6,0	19,8
	Festmist	30,0	6,0	19,8	4,2
	Weide	19,4			
Schweine	Gülle	5,0	1,0	2,0	2,0
	Festmist	5,0	1,0	3,3	0,7
Schafe		1,34			
Geflügel		0,37			

3.6.2 Emissionen aus dem Einsatz von Kunstdünger

Der Absatz von Kunstdünger wird im Rahmen der Statistiken zum Produzierenden Gewerbe vom Statistischen Bundesamt auf Landesebene erhoben (STATISTISCHES BUNDESAMT 1995). Es wird davon ausgegangen, dass diese Menge im selben Wirtschaftsjahr in der Landwirtschaft auch eingesetzt wird. Wie wichtig die Unterscheidung nach einzelnen Düngerarten ist, zeigen die Emissionsfaktoren der EUROPEAN ENVIRONMENT AGENCY (1999) in Tabelle 3-12. So liegen die Emissionen bei der Ausbringung von reinem Harnstoff etwa siebenmal so hoch wie die von Kalkammonsalpeter.

Tabelle 3-12: NH₃-Emissionsfaktoren für den Kunstdüngereinsatz

Kunstdüngerart	Emissionsfaktor [kg NH ₃ -N/kg-N]
Kalkammonsalpeter	0,02
Ammonnitrat / Harnstoff-Lsg.	0,08
Harnstoff	0,15
andere Ein-Nährstoffdünger	0,08
Ammonium-Phosphat-Dünger	0,05
andere Komplex-Dünger	0,02

3.7 Übrige Emissionsquellen

Die Jahresemissionen folgender Quellgruppen werden aus den in SCHWARZ (in prep.) für das Jahr 1994 fortgeschriebenen Emissionsdaten des europäischen CORINAIR-Katasters von 1990 entnommen: Bahn-, Schiffs- und Flugverkehr sowie Off-Road-Verkehr von mobilen Geräten und Maschinen der Land- und Forstwirtschaft und des Baugewerbes.

4 Räumliche, zeitliche und stoffliche Verteilung

In diesem Kapitel werden die Methoden und Datenquellen vorgestellt, die für die räumliche, zeitliche und stoffliche Verteilung der Jahresemissionen in Deutschland verwendet werden. Besonders hohen Aufwand verursacht die Berechnung der Zeitkurven sowie die Verarbeitung der hier flächendeckend in hoher räumlicher Auflösung für die Bundesrepublik vorliegenden Verteilparameter wie z. B. Landnutzungsdaten und Straßennetze. Gegenüber existierenden Arbeiten zur Ermittlung von anthropogenen Emissionen in Deutschland sind insbesondere folgende Verbesserungen hervorzuheben:

- Erstellung detaillierter Verkehrszeitkurven durch Auswertung der Daten von über 900 automatischen Zählstellen in Deutschland.
- Verwendung eines flächendeckenden Fernstraßennetzes sowie für einzelne Bundesländer vorliegender Landes- und Kreisstraßennetze.
- Berücksichtigung von Klimazonen, höhenabhängiger Temperaturschichtung und Wärmeineffekt zur Ableitung stündlicher Emissionszeitkurven.
- Verwendung hoch aufgelöster Daten zur Bodenbedeckung für Deutschland mit einer Genauigkeit von ca. 250 m.
- Einsatz neu zusammengestellter detaillierter VOC-Profile zur Aufteilung der NMVOC-Gesamtemissionen auf einzelne Stoffe oder Stoffgruppen.

4.1 Räumliche Verteilung der Emissionen

Die Bildung von bodennahem Ozon ist ein sehr komplexer chemisch-physikalischer Vorgang, der im Wesentlichen von meteorologischen Größen und von den Konzentrationen der atmosphärischen Spurenstoffe abhängt. Messungen zur räumlichen Verteilung der Ozonkonzentrationen zeigen, dass es sich dabei im Bereich von Ballungsgebieten je nach Wetterlage um ein lokal begrenztes oder ein eher vom Ferntransport beeinflusstes Phänomen handeln kann. Dies ist unter anderem abhängig von den dort vorherrschenden anthropogenen Emissionen der Ozonvorläufersubstanzen wie NO_x und VOC. Neuere Untersuchungen kommen durch Anwendung der Methode der Hauptfaktorenzerlegung auf Ozon-Stationsmessungen in Deutschland zu dem Ergebnis, dass in dicht besiedelten Gebieten für die Ozonmodellierung eine räumliche Auflösung von $\Delta x \leq 1 \text{ km}$ anzustreben ist (ZIMMERMANN, 1999). In entsprechend hoher Auflösung müssen daher auch die Emissionsdaten vorliegen.

4.1.1 Methoden der räumlichen Verteilung

Emissionsdaten werden in der Regel zunächst als Punkt-, Flächen- und Linienquellen ermittelt. Für die Weiterverarbeitung in Chemie-Transport-Modellen müssen diese Daten gerastert, also auf die Zellen eines Gitters verteilt werden. Zielgröße der räumlichen Verteilung ist für jede Zelle i eines Gitters der Anteil α_{i, Q_j} , den es an den einzelnen Emissionsquellen hat. Die gesamte Emission eines Schadstoffs in einer Zelle berechnet sich dann nach

$$E_i = \sum_j E_{Q_j} \alpha_{i, Q_j} \quad (4-1)$$

E_i	Emission der Gitterzelle i
α_{i, Q_j}	Anteil der Zelle i an der Emission der Quelle Q_j
E_{Q_j}	Emission der Quelle Q_j

Im Folgenden werden die für verschiedene Quellgeometrien eingesetzten Methoden zur Bestimmung der Anteile α_{i, Q_j} beschrieben.

Punktquellen

Die geographische Lage einer Punktquelle ist durch ihre Koordinaten eindeutig bestimmt. Sie liegt daher als Ganzes in oder außerhalb einer Gitterzelle (Abb. 4-1a).

Linienquellen

Zur Berechnung der räumlichen Verteilung von Linienquellen (z. B. Straßen) auf einem Gitter sind zwei einander gleichwertige Verfahren möglich, die zum selben Ergebnis führen.

Bei der Bottom-Up-Methode wird jeder einzelne Straßenabschnitt als Emissionsquelle betrachtet, für den die Emissionen aus den Verkehrsstärken unter Berücksichtigung sämtlicher emissionsrelevanter Parameter (z. B. Steigung, Spurenzahl, Geschwindigkeitsbeschränkungen) berechnet werden. Diese Straßenabschnitte werden mit dem Gitter überlagert, um zu berechnen, welche Streckenabschnittslängen in welchen Gitterzellen liegen. Die Emissionen des ganzen Streckenzugs werden schließlich gewichtet mit den Abschnittslängen auf die einzelnen Zellen verteilt (Abb. 4-1b).

Im Top-Down-Ansatz werden alle Straßenabschnitte mit denselben emissionsrelevanten Parametern zusammengefasst, die Emissionen werden dann für die so entstehenden Teilnetze berechnet. Nach der Verschneidung der Teilnetze mit dem Gitter werden die Emissionsanteile gewichtet nach den Abschnittslängen und der Verkehrsstärke auf den Teilstrecken berechnet. Dieses Verfahren bietet sich besonders dann an, wenn nur wenig Detailinformation über die Straßenabschnitte zur Verfügung steht (z. B. Verkehrsstärken nur getrennt nach Fahrzeugkategorien und Straßenklassen), aber trotzdem ein Gebiet von der Größe mehrerer Bundesländer betrachtet werden soll. Das Ergebnis ist identisch mit dem des Bottom-Up-Ansatzes, die Rechenzeiten können sich aber erheblich verringern.

Flächenquellen

Bei geringer Detailinformation zur geographischen Lage von Emissionsquellen werden die Emissionen in der Regel als Flächenquellen berechnet. So lassen sich z. B. die NMVOC-Verdunstungsemissionen von Kraftfahrzeugen auf Kreisebene berechnen, auch wenn die Koordinaten der einzelnen Fahrzeuge nicht bekannt sind. Um die Emissionen eines irregulären Flächenpolygons auf ein Gitter zu verteilen, werden im einfachsten Fall, wenn keine hochaufgelösten Landnutzungsdaten vorliegen, Flächenquelle und Gitter überlagert. Der Anteil der Zelle an den Emissionen wird dann aus dem Verhältnis der Flächensumme der Polygone innerhalb dieser Zelle zur Gesamtfläche der Flächenquelle gebildet (Abb. 4-1c).

Die Genauigkeit der räumlichen Zuordnung kann durch die Einbeziehung von hochaufgelösten Landnutzungsdaten erhöht werden (Abb. 4-1d). Die NMVOC-Emissionen der Haushalte aus der Anwendung von Lösemitteln können hierfür als Beispiel dienen: Die Emission

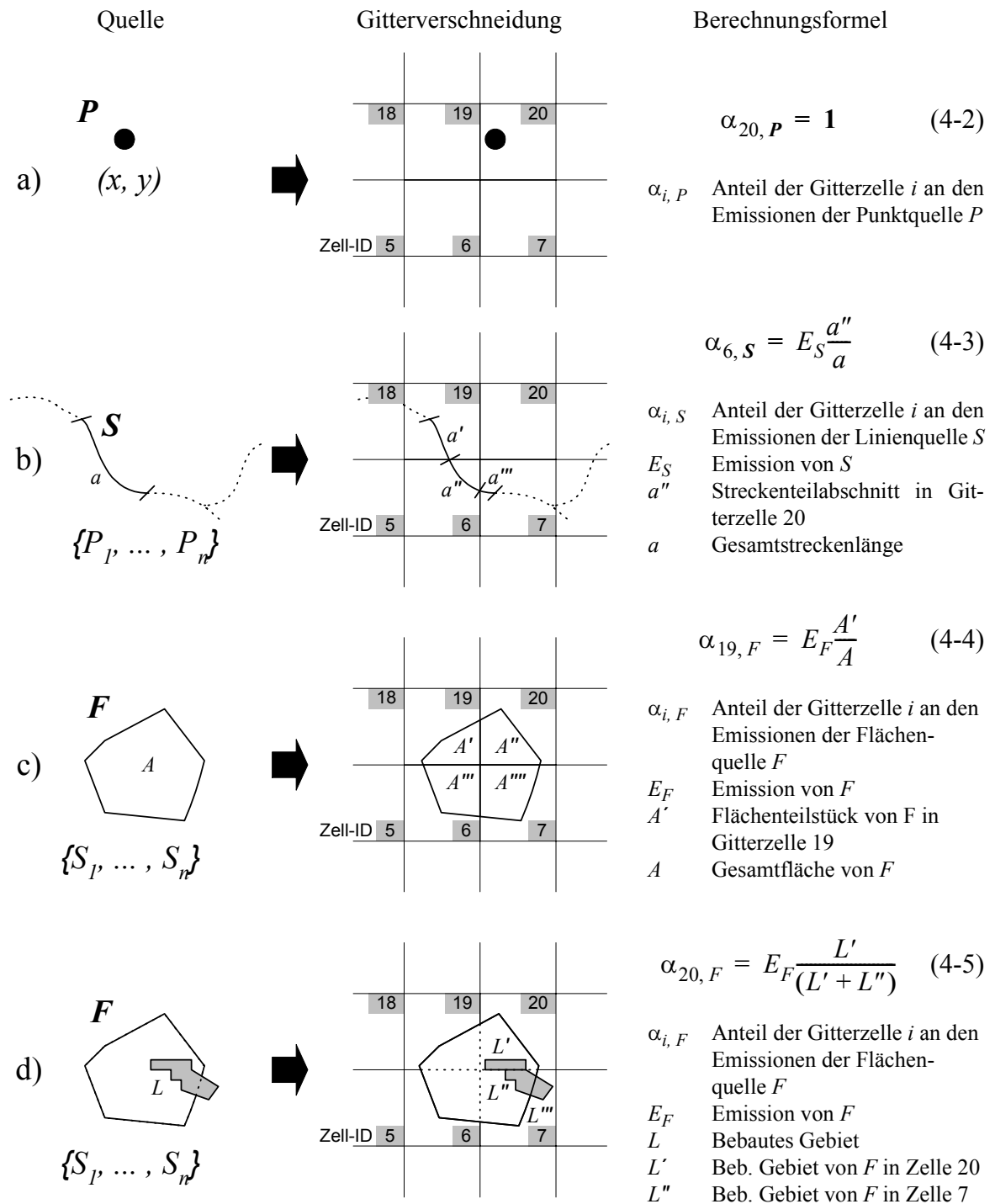


Abb. 4-1: Beispiel für die Methoden der räumlichen Verteilung von Emissionsdaten auf ein Gitter. a) Punktquellen, b) Linienquellen, c) Flächenquellen, reine Flächenverschneidung, d) Flächenquellen, Verschneidung mit Landnutzungsdaten.

von NMVOC im Kreis Stuttgart betrug 1994 ca. 1125 t. Die gleichmäßige Verteilung der Emissionen auf ein 1 km x 1 km Gitter nach Gleichung (4-4) (nur Flächenanteile) ergibt bei einer Kreisfläche von 20.734 ha eine Emissionsdichte von ca. 5,4 t/km². Werden die Emissionen innerhalb von Stuttgart nur auf die Gebäudefläche von 4.367 ha verteilt, liegt die Emissionsdichte mit ca. 25,8 t/km² schon fast fünf Mal so hoch. Da der Mechanismus zur Bildung von Ozon in hohem Maß nichtlinear ist, können lokale Emissionsgradienten große Auswirkungen auf die Ozonproduktion oder den Ozonabbau haben, auch wenn die Emissionsmittelwerte auf

regionalem Maßstab gleich bleiben. Die Güte der Ozonmodellierung ist daher von der räumlichen Genauigkeit der Emissionsdatenbasis abhängig. Anstelle der Landnutzungsdaten oder ergänzend dazu kann auch jeder andere georeferenzierte Indikator zur Verbesserung der räumlichen Auflösung eingesetzt werden. Dies können z. B. Bebauungsdaten auf Gemeinde- oder Stadtbezirksebene sowie hochaufgelöste Höhendaten oder Flurkarten sein.

Müssen für die Verschneidung von Flächenquellen mit Landnutzungsdaten und dem Ausgabegitter sehr große Datenmengen verarbeitet werden, wird diese statt mit Polygonen mit Grids durchgeführt. Bei Grids handelt es sich um georeferenzierte Bilddatensätze, deren Pixel keine Farbinformationen, sondern geographische Attributwerte enthalten. Die Pixelgröße bestimmt dann die maximale geographische Auflösung. Anstelle der topologischen Verschneidungsoperationen, wie sie in Abb. 4-1 beschrieben sind, kommen dann Überlagerungsmethoden aus der Bildverarbeitung zum Einsatz. Der Vorteil der Gridverschneidung gegenüber der Polygonüberlagerung liegt in der wesentlich höheren Verarbeitungsgeschwindigkeit bei der Verwendung von Bildverarbeitungs-Algorithmen. Andererseits bedeutet der Übergang von Polygonen auf Rasterdaten einen von der räumlichen Auflösung abhängigen Informationsverlust.

4.1.2 Räumliche Verteilung im Emissionskataster für Deutschland

Die Anwendung der oben beschriebenen Methoden zur Verteilung der Emissionen auf die Zellen eines Gitters hängt insbesondere vom vorhandenen Datenmaterial ab. So können z. B. die Außerortsemissionen des Straßenverkehrs nur unter Verwendung von digitalen Straßennetzen

Tabelle 4-1: Verteilungsparameter im Emissionskataster 1994 für Deutschland

Emissionsprozess / Sektor	Verteilungsparameter
Straßenverkehr	Digitalisierte Straßennetzkarte für Deutschland (BUNDESFORSCHUNGSANSTALT FÜR LANDESKUNDE UND RAUMORDNUNG 1998), Zuordnung zu DTV-Mengen aus LENSING (1997) über Zählstellennummern
Autobahnen, Bundesstraßen	
Landes-, Staats- und Kreisstraßen (z. T.)	Aus Netzknotenkoordinaten generierte Straßennetzkarten (STRASSENBAU-ÄMTER DER LÄNDER 1998)
übrige Landes-, Kreis- und Gemeindestraßen außerorts	Landnutzung: Städtisch geprägtes Gebiet (STATISTISCHES BUNDESAMT 1997b)
Innerortsstraßen	Landnutzung: Bebautes Gebiet z. T. geographische Informationen der Straßennetze
Flugverkehr	Punktquellenkoordinaten der großen deutschen Verkehrsflughäfen
Schienerverkehr	Digitales Schienennetz (ESRI 1993)
sonstige mobile Quellen	Landnutzungsdaten:
Forstwirtschaft	Waldflächen
Landwirtschaft	Landwirtschaftlich genutzte Flächen
Baufahrzeuge	Städtisch geprägtes Gebiet
Schiffsverkehr	Wasserfläche
genehmigungsbedürftige Anlagen, sonstige Punktquellen	Geographische Koordinaten der Punktquellen aus den Emissionserklärungsdaten
Haushalte, Kleinverbraucher, Industrie-Flächenquellen	Landnutzung: Städtisch geprägtes Gebiet
Landwirtschaft / Viehhaltung	Landnutzung: Landwirtschaftlich genutzte Flächen

kleinräumig verteilt werden. Tabelle 4-1 zeigt, welche Methoden unter Nutzung welcher Datengrundlage bei der Berechnung der Emissionen für Deutschland 1994 eingesetzt werden. Flächenquellen des Verkehrs werden von Bundeslandebene, die der übrigen Verursacherbereiche von Kreisebene aus mit den Landnutzungsdaten feiner aufgelöst.

4.2 Erstellung von stündlichen Zeitkurven für 1994

Je nach Anwendungszweck ist es notwendig, Emissionsdaten in hoher zeitlicher Auflösung zu ermitteln, insbesondere dann, wenn sie als Eingangsdaten von Chemie-Transport-Modellen dienen sollen. Für die regionale Ozonmodellierung werden in der Regel stündliche Emissionen benötigt. Wie bei der räumlichen Auflösung können wieder zwei Methoden verwendet werden:

Beim Bottom-Up-Ansatz werden die Zeitkurven direkt während der Emissionsberechnung generiert. Dieser Fall tritt dann ein, wenn die Jahresemissionen aus stündlichen Grundlagendaten berechnet werden müssen, z. B. aus Temperaturdaten. Die für ein ganzes Jahr ermittelten Zeitkurven werden – soweit erforderlich – gewichtet mit den Gesamtemissionen zusammengefasst und normiert, damit später jede beliebige Episode eines Jahres berechnet werden kann. Dieser Weg wird z. B. bei den temperaturabhängigen Emissionsprozessen des Straßenverkehrs beschritten, bei den Diurnal Losses, den Hot Soak Losses und den Kaltstartemissionen.

Im Top-Down-Ansatz, bei dem die Emissionen aus statistischen Jahreswerten berechnet werden, müssen die Zeitkurven gesondert ermittelt werden. Dazu werden Indikatordaten in stündlicher, täglicher (abhängig vom Wochentag) und monatlicher Auflösung benötigt, aus denen der zeitliche Emissionsverlauf abgeleitet werden kann. So werden z. B. aus Gradtagszahlen und typischen Tagesgängen die Zeitkurven für Emissionen aus der Raumwärmebereitstellung ermittelt. In einigen Fällen liegen entsprechende Aktivitätsdaten sogar für das gesamte Jahr in stündlicher Auflösung vor, z. B. die Zählstellenergebnisse des Straßenverkehrs, so dass daraus direkt die Zeitkurven abgeleitet werden können.

In Tabelle 4-2 sind die Ausgangsdaten zur Erstellung der Zeitkurven für das in dieser Arbeit entwickelte Emissionsmodell näher beschrieben. Die Quellenangaben beziehen sich auf die Herkunft von statistischen Daten oder Referenzen, in denen die Zeitkurverstellung für den jeweiligen Sektor detailliert erläutert wird. Beispiele für den zeitlichen Verlauf der Emissionen werden in Kapitel 5 vorgestellt.

Tabelle 4-2: Methoden zur Erstellung von Zeitkurven

Emissionsprozess / Emissionssektor	Grundlagendaten
Straßenverkehr	
Abgasemissionen	Stündliche DTV-Mengen für das ganze Jahr aus ca. 900 automatischen Verkehrszählstellen auf Autobahnen, Landesstraßen und Kreisstraßen (BAST, 1997); Aggregation für Bundesländer, Fahrzeugkategorien und Straßentypen
Running Losses	Wie Abgasemissionen; zusätzlich stündliche Temperaturen für das ganze Jahr von ca. 20 Wetterstationen (DEUTSCHER WETTERDIENST 1996)
Hot Soak Losses Kaltstartemissionen Diurnal Losses	Stündliche Temperaturen, auf 440 Kreise mit Höhenmodell (EROS DATA CENTER 2000) und gerasterten Temperaturmittelwerten (DEUTSCHER WETTERDIENST 1996a) übertragen Standzeiten im Tagesverlauf nach WEISSBARTH et al. (1992)

Tabelle 4-2: Methoden zur Erstellung von Zeitkurven (Forts.)

Emissionsprozess / Emissionssektor	Grundlagendaten
Schieneverkehr	Tägliche Gleichverteilung, Tagesgang nach EUROPEAN ENVIRONMENT AGENCY (1999)
sonst. mobile Quellen	Typischer stündlicher Jahresgang (HEYMANN et al. 1994)
Haushalte	
Raumwärme- bereitstellung	Tägliche Gradtagszahlen von 20 Wetterstationen, stündlicher Nutzungsgrad für Kohleöfen aus SANA-Umfrageergebnissen (FRIEDRICH et al. 1996), für Öl- und Gasheizungen (nach VDI-Richtlinie 2067, 1988)
Warmwasserbereitung	VDI-Richtlinie 2067 (1988)
Lösemiteileinsatz	Tägliche Gleichverteilung, Emissionen gleichverteilt von 8:00 – 21:00
Kleinverbraucher	FRIEDRICH et al. (1996)
Industrie	
Feuerungen	Monatliche Produktionszahlen, für den Wochentags- und den Tagesgang Umfrageergebnisse und Regressionsmodell (SEIER 1996)
sonstige ind. Prozesse	FRIEDRICH et al. (1996)
Energiebereitstellung	
Kraftwerke	Unterteilung von stündlichen Lastgängen (aus FRIEDRICH et al. 1996) in Grundlastkurve und Mittel- / Spitzenlastzeitkurven
Heizkraftwerke	Zusätzlich konstanter Wärmebereitstellungsanteil
Heizwerke	Tägliche Gradtagszahlen, konstanter Grundlastanteil
Landwirtschaft (NH₃)	
Viehhaltung / Mineraldünger	Monats- und Stundenwerte (aus ZAPF et al. 1995)

4.3 Verteilung der NMVOC-Emissionen auf Stoffgruppen

Emissionsfaktoren für leichtflüchtige organische Substanzen werden meistens nur als aggregierte NMVOC-Emissionsfaktoren ausgewiesen (z. B. in UMWELTBUNDESAMT, 1999; EUROPEAN ENVIRONMENTAL AGENCY, 1999; ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY, 1998), da aus Kostengründen bei Emissionsmessungen häufig nur der Gesamtkohlenstoffgehalt eines Gasgemischs bestimmt wird. Da sich aber die einzelnen Substanzen hinsichtlich ihrer chemischen Eigenschaften in der Atmosphäre sehr unterschiedlich verhalten können, ist für die Ozonmodellierung eine genauere Kenntnis über die Zusammensetzung der NMVOC-Emissionen notwendig. Eine Möglichkeit, die stoffliche Auflösung von Emissionen zu verbessern, die als NMVOC-Gesamtsumme berechnet werden, ist die Verwendung von für die verschiedenen Emissionsprozesse repräsentativen VOC-Profilen. Diese enthalten die Anteile einzelner Stoffe oder Stoffklassen an den Gesamt-VOC-Emissionen.

Für die vorliegende Arbeit werden die Daten aus der IER-VOC-Profildatenbank verwendet, die in THELOKE et al. (in prep.[1]) und OBERMEIER (1995) beschrieben werden. Eine Zusammenstellung der Einzelstoffe und Stoffklassen dieser Profile für die Weiterverwendung in Ozonsimulationsrechnungen wird in Kapitel 5.4 gegeben.

5 Ergebnisse der Emissionsberechnung

Nach Implementierung der in den Kapiteln 2 bis 4 erläuterten Methoden liegt gegenüber früheren Untersuchungen (vgl. Kapitel 2.2.1) ein konsistentes Emissionsmodell vor, das in der Lage ist, für ein ganzes Jahr stündliche Emissionsdaten aus anthropogenen Quellen in verschiedenen räumlichen Auflösungsstufen für Deutschland zu berechnen.

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der mit diesem Modell für das Jahr 1994 durchgeführten Emissionsberechnung vorgestellt. Aufgrund der großen Anzahl von Jahresemissionswerten, räumlichen Verteilungsvektoren, Zeitkurven und VOC-Profilen ist es nicht möglich, alle Daten im Einzelnen aufzulisten. Daher werden die Jahresemissionen in sektorale Hauptgruppen zusammengefasst, für die räumliche, zeitliche und stoffliche Verteilung der Emissionen werden charakteristische Beispiele angegeben.

5.1 Jahresemissionen

Einen Überblick über die anthropogenen Emissionen der Schadstoffe SO_2 , NO_x , CO, NMVOC und NH_3 in Deutschland gibt Tabelle 5-1. Aufgrund verschiedener Berechnungsmethoden, die teilweise branchenbezogen, teilweise prozessbezogen ausgerichtet sind, ist eine einheitliche hierarchische Systematik für die Aggregation der Emissionen nicht möglich. So kann z. B. aus den Emissionserklärungsdaten nicht für jeden Betrieb abgeleitet werden, ob er dem Industrie- oder dem Kleinverbrauchersektor zuzuordnen ist. Auch kann keine eindeutige Unterscheidung zwischen öffentlichen Kraftwerken und Industriekraftwerken getroffen werden, so dass sie in der Quellgruppe „genehmigungsbedürftige Feuerungsanlagen“ zusammengefasst werden. Der Sektor der Landwirtschaft ist sehr heterogen. Wegen fehlender Abgrenzungsmöglichkeiten werden nur die NH_3 -Emissionen aus der Viehhaltung und aus dem Einsatz von Düngemitteln getrennt ausgewiesen. Die Feuerungsemissionen sind im Haushalts- und im Kleinverbrauchssektor subsummiert, die Emissionen des landwirtschaftlichen Verkehrs in der Emittentengruppe „sonstiger Verkehr“.

Nach Tabelle 5-1 wurden im Jahr 1994 2445 kt SO_2 emittiert, wobei die industriellen Feuerungsanlagen mit 83 % die Hauptquelle darstellen. Prozessemissionen der Industrie, der Verkehrssektor und Kleinf Feuerungsanlagen spielen demgegenüber nur eine untergeordnete Rolle. Hauptemittentengruppe der NO_x -Emissionen, die insgesamt 2266 kt betragen, ist der Straßenverkehr mit 50,5 % Anteil an den Gesamtemissionen. Mit 30,7 % haben Prozess- und Feuerungsemissionen aus der Industrie ebenfalls einen beträchtlichen Anteil an den NO_x -Emissionen. Die CO-Emissionen von 6722 kt werden ebenfalls zum größten Teil (66,5 %) durch den Straßenverkehr erzeugt. Neben den industriellen Prozessemissionen tragen auch Kleinf Feuerungen von privaten Haushalten, Kleinverbrauchern und Militär mit 15,8 % erheblich zu den Emissionen bei. Für die NMVOC-Emissionen von 2012 kt lassen sich drei Hauptverursacherbereiche identifizieren: wiederum der Verkehr, der mit 48,9 % fast die Hälfte der Emissionen produziert, zum anderen die Anwendung von Lösemitteln in Industrie und Kleinverbrauch (39,0 %) sowie in privaten Haushalten (11,6 %). Die NH_3 -Emissionen (709 kt) stammen fast ausschließlich aus der Landwirtschaft.

Der Straßenverkehr ist, wie aus der Zusammenstellung hervorgeht, der Hauptverursacher der Ozonvorläufersubstanzklassen NO_x und NMVOC. Eine weitere Unterteilung in die zugrunde liegenden Emissionsprozesse zeigt Abb. 5-1: Demnach werden jeweils die meisten Emissionen im normalen Fahrbetrieb auf Außerortsstraßen produziert, mehr als die Hälfte der

Tabelle 5-1: Zusammenstellung der anthropogenen Emissionen in Deutschland von 1994

Sektor / Emissionsprozess		SO ₂		NO _x		CO		NMVOC		NH ₃	
		[kt]	[%]	[kt]	[%]	[kt]	[%]	[kt]	[%]	[kt]	[%]
Feuerungsanlagen	gen.bed.	2010	82,2	487	21,5	242	3,6	10	0,5		
	nicht genehmigungsbedürftig	19	0,8	16	0,7	5	0,1	1	0,0		
Industrie / KV	Lösemittel, Prozessemissionen	175	7,2	194	8,5	929	13,8	798	39,4	3	0,4
Gasverteilung						13					
Zwischensumme		2205	90,2	697	30,7	1189	17,7	808	39,9	3	0,4
Straßenverkehr	Abg. außerorts	42	1,7	813	35,9	2157	32,1	249	12,3		
	Abgas innerorts	16	0,6	265	11,7	920	13,7	194	9,6		
	Kaltstart			67	3,0	1152	17,1	199	9,8		
	Hot Soak Losses							83	4,1		
	Diurnal Losses							65	3,2		
	Running Losses							56	2,8		
	Tanklager, Tankvorgang							65	3,2		
Flug- und Schienenverkehr		5	0,2	86	3,8	56	0,8	15	0,7		
Sonstiger Verkehr		11	0,5	208	9,2	186	2,8	59	2,9		
Zwischensumme		74	3,0	1439	63,5	4472	66,5	984	48,6		
Haushalte	Kleinfeuerungen	115	4,7	91	4,0	811	12,1	45	2,3		
	Lösemittelanwendung							167			
Kleinverbraucher	Kleinfeuer.	49	2,0	37	1,7	234	3,5	19	0,9		
Militär	Kleinfeuerungen	3	0,1	1	0,1	16	0,2	2	0,1		
Zwischensumme		167	6,8	130	5,7	1061	15,8	233	11,5		
Landwirtschaft	Düngemittel									88	12,4
	Rinderhaltung									459	64,7
	Geflügelhaltung									33	4,6
	Schweinehaltung									124	17,5
	Schafhaltung									3	0,4
Zwischensumme										706	99,6
Gesamtsumme		2445		2266		6722		2025		709	

CO-Emissionen und fast drei Viertel der NO_x-Emissionen. Die Warmbetriebsemissionen auf Innerortsstraßen machen in den drei Schadstoffklassen etwa ein Viertel der Gesamtemissionen aus. Die durch Kalt- oder Warmstart verursachten Mehremissionen haben – wegen der noch unvollständigen Verbrennung vor Erreichen der optimalen Betriebstemperatur von Motor bzw. Katalysator – vor allem an den CO- und NMVOC-Emissionen einen relativ großen Anteil (27 % und 24 %). Fast ein Viertel der NMVOC-Emissionen wird durch Verdunstungsprozesse verursacht, also durch Hot Soak Losses, Diurnal Losses und Running Losses.

Wie sich die Abgasemission im Warmbetrieb auf die Fahrzeugkategorien aufteilen, illustriert Abb. 5-2. Zu den NO_x-Emissionen tragen Personenkraftwagen und Lastkraftwagen jeweils fast zur Hälfte bei, leichte Nutzfahrzeuge, Krafträder und Mopeds zusammen nur zu 1 %. CO- und NMVOC-Emissionen stammen zum größten Teil von Personenkraftwagen (83 % bzw. 73 %). An diesen Emissionen haben auch Zweirad-Fahrzeuge einen nicht unerheblichen Anteil (jeweils 7 %). Die Emissionen aus den Prozessen Kaltstart, Hot Soak Losses, Diurnal Losses und Running Losses werden fast ausschließlich von Personenkraftwagen verursacht. Das liegt daran, dass diese Prozesse vor allem bei Otto-Motoren emissionsrelevant sind, wäh-

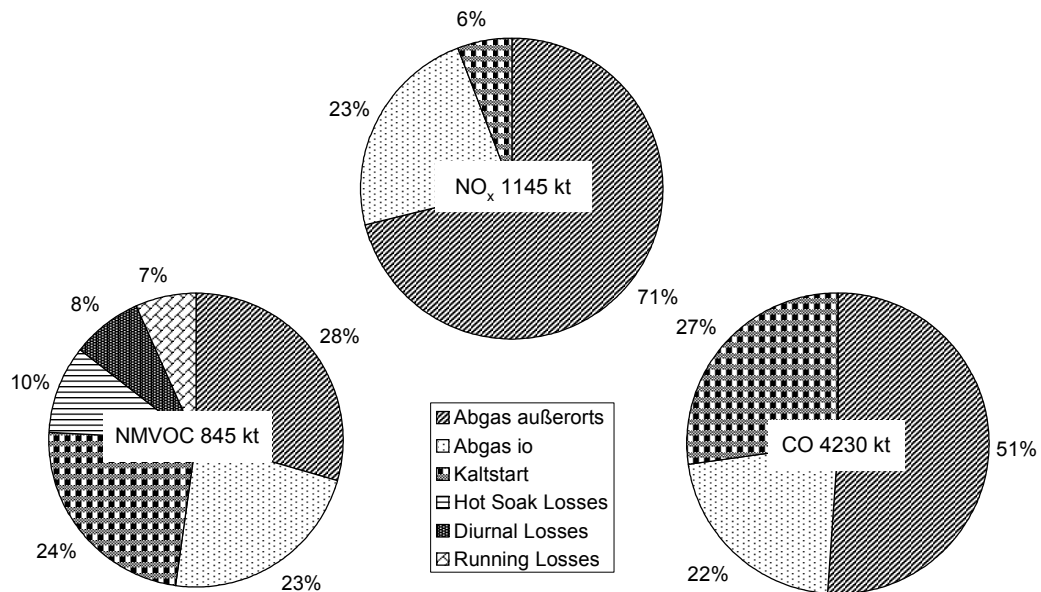


Abb. 5-1: Anteil der einzelnen Emissionsprozesse des Straßenverkehrs an den Gesamtemissionen von NO_x, NMVOC und CO.

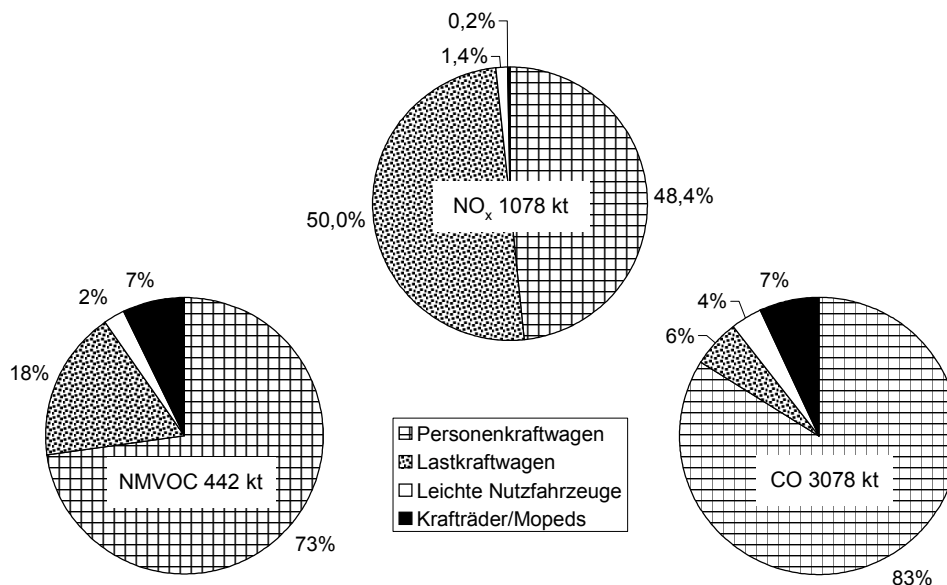


Abb. 5-2: Anteil der Fahrzeugkategorien an den Gesamtemissionen beim Warmbetrieb.

rend sie bei Dieselmotoren nur in sehr geringem Maß zu den Emissionen beitragen. Darüber hinaus sind diese Prozesse bei Lastkraftwagen und Zweirad-Fahrzeugen noch sehr wenig untersucht, so dass kaum Grundlagendaten zur Modellierung der Emissionen zur Verfügung stehen.

Eine Gegenüberstellung der Emissionen mit offiziellen Daten, die vom Umweltbundesamt herausgegeben werden (UMWELTBUNDESAMT 1998), zeigt zumindest in der Summe keine großen Differenzen (Abb. 5-3), obwohl z. T., insbesondere bei der Ermittlung der Emissionen aus genehmigungsbedürftigen Anlagen, erhebliche Unterschiede in den jeweils angewendeten Emissionsmodellen bestehen. Ein weitergehender Vergleich der Emissionen untergliedert nach Emissionssektor oder Emissionsprozess ist nicht ohne weiteres möglich, da sich die Emissions-

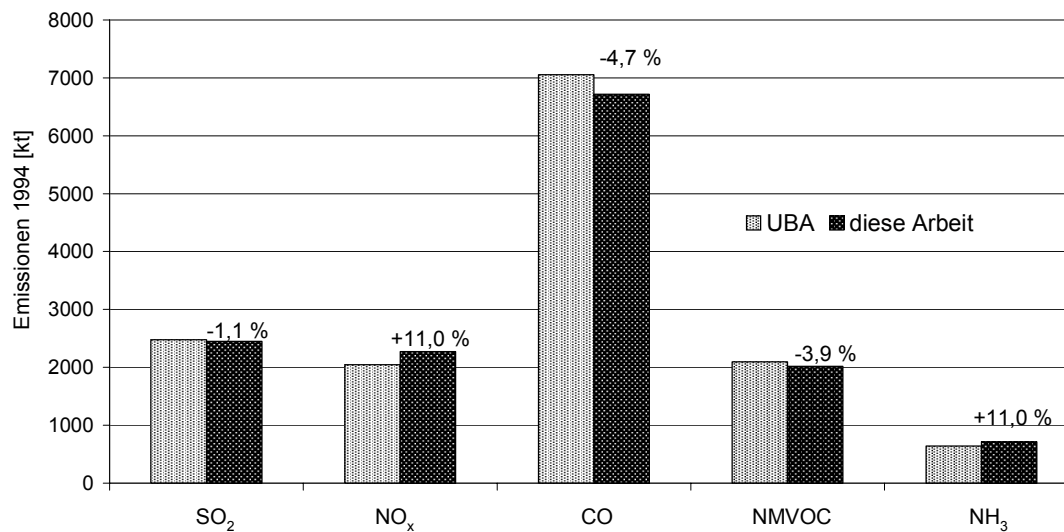


Abb. 5-3: Vergleich der neu berechneten Emissionen von 1994 mit Daten des Umweltbundesamts.

modelle in ihrer Struktur erheblich unterscheiden und eine vollständige Dokumentation der vom Umweltbundesamt verwendeten Methoden nicht veröffentlicht ist. Dass dennoch eine so gute Übereinstimmung zwischen beiden Datensätzen vorliegt, liegt wahrscheinlich an statistischen Rahmendaten, die von beiden Modellen in gleicher Weise verwendet werden (z. B. Einwohnerzahlen, Energiebilanzen, Verkehrszählungen).

5.2 Räumliche Verteilung

Die räumliche Verteilung beruht zum einen auf dem schon von vornherein vorhandenen räumlichen Bezug der Aktivitätsdaten (z. B. Einwohnerzahlen auf Kreisebene), zum anderen auf der nachträglichen Disaggregation durch Indikatordaten, die in einer höheren räumlichen Auflösung vorliegen (z. B. Landnutzungsdaten).

Als Beispiel für die räumliche Auflösung zeigen Abb. 5-4 und Abb. 5-5 die anthropogenen SO₂-, CO-, NMVOC-, NH₃- und NO_x-Emissionen in Deutschland auf einem 3 km x 3 km Raster mit 38.401 Gitterzellen. In quasi-logarithmischer Farbskalierung sind bei den SO₂-, NO_x-, CO- und NMVOC-Emissionen vor allem die Städte und dicht besiedelten Gebiete der Ballungszentren zu erkennen, da dort die meisten anthropogenen Emissionen verursacht werden. Daneben treten aber auch die Autobahnen und Bundesstraßen aufgrund des hohen Anteils der außerörtlichen Straßenverkehrsemissionen deutlich hervor. Eine Art Negativ zu den bebauten und bewaldeten Gebieten bildet das Emissionskataster der NH₃-Emissionen. In großen Städten oder in ausgedehnten Waldgebieten (Pfälzer Wald, Spessart, Schwarzwald, Alpenraum, Harz) sind kaum Emissionen zu verzeichnen.

Neben den gerasterten Emissionen auf dem 3 km x 3 km Gitter sind in Abb. 5-5 auch die NO_x-Emissionen dargestellt, wie sie sich bei einer Gleichverteilung über die Kreisflächen ergeben. Auch hier treten die bevölkerungsreichen Gebiete deutlich hervor. Im Südosten Brandenburgs und Nordosten Sachsens ist zusätzlich der Einfluss der Großkraftwerke zu erkennen, die sich in der gerasterten Abbildung aufgrund ihrer geringen Fläche kaum von den Emissionen dicht besiedelter Gebiete abheben. Aus dem Histogramm in Abb. 5-5, das die Fläche pro Emissionsdichte für beide Kataster angibt, können die Auswirkungen der Verbesserung der räumli-

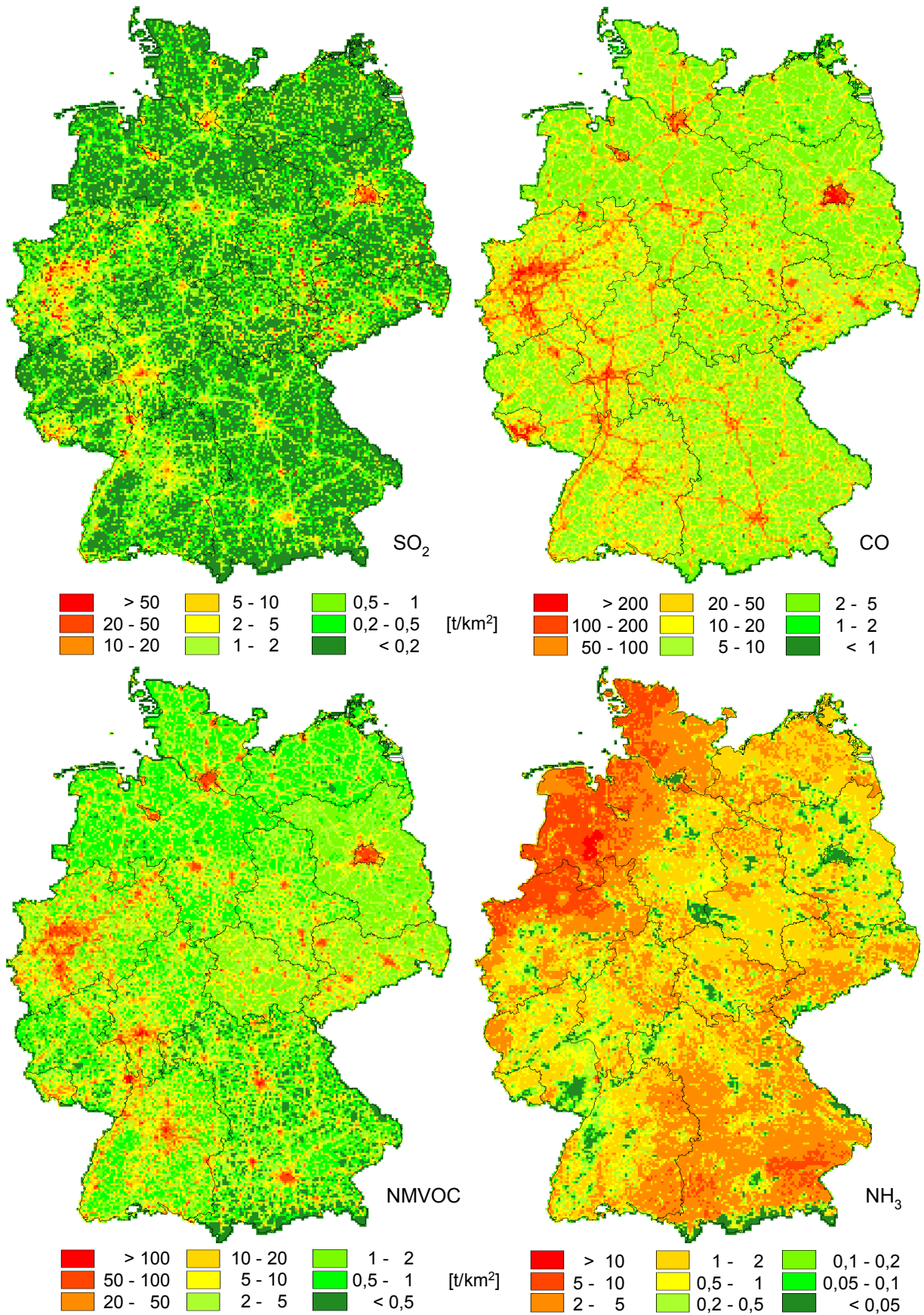


Abb. 5-4: Räumliche Verteilung der anthropogenen Emissionen in Deutschland 1994 auf einem 3 km x 3 km Raster.

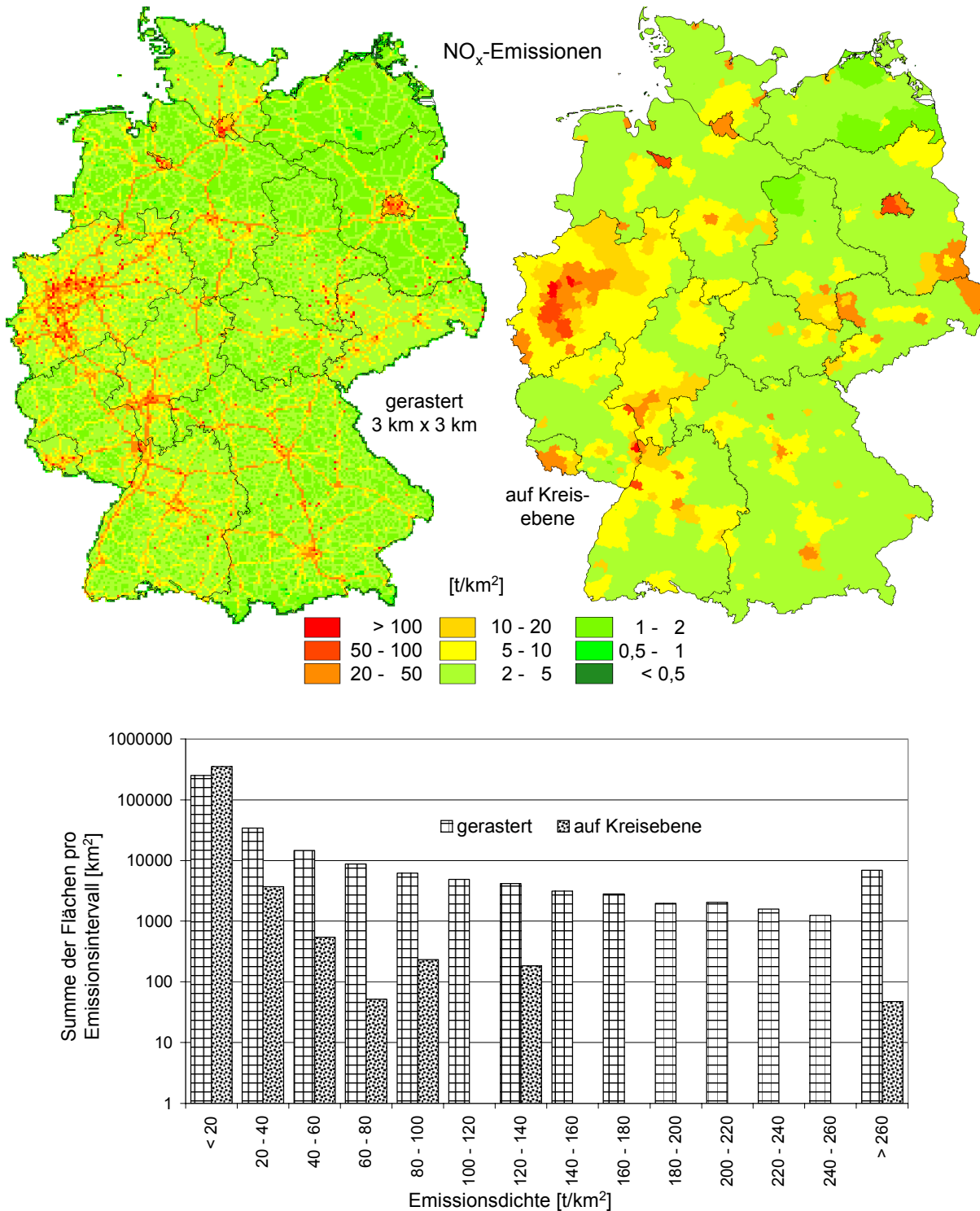


Abb. 5-5: Vergleich der räumlichen Verteilung von NO_x-Emissionen in Deutschland 1994 auf einem 3 km x 3 km Raster und auf Kreisebene. Das untere Diagramm gibt an, wie groß die Flächen pro Emissionsintervall für die beiden verschiedenen räumlichen Verteilungsmethoden sind.

chen Auflösung abgelesen werden: Bei den gerasterten Daten liegt etwa 1/3 weniger Fläche (logarithmische Skala!) der Emissionsdichte in einem Bereich < 20 t/km², als es bei den Emissionen auf Kreisebene der Fall ist, wo alle Punkt-, Linien- und Flächenquellen gleichmäßig über die Kreisfläche verteilt sind. Dafür sind die Emissionsdichteintervalle > 20 t/km² im Fall

der gerasterten Daten mit einer wesentlich größeren Fläche belegt. So haben mehr als 20.000 km² eine Emissionsstärke von > 120 t/km², während es bei den Emissionen auf Kreisebene nur 230 km² sind. Die höhere räumliche Dynamik der gerasterten Emissionen spielt vor allem dann eine Rolle, wenn sie, wie in dieser Arbeit, als Eingangsdaten von atmosphärenchemischen Ausbreitungsmodellen, die nicht-lineare chemische Prozesse simulieren, eingesetzt werden sollen.

Die Aufstellung der Emissionen pro Bundesland in Tabelle 5-2 gibt ebenfalls Aufschluss über die regionale Verteilung in Deutschland. Demnach hatten 1994 Sachsen und Brandenburg mit jeweils etwa einem Drittel den höchsten Anteil an den SO₂-Emissionen, was auf die dort angesiedelten Braunkohlekraftwerke zurückzuführen ist. Daher liegen auch die Emissionen pro Einwohner weit über dem Bundesdurchschnitt von 30 t/(1000 Einwohner). Die NO_x-Emissionen werden zum größten Teil vom Straßenverkehr produziert, der in Nordrhein-Westfalen am stärksten ist. Bezogen auf die Einwohnerzahl liegen hier die Emissionen aller Bundesländer relativ nah beieinander. Mit 10,7 t/(1000 Einwohner) bzw. 13,4 t/(1000 Einwohner) sind die Emissionen in Berlin und Hamburg vergleichsweise niedrig, weil diesen beiden Stadtstaaten aufgrund ihrer geographischen Lage kaum Emissionen auf Fernstraßen zuzurechnen sind. Brandenburg, das nach Mecklenburg-Vorpommern die zweitniedrigste Einwohnerdichte von Deutschland besitzt, wird dagegen von 5 Autobahnen und dem Berliner Autobahnring belastet. Wegen der auf Bremer Stadtgebiet verlaufenden Fernstraßen sind die Emissionen dort pro Einwohner vergleichsweise hoch. Die drei Stadtstaaten weisen die höchsten flächenbezogenen NO_x-Emissionen auf. Die CO- und NMVOC-Emissionen, die ebenfalls zu einem großen Teil auf Straßenverkehrsemissionen, aber auch auf die Verwendung von Lösemitteln zurückzuführen sind, zeigen eine ähnliche Struktur. Der auffallend hohe Wert bei den CO-Emissionen in Nordrhein-Westfalen resultiert neben dem Straßenverkehr aus dem großen Anteil stahlerzeugender Betriebe. Die NH₃-Emissionen aus Viehhaltung und Düngemittelanwendung richten sich nach dem Umfang der landwirtschaftlichen Aktivitäten in den Bundesländern. Sie sind in Bayern, Niedersachsen und Nordrhein-Westfalen sowohl insgesamt am größten, als auch bezogen auf die Einwohnerzahl. Die Emissionsdichte liegt mit 3,7 t/km² in Schleswig-Holstein am höchsten.

5.3 Zeitliche Verteilung

Emissionsdaten in höherer zeitlicher Auflösung als die Jahresgesamtwerte werden benötigt, wenn sie als Eingangsdaten für prozessorientierte atmosphärische Modelle verwendet werden sollen, da die Skalenbereiche für chemische und meteorologische Prozesse bis zu wenigen Sekunden betragen können. Kleinere Zeitschritte als eine Stunde sind meistens nicht sinnvoll, da auch die den Zeitkurven zugrunde liegenden Zeitreihen selten in höherer Auflösung vorliegen. Werden sie vom atmosphärischen Modell gefordert, können sie durch Interpolation der Stundenwerte generiert werden. Insgesamt werden für die Emissionsberechnung in Deutschland 164 stündliche Zeitkurven berechnet und eingesetzt.

Die täglichen anthropogenen Emissionen von Deutschland im Jahresverlauf zeigen Abb. 5-6 bis Abb. 5-10. In allen fünf Abbildungen sind die Wochenenden und Feiertage durch niedrigere anthropogene Aktivität und damit geringere Emissionen erkennbar. Im Fall der NH₃-Emissionen ist dies durch die geringere Ausbringung von Gülle und Kunstdünger an Wochenenden bedingt, während die übrigen Emissionen aus der Viehhaltung keinen Wochengang aufweisen. Die SO₂-Emissionen werden, wie dies auch aus der Zusammenfassung der Jahres-

Tabelle 5-2: Anthropogene Emissionen in Deutschland pro Bundesland

Bundesland	SO ₂			NO _x			CO			NMVOC			NH ₃					
	[kt]	[%]	[t/1000 Einw]	[kt]	[%]	[t/1000 Einw]	[kt]	[%]	[t/1000 Einw]	[kt]	[%]	[t/1000 Einw]	[kt]	[%]	[t/1000 Einw]	[kt]	[%]	[t/1000 Einw]
Schleswig-Holstein	18	0,7	6,8	75	3,3	27,8	188	2,8	69,6	66	3,2	24,2	58	8,2	21,5	58	8,2	21,5
Hamburg	12	0,5	7,1	23	1,0	13,4	76	1,1	44,5	27	1,4	16,1	2	0,2	1,0	2	0,2	1,0
Niedersachsen	69	2,8	8,9	215	9,5	27,9	599	8,9	77,7	175	8,7	22,7	154	21,7	20,0	154	21,7	20,0
Bremen	9	0,4	13,6	24	1,1	35,4	125	1,9	184,2	13	0,6	18,4	1	0,2	1,6	1	0,2	1,6
Nordrhein-Westfalen	224	9,1	12,6	521	23,0	29,2	1639	24,4	92,0	396	19,6	22,2	93	13,1	5,2	93	13,1	5,2
Hessen	34	1,4	5,7	156	6,9	26,1	452	6,7	75,6	150	7,4	25,0	26	3,7	4,4	26	3,7	4,4
Rheinland-Pfalz	28	1,1	7,0	111	4,9	28,0	318	4,7	80,4	104	5,2	26,4	19	2,7	4,8	19	2,7	4,8
Baden-Württemberg	61	2,5	6,0	220	9,7	21,4	669	10,0	65,1	267	13,2	26,0	57	8,1	5,6	57	8,1	5,6
Bayern	63	2,6	5,3	323	14,3	27,1	936	13,9	78,5	303	14,9	25,4	155	21,9	13,0	155	21,9	13,0
Saarland	13	0,5	12,2	44	1,9	40,5	146	2,2	135,0	22	1,1	20,6	2	0,3	2,0	2	0,3	2,0
Berlin	19	0,8	5,6	37	1,6	10,7	157	2,3	45,1	47	2,3	13,6	0	0,0	0,0	0	0,0	0,0
Brandenburg	715	29,2	281,9	151	6,6	59,4	366	5,5	144,5	90	4,4	35,5	30	4,2	11,7	30	4,2	11,7
Mecklenburg-Vorpommern	19	0,8	10,6	54	2,4	29,4	162	2,4	88,7	61	3,0	33,3	36	5,0	19,5	36	5,0	19,5
Sachsen	838	34,3	182,7	158	7,0	34,4	359	5,3	78,4	132	6,5	28,7	28	4,0	6,2	28	4,0	6,2
Sachsen-Anhalt	265	10,8	96,0	89	3,9	32,4	299	4,5	108,5	95	4,7	34,3	26	3,7	9,4	26	3,7	9,4
Thüringen	56	2,3	22,4	65	2,9	25,9	228	3,4	90,4	77	3,8	30,6	22	3,0	8,6	22	3,0	8,6
Summe / Mittelwert	2445		30,0	2266		27,8	6722		82,4	2025		24,8	709		8,7	2445		2,0
			6,8			6,3			18,8			5,7			2,0			

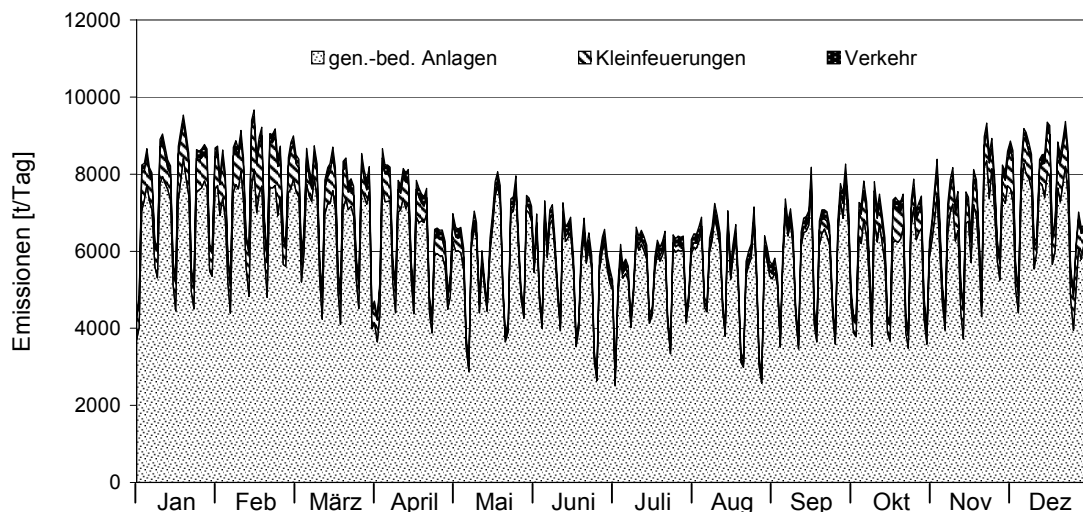


Abb. 5-6: SO₂-Emissionen 1994 von Deutschland in täglicher Auflösung.

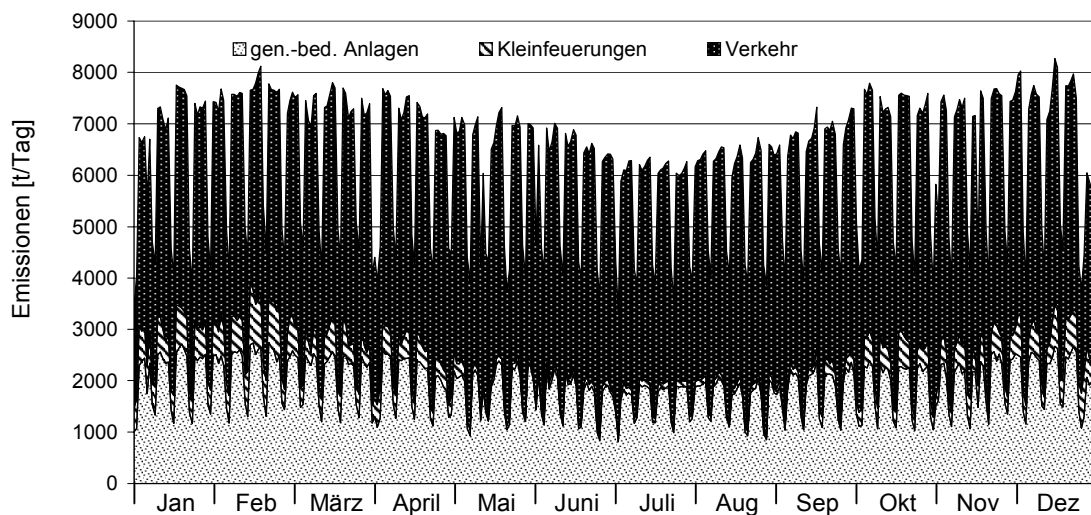


Abb. 5-7: NO_x-Emissionen 1994 von Deutschland in täglicher Auflösung.

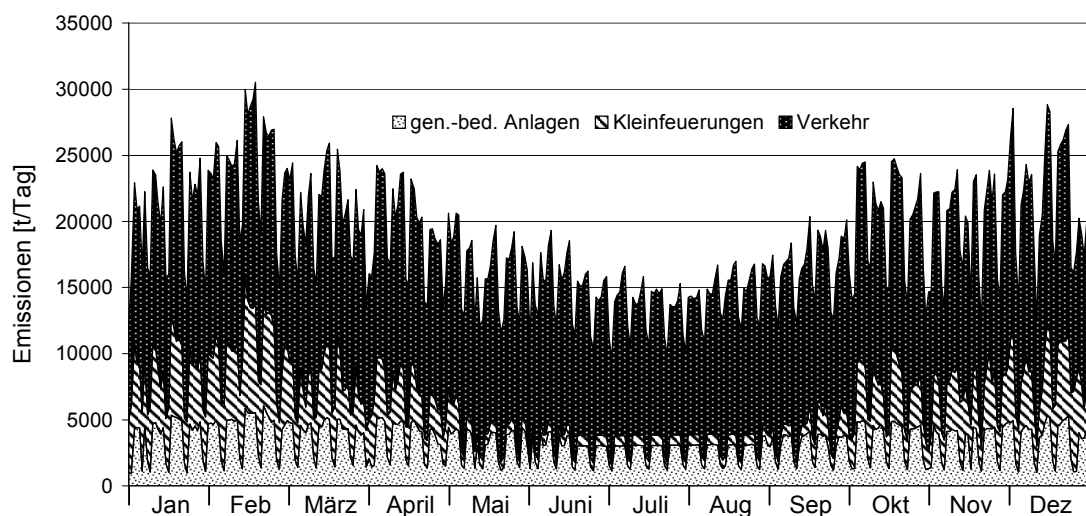


Abb. 5-8: CO-Emissionen 1994 von Deutschland in täglicher Auflösung.

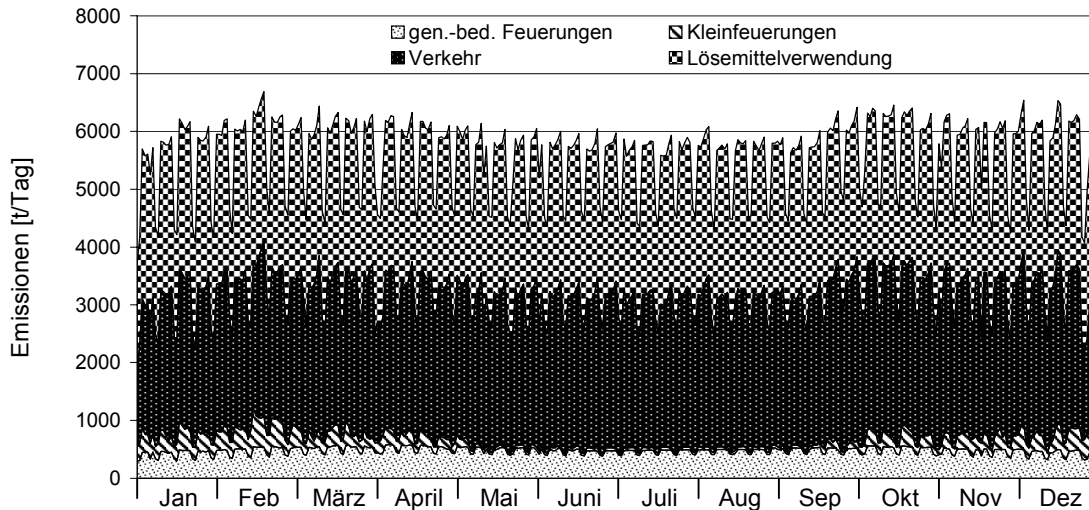


Abb. 5-9: Anthropogene NMVOC-Emissionen 1994 von Deutschland in täglicher Auflösung.

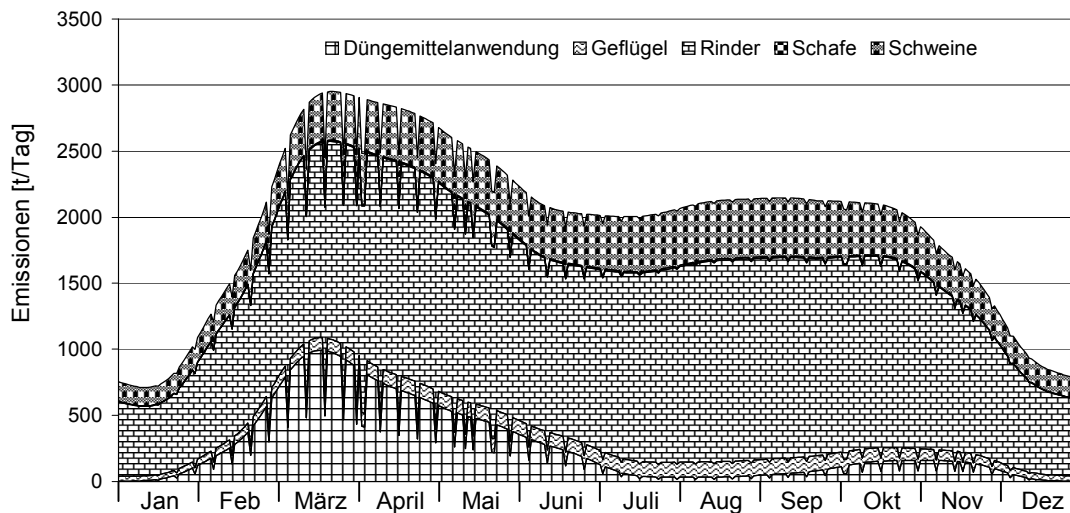


Abb. 5-10: NH_3 -Emissionen aus der Landwirtschaft 1994 in täglicher Auflösung. Die Emissionen aus der Schafhaltung sind wegen ihres geringen Anteils an den Gesamtemissionen von 0,4 % kaum zu erkennen.

emissionen hervorgeht, von den genehmigungsbedürftigen Anlagen dominiert, die zusammen mit den Kleinf Feuerungen den Jahrgang bestimmen. Im Sommer wird weniger Energie benötigt als im Winter, daher liegen die Emissionen während der Sommermonate im Mittel um 19,1 % niedriger als im Winter. Neben den Osterfeiertagen Anfang April fallen die Emissionen auch zwischen den Weihnachtsfeiertagen und Neujahr deutlich ab.

An den NO_x -Emissionen haben Feuerungsanlagen einen wesentlich niedrigeren Anteil, hier überwiegen die Emissionen aus dem Verkehrssektor. Wegen des gering ausgeprägten Jahrgangs des Straßenverkehrs, der für den größten Teil der Verkehrsemissionen verantwortlich ist, sind auch insgesamt die Variationen im Jahresverlauf kleiner als bei den SO_2 -Emissionen. Im Mittel liegen die Emissionen im Sommerhalbjahr um 10,1 % unter denen des Winterhalbjahres.

Die größten Unterschiede zwischen Sommer und Winter zeigen die Emissionen der Kleinf Feuerungsanlagen, die im Sommer überwiegend für die Warmwasserbereitung verwendet werden. Durch ihren relativ hohen Anteil von 15,8 % an den Gesamt- CO -Emissionen sind sie

hauptsächlich für die jahreszeitlichen Schwankungen dieser Emissionen verantwortlich, die im Sommer um 27,7 % unter denen des Winters liegen. Dieser Effekt wird durch die Emissionen des Straßenverkehrs noch verstärkt, da die Kaltstartemissionen, die ca. 27 % der Straßenverkehrsemissionen von CO ausmachen, wesentlich höher als im Sommer sind.

Den Jahrgang mit den geringsten saisonalen Schwankungen zeigen die NMVOC-Emissionen, die zu fast 90 % aus dem Verkehrsbereich und aus der Anwendung von lösemittelhaltigen Produkten stammen. Die NMVOC-Emissionen beider Verursachergruppen sind weniger außentemperaturabhängig als z. B. die Emissionen aus Feuerungsanlagen. Der Effekt der in der kalten Jahreszeit höheren Kaltstartemissionen von Kraftfahrzeugen wird durch die im Sommer höheren Verdunstungsemissionen (Diurnal Losses, Hot Soak Losses, Running Losses) wieder ausgeglichen.

Die in Abb. 5-10 dargestellten täglichen NH_3 -Emissionen der Landwirtschaft sind nach Viehart und Düngemiteleinsetz getrennt ausgewiesen. Der auffallende Anstieg der Emissionen im Frühling ist auf den Einsatz von Düngemitteln vor der Ernteperiode zurückzuführen. Der Emissions-Gipfel im Herbst durch die Düngung von Wintergetreide fällt dagegen wesentlich geringer aus. Im Jahrgang der Viehhaltungsemissionen sind die unterschiedlichen Emissionsprozesse der Haltungsart (Stall, Weide), Lagerung (Gülle, Festmist) und der Ausbringung enthalten. Für die großen jahreszeitlichen Schwankungen sind dabei hauptsächlich die temperaturabhängigen Emissionen der Gülle- bzw. Festmistlagerung verantwortlich.

Beispiele für den Verlauf der NO_x - und NMVOC-Emissionen zeigen Abb. 5-11 und

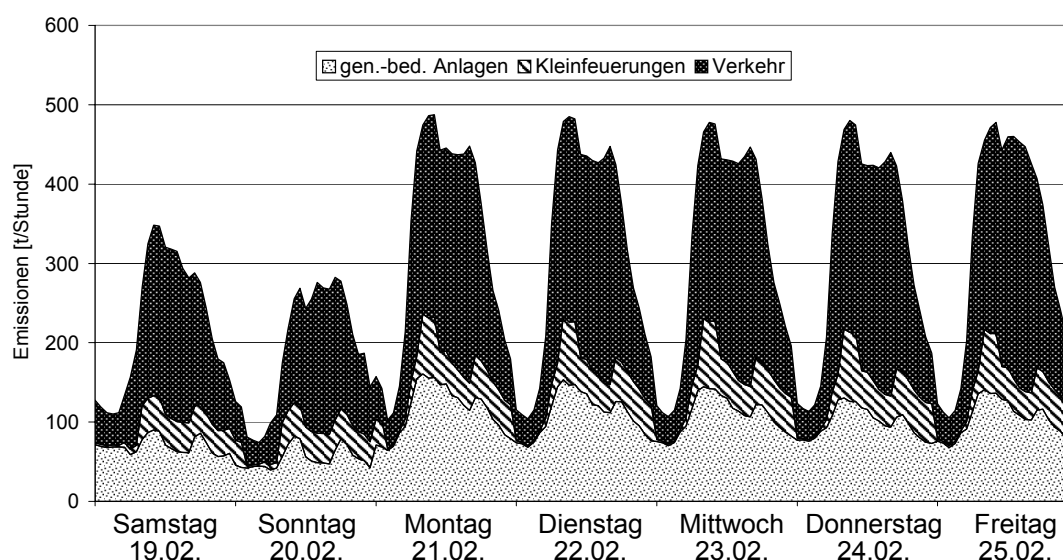


Abb. 5-11: Stündliche NO_x -Emissionen in Deutschland 19.02.94 – 25.02.94.

Abb. 5-12. Im Vergleich zu den Tag-Nacht-Unterschieden von etwa 65 % sind die täglichen Variationen der NO_x - und NMVOC-Emissionen in der Woche vom 19.02. – 25.02.1994 eher gering. Die Zeitkurven der Kraftwerke und anderen genehmigungsbedürftigen Anlagen weisen mittags und nachmittags zur Zeit der erhöhten Stromnachfrage lokale Maxima auf, ebenso die der Kleinfeuerungsanlagen. Der Tagesverlauf der NMVOC-Emissionen aus der Lösemittelanwendung ist eher gleichmäßig entsprechend einer konstanten Anlagenauslastung.

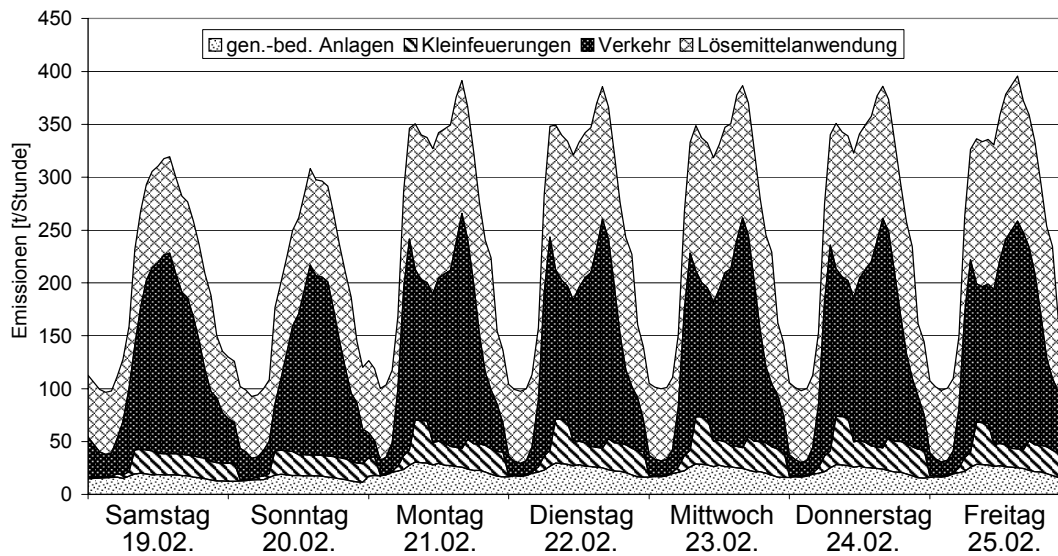


Abb. 5-12: Stündliche NMVOC-Emissionen in Deutschland 19.02.94 – 25.02.94.

Am Samstag und am Sonntag liegen die Emissionen generell niedriger (NO_x : – 35 %, NMVOC: – 23 %). Hauptsächlich durch die fehlenden Verkehrsspitzen am Morgen und am Nachmittag bildet sich nur ein breites Maximum um die Mittagszeit aus. Der abendliche Emissionsrückgang verläuft an Wochenenden nicht ganz so steil wie an den Werktagen.

Eine genauere Analyse der stündlichen Straßenverkehrsemissionen ist in Abb. 5-13 und

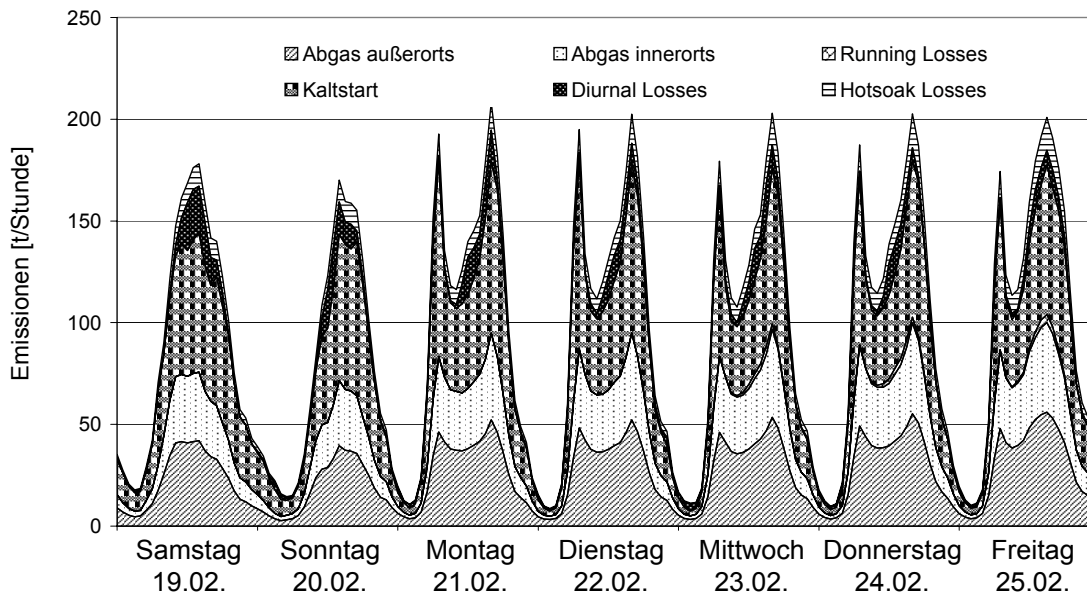


Abb. 5-13: Stündliche NMVOC-Emissionen des Straßenverkehrs im Winter.

Abb. 5-14 dargestellt. Hierzu wurden die NMVOC-Emissionen aufgeschlüsselt nach den einzelnen Verursacherprozessen für eine Winter- und eine Sommerwoche berechnet. Die Werktage in der Winterwoche zeigen zwei Emissionsspitzen, die auf den Berufsverkehr am Morgen und am späten Nachmittag zurückzuführen sind. Diese Charakteristik fehlt am Wochenende wegen des dort ausbleibenden Pendlerverkehrs. Zu erkennen ist auch, dass am Freitag und Samstag die Emissionen aufgrund des Freizeitverkehrs weiter in den nächsten Tag hineinrei-

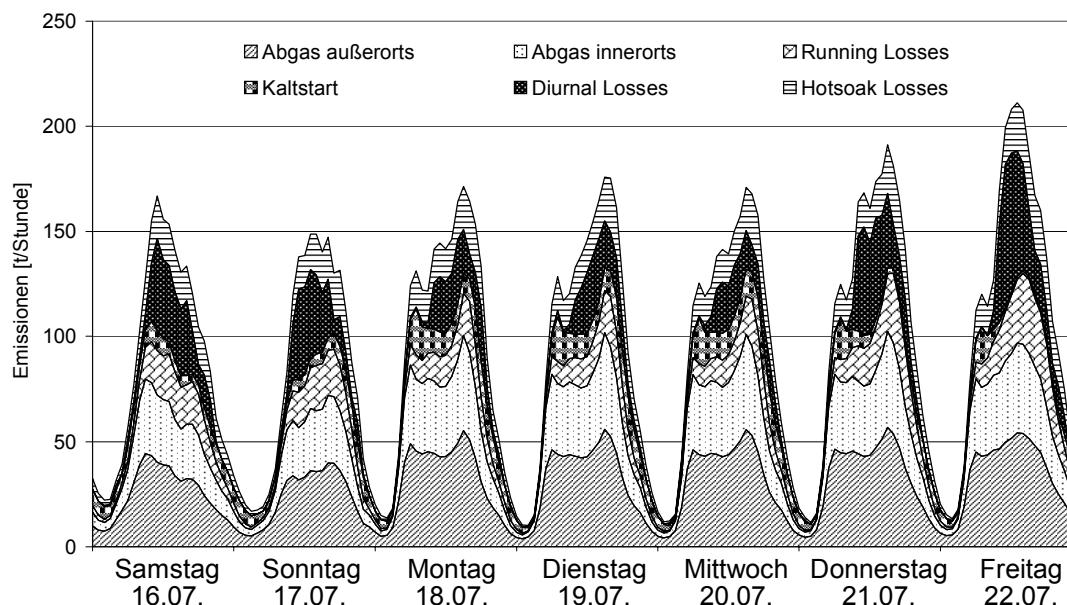


Abb. 5-14: Stündliche NMVOC-Emissionen des Straßenverkehrs im Sommer.

chen als an den übrigen Wochentagen. Mit 40 % Anteil an den Gesamtemissionen ist der Kaltstart der dominierende Emissionsprozess in der Winterwoche. Die Verdunstungsemissionen (Diurnal Losses, Hot Soak Losses, Running Losses) tragen dagegen nur mit 12 % zu den Gesamtemissionen bei. Im Sommer dreht sich dieses Verhältnis beinahe um: Hier sind wegen der höheren Außentemperaturen nur 8 % der Emissionen dem Kaltstart zuzurechnen, während die Verdunstungsemissionen einen Anteil von 38 % ausmachen. Das morgendliche Maximum der Verkehrsstärke, das durch den Verlauf der inner- und außerörtlichen Abgasemissionen wiedergegeben wird, ist in der betrachteten Sommerwoche nicht so ausgeprägt wie in der Winterwoche, dafür kommt ein kleines Mittagsmaximum hinzu. Diese Struktur wird allerdings von den temperaturabhängigen Verdunstungsemissionen überlagert. An den Emissionen am Donnerstag und Freitag wird der Einfluss der Temperatur auf die Emissionsprozesse besonders deutlich: Am Morgen, bei relativ niedrigen Temperaturen entstehen in beträchtlichem Maße Kaltstartemissionen, während die Tankatmung (Diurnal Losses) noch nicht eingesetzt hat. Um die Mittagszeit fallen die Kaltstartemissionen mit steigender Temperatur immer mehr ab, dafür trägt jetzt die Tankatmung wesentlich zu den NMVOC-Emissionen bei.

5.4 Stoffliche Auflösung

Zur Weiterverarbeitung der NMVOC-Emissionen in Chemie-Transport-Modellen müssen diese aufgrund ihrer unterschiedlichen chemischen Eigenschaften auf Einzelstoffe oder Stoffklassen aufgeteilt werden. In Kapitel 4.3 wurde schon auf die Literaturquellen der prozessabhängigen VOC-Profile verwiesen. Das für diese Arbeit resultierende Gesamtprofil Deutschlands in einer Klasseneinteilung nach MIDDLETON et al. (1990) ist in Tabelle 5-3 wiedergegeben. Die Angabe der OH-Reaktionskonstante dient als Hinweis auf die Reaktivität der Stoffklassen. Alkane bilden mit zusammen 36,8 % den größten Anteil an den Gesamtemissionen, gefolgt von den Aromaten mit 21,5 %. Die sauerstoffhaltigen VOC sind – soweit nicht explizit angegeben – in die Klassen der sonstigen VOC eingruppiert.

Tabelle 5-3: NMVOC-Emissionen in Deutschland 1994 aufgeteilt nach Stoffklassen

Emissionsklasse	r^a (10000/ppm-min)	Emissionen 1994	
		[t]	[%]
Ethan	0,041	20828	1,0
Propan	0,180	15245	0,8
Alkane ($r=0.25 - 0.50$) ^a	0,369	121496	6,0
Alkane ($r=0.50 - 1.00$)	0,668	365099	18,0
Alkane ($r=1.00 - 2.00$)	1,315	220489	10,9
Alkane ($r>2.00$)	2,339	1633	0,1
Ethen	1,242	91497	4,5
Propen	3,817	33946	1,7
1-Alkene	4,714	26221	1,3
x-Alkene ($x>1$)	9,881	9119	0,5
1-Alkene / x-Alkene-Gemisch	7,110	45237	2,2
Benzol, Chlorbenzole	0,185	42151	2,1
Aromaten ($r<2.00$)	0,919	150406	7,4
Aromaten ($r>2.00$)	4,086	180838	8,9
Phenole, Kresole	5,620	15807	0,8
Styrole	0,902	46515	2,3
Formaldehyd	1,330	38039	1,9
Aldehyde $>C1$	2,390	32502	1,6
Aceton	0,035	20522	1,0
Ketone $>C3$	0,268	27924	1,4
Ethin	0,115	34834	1,7
halogenierte Alkene	0,025	16665	0,8
unreaktive VOC	-	5787	0,3
son. VOC ($r<0.25$)	0,137	24928	1,2
son. VOC ($r=0.25 - 0.50$)	0,496	86442	4,3
son. VOC ($r=0.50 - 1.00$)	0,801	142838	7,1
son. VOC ($r>1.00$)	1,552	80748	4,0
nicht identifizierte VOC ^b	-	117822	5,8
nicht eingruppierte VOC ^c	-	9374	0,5
	Summe	2024951	

^a) OH-Reaktionskonstante nach MIDDLETON et al. (1990)

^b) Nicht als Einzelstoffe identifizierbar, Beitrag zur Ozonbildung gering

^c) Nicht in die anderen Stoffklassen eingruppiert, Beitrag zur Ozonbildung gering

5.5 Zukünftige Entwicklung der Emissionen

Für längerfristige Luftreinhaltestrategien ist es notwendig, die Entwicklung der Emissionen über einen längeren Zeitraum hinweg abzuschätzen. Dazu wird in der Regel anhand eines Basisjahres ein Szenario erstellt, das die Veränderung der Emissionsprozesse innerhalb dieses Zeitraums abbildet. Für jede Aktivität müssen zwei Entwicklungen untersucht werden: Zum ei-

nen kann sich die emissionsverursachende Größe selbst ändern, z. B. die Fahrleistung, die pro Jahr erbracht wird. Zum anderen können sich durch technische Maßnahmen die Emissionsfaktoren eines Emissionsprozesses ändern, z. B. durch Installation einer Abluftreinigungsanlage in einem Kraftwerk.

Entsprechende Szenarien für die emissionsrelevanten Aktivitäten sind Inhalt umfangreicher Studien (z. B. IIASA 1995, 1998; HOLTSMANN, 1997). Um aufbauend auf den Berechnungen für das Jahr 1994 die Emissionen von Ozonvorläufersubstanzen im Jahr 2010 abzuschätzen, werden verschiedene Quellen herangezogen. Eine Untersuchung zur Entwicklung des zukünftigen Energieverbrauchs und der energiebedingten Emissionen (PROGNOS, 1999) dient als Grundlage für die Feuerungsemissionen in Industrie, Haushalt und Kleinverbrauch, eine weitere Studie (PROGNOS, 1993) für Emissionen aus industriellen Produktionsprozessen. Die voraussichtliche Entwicklung der Fahrleistung, des Kraftfahrzeugbestandes und der Emissionsfaktoren konnten aus IFEU (1999) übernommen werden. Der Berechnung der Lösemittelmmissionen im Jahr 2010 liegen Arbeiten, die im Rahmen des Troposphärenforschungsprogramms durchgeführt wurden (THELOKE et al., 2000), zugrunde. Sie berücksichtigen die prognostizierte Entwicklung der lösemittelhaltigen Produkte in allen relevanten Branchen sowie die Auswirkungen der schon verabschiedeten EU-Richtlinie 99/13/EG (EU, 1999), die zu einer Minderung der Emissionen beitragen könnten.

Unter Verwendung dieser Datenquellen wurden Fortschreibungsfaktoren von 1994 auf das Jahr 2010 berechnet und so das in Abb. 5-15 dargestellte Trend-Szenario der Emissionen

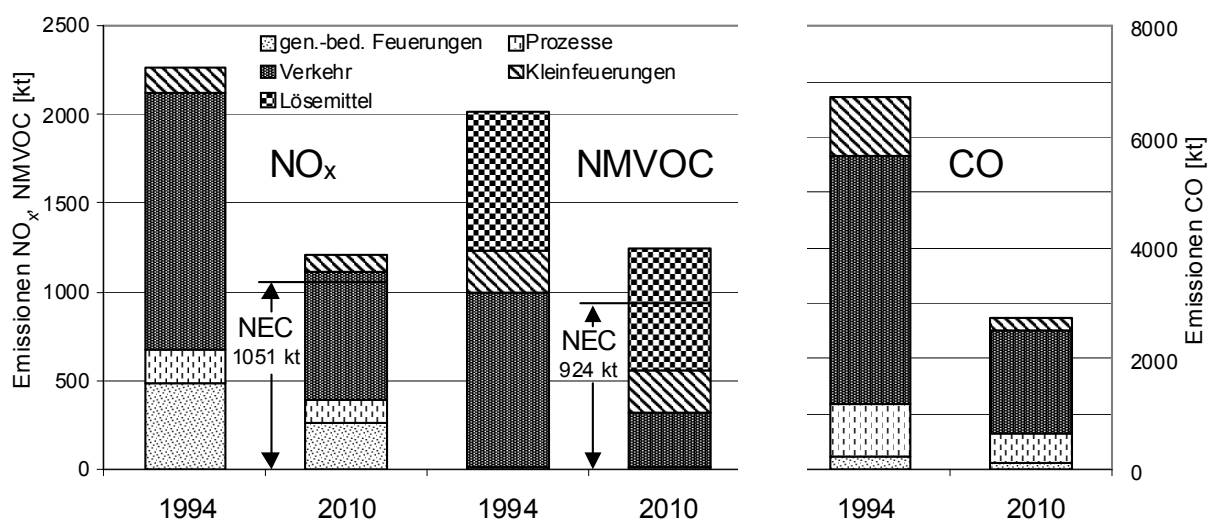


Abb. 5-15: Trend-Szenario: Entwicklung der NO_x-, NMVOC- und CO-Emissionen bis 2010.

von NO_x, NMVOC und CO erstellt. Bei allen drei Schadstoff(-grupp)en ist demnach bis zum Jahr 2010 ein Rückgang der Emissionen zu erwarten, am stärksten bei CO mit –58,9 %, gefolgt von NO_x mit –46,5 % und NMVOC mit –38,2 %. Die Emissionsverringerung wird vor allem durch emissionsmindernde Maßnahmen im Verkehrsbereich bewirkt. In diesem Sektor werden die Emissionen von NO_x um 718 kt (–49,9 %), die von NMVOC um 671 kt (–68,2 %) und die CO-Emissionen um 2596 kt (–58,1 %) gesenkt. In derselben Zeit gehen dagegen die NMVOC-Emissionen nur um 11,9 % zurück, da über die Einhaltung der Lösemittelrichtlinie hinaus kein weiterer Anreiz zur Durchführung von emissionsmindernden Maßnahmen besteht. Auch bei den genehmigungsbedürftigen Anlagen ist ein Emissionsrückgang zu verzeichnen, bei NO_x um

224 kt (-24,4 %). Dieser Effekt beruht neben dem Kraftwerksneubau auch auf der Ertüchtigung von Rauchgasreinigungsanlagen, die im Jahr 1994 vor dem Geltungsbeginn der TA-Luft in den neuen Bundesländern (1996) noch nicht abgeschlossen war. Die Verringerung der CO-Emissionen aus Kleinf Feuerungsanlagen ist auf die Umstellung von festen auf flüssige oder gasförmige Brennstoffe in den neuen Bundesländern zurückzuführen. Trotz der erheblichen Minderungen werden in diesem Szenario die Emissionsgrenzen der vorgeschlagenen EU-NEC-Richtlinie (EU, 2000) im Jahr 2010 für NO_x und NMVOC nicht eingehalten. Sie werden für NO_x noch um 15,4 % und für NMVOC um 34,7 % überschritten. CO-Emissionen werden durch die EU-NEC-Richtlinie nicht begrenzt.

5.6 Unsicherheitsbetrachtungen

Die Ergebnisse von Modellen müssen stets überprüft werden, um zu belegen, ob die durch das Modell gewonnenen Erkenntnisse einen realen Bezug zur Wirklichkeit haben. Ein erster Schritt ist die Analyse der Unsicherheiten, die sich im Modellresultat durch die Verwendung von fehlerhaften oder ungenauen Eingangsdaten ergeben (SCHNEIDER, 1994; SAEGER, 1994; ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY, 1996; WINIWARTER et al., 2000; PLACET et al., 2000). Allerdings entspricht der Aufwand, um die Unsicherheiten eines komplexen Emissionsmodells quantitativ abschätzen zu können, ungefähr dem der Modellentwicklung und -anwendung. Das liegt vor allem an der Vielzahl von statistischen Daten, die in das Modell eingehen und für die es keine Genauigkeitsabschätzungen gibt. Darüber hinaus werden vielfältige Abgleichschritte vorgenommen, die die Verfolgung der Fehlerfortpflanzung erschweren. Parallel zu der vorliegenden Arbeit wurden am IER Studien zur Ermittlung von Unsicherheiten der Emissionsberechnung durchgeführt (KÜHLWEIN et al., 1999; KÜHLWEIN and FRIEDRICH, 2000), mit Schwerpunkt auf NO_x - und NMVOC-Emissionen. Für die Quellgruppe des Straßenverkehrs wurden mit der statistischen Methode der Fehlerfortpflanzung die Auswirkungen von Unsicherheiten in den Eingangsdaten auf die Modellergebnisse berechnet. Für die Emissionen aus Lösemittelanwendung konnte diese Methode nicht verwendet werden, da kaum Informationen zu den Unsicherheiten der Grundlagendaten vorlagen. Hier wurden zunächst qualitative Fehler-„Noten“ vergeben und diese dann mit Hilfe von Expertenschätzungen in Fehlerbandbreiten überführt.

Nach den Ergebnissen dieser Studien liegen die Fehler (einfache Standardabweichung) der Jahresemissionen im Straßenverkehrssektor für NO_x bei etwa ± 13 %, für NMVOC bei ± 17 %. Wird für diese Jahresemissionen eine räumliche und zeitliche Verteilung durchgeführt, können die Variationskoeffizienten bis zu 100 % (Lastkraftwagen, geringe Verkehrsstärke) betragen. Im Lösemittelbereich liegen die Unsicherheiten mit bis zu +164/-100 % noch höher.

Aus derartigen Unsicherheitsangaben lassen sich Aussagen darüber ableiten, welche Berechnungsschritte im Emissionsmodell mit höheren Unsicherheiten behaftet sind als andere. So ist z. B. die räumliche Unsicherheit von Punktquellen geringer als die von Linienquellen oder die zeitliche Unsicherheit des Autobahnverkehrs geringer als die der Verwendung von Lösemitteln. Keine Aussagen können jedoch über die Relevanz der Unsicherheiten voneinander unabhängiger Eigenschaften der Emissionsdaten getroffen werden, z. B. ob eine Unsicherheit in der zeitlichen Auflösung von NO_x -Emissionen des innerörtlichen Straßenverkehrs von 30 % „besser“ ist als eine Unsicherheit von 50 % in der räumlichen Auflösung der CO-Emissionen aus Kleinf Feuerungen. Solche Aussagen sind allerdings von großem Nutzen, da ein Emissionsmodell zu einem Großteil auf statistisch erhobenen Daten beruht und daher viel Raum für Ver-

besserungen bleibt. Aufgrund des hohen Zeitaufwands, der für die Erfassung von Grundlagendaten und die Entwicklung der dazu passenden Emissionsberechnungsalgorithmen notwendig ist, ist es wichtig, den richtigen Ansatzpunkt im Modell zu finden, bei dem eine Weiterentwicklung die größte Qualitätsverbesserung der Ausgabedaten bewirkt.

Es stellt sich somit folgende Frage: Welche Bestandteile des Emissionsmodells sind für eine Luftqualitätsuntersuchung wichtig und welche weniger? Entsprechende Untersuchungen können nur mit Sensitivitätsrechnungen an einem gekoppelten Modellsystem Emissionsmodell / Chemie-Transport-Modell (CTM) durchgeführt werden, da die Zielgrößen von Luftreinhaltestrategien letztendlich die Schadstoffkonzentration und -deposition und nicht die Emissionen sind. Die Sensitivitäten der Konzentrationen auf Veränderungen einzelner Berechnungsschritte im Emissionsmodell können dann als Bewertungsmaßstab für die Relevanz des jeweiligen Berechnungsschritts für die Qualität der Ausgabedaten des Gesamtsystems herangezogen werden. Im folgenden Kapitel werden Sensitivitätsuntersuchungen für das in der vorliegenden Arbeit entwickelte Emissionsmodell für Ozonvorläufersubstanzen mit einem Chemie-Transport-Modell der Universität Köln beschrieben und ihre Ergebnisse präsentiert.

6 Sensitivitätsrechnungen mit einem Chemie-Transport-Modell

In den vorhergehenden Kapiteln wurde beschrieben, mit welchen Methoden und Eingangsgrößen die anthropogenen Emissionen in Deutschland berechnet werden können. Dabei lag die Zielsetzung zu Grunde, möglichst alle Emissionsprozesse im höchsten Detaillierungsgrad für den regionalen Maßstab – soweit mit begrenzten Ressourcen möglich – zu erfassen. Die mit Hilfe dieser Methoden berechneten Emissionskataster sollen nun die Eingangsdaten für Chemie-Transport-Modelle bilden.

Wie schon in Kapitel 5.6 angesprochen, lassen Kenntnisse über die Unsicherheiten von Emissionskatastern noch keine Aussagen über die Eignung der Daten für die Verwendung in Chemie-Transport-Modellen (CTM) zu, da erst die Auswirkungen der Unsicherheiten im CTM geprüft werden müssen. Genau das ist Sinn und Zweck der in diesem Kapitel beschriebenen Sensitivitätsrechnungen. Am Ende dieser Experimente sollen Aussagen darüber gemacht werden können, auf welche Parameter das CTM besonders stark reagiert. Im Folgenden wird der verwendete Ansatz beschrieben und angewandt, eine zusammenfassende Darstellung wird in Kapitel 6.7 gegeben. Eine detaillierte Auflistung aller Sensitivitätsergebnisse ist im Anhang enthalten.

6.1 Methode

Ausgangspunkt ist die Frage, wo in einem komplexen Emissionsmodell, das in ein System von Modellen zur Simulation von Emission, Ausbreitung, Umwandlung, Konzentration und Deposition eingebettet ist, die bedeutendsten Ursachen für Unsicherheiten in den Ergebnissen des Gesamtsystems vorliegen. Da Chemie-Transport-Modelle sehr viele Ausgabedaten produzieren, müssen zunächst eine oder mehrere Zielgrößen festgelegt werden, für die Unsicherheiten betrachtet werden sollen. Im Rahmen dieser Arbeit wird nur Ozon als Zielgröße verwendet, da es eine Schlüsselstellung sowohl in der aktuellen politischen Diskussion zu Luftverunreinigungen als auch im Bereich der Troposphärenforschung einnimmt. Darüber hinaus ist das in dieser Arbeit vorgestellte Emissionsmodell gerade für Systeme zur Modellierung von Ozonkonzentrationen besonders geeignet.

Der „Versuchsaufbau“ ist in Abb. 6-1 dargestellt: Mit durchgezogenen Linien ist der Teil des Modellsystems gekennzeichnet, wie er üblicherweise bei modellgestützten Luftqualitätsuntersuchungen realisiert wird, wobei in der Regel neben Ozon auch die Konzentrationen anderer Spurenstoffe und ebenso die meteorologischen Felder ausgewertet werden. Für die Sensitivitätsrechnungen wird das Emissionsberechnungsmodell in verschiedenster Weise variiert und die Änderungen der Ozonkonzentrationen mit dem Referenzfall, der sich aus einem Modelllauf mit den genauest möglichen Emissionen ergibt, verglichen (gestrichelte Linien). Aus diesem Vergleich lassen sich dann die einzelnen Teilbereiche des Emissionsmodells in ihrer Relevanz für die Qualität der Emissionsdaten einordnen.

6.2 Randbedingungen der Sensitivitätsexperimente

Für eine umfassende Untersuchung des für Deutschland entwickelten Emissionsmodells ist es sicher wünschenswert, möglichst viele verschiedene Chemie-Transport-Modelle mit langen Episoden in verschiedenen Auflösungsstufen für alle Regionen in Deutschland zu verwenden. Dies ist zum derzeitigen Stand der Forschung aber mit einer Reihe von Problemen verbunden:

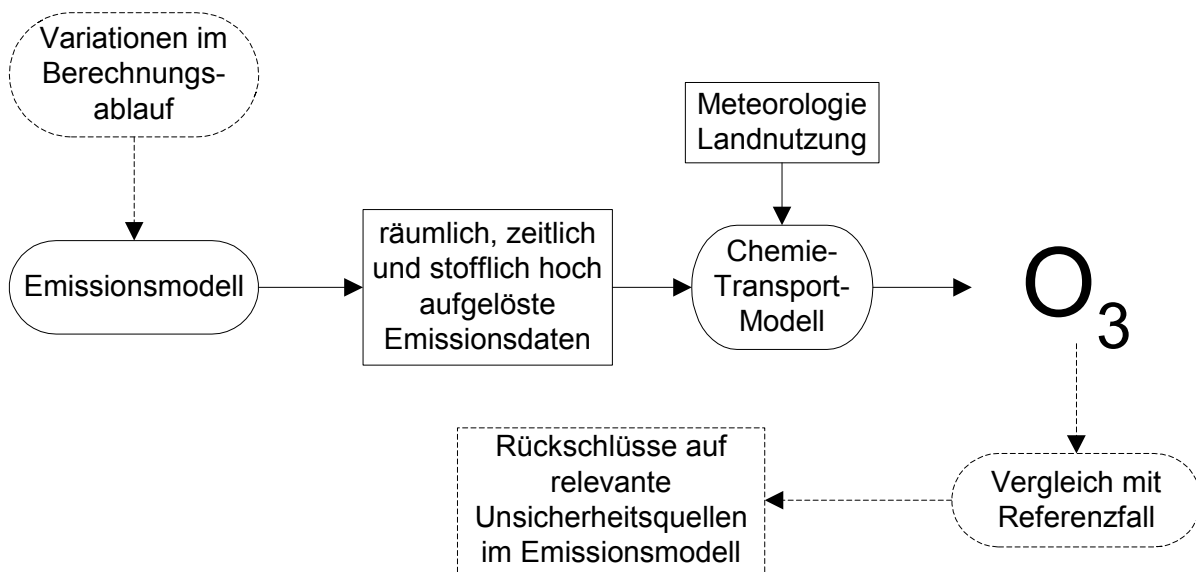


Abb. 6-1: Schematische Darstellung der Sensitivitätsrechnungen. Die durchgezogenen Linien kennzeichnen die grundlegende Ozonmodellierung mit Emissionsmodell und CTM, die gestrichelten die zusätzlichen Arbeitsschritte für die Sensitivitätsrechnungen.

- In Chemie-Transport-Modellen ist die räumliche Auflösung nicht beliebig skalierbar, oft werden die Modelle nur innerhalb bestimmter Auflösungsstufen eingesetzt. Kleinräumige Modelle benötigen Randwerte von größerskaligen Modellen und sind somit von deren Ergebnisqualität abhängig.
- Im Vergleich untereinander kommen verschiedene Chemie-Transport-Modelle trotz weitgehend gleicher Eingangsdaten häufig zu sehr unterschiedlichen Ergebnissen. Daher ist es sinnvoll, Sensitivitätsrechnungen nur mit Modellen durchzuführen, die möglichst realitätsnahe Ergebnisse produzieren.
- Die Qualität von Chemie-Transport-Modellen kann neben der prozessorientierten Analyse durch den Vergleich der Simulationsergebnisse mit Messdaten beurteilt werden. Messungen zur umfassenden Evaluierung von Chemie-Transport-Modellen sind aber sehr zeitaufwendig und mit hohen Kosten verbunden. Deshalb sind die meisten Chemie-Transport-Modelle nur für vergleichsweise kurze Episoden (mehrere Tage bis Wochen) evaluiert.
- Der Rechenzeitaufwand komplexer Chemie-Transport-Modelle ist sehr hoch. Auch auf Hochleistungsrechnern benötigen die Modelle mehrere CPU-Stunden für die Simulation einer wenige Tage umfassenden Episode. Ähnlich aufwändig ist die zuvor notwendige Simulation der benötigten meteorologischen Felder mit Hilfe eines Meteorologiemodells.
- Chemie-Transport-Modelle werden meistens an Forschungseinrichtungen entwickelt und stellen hohe Anforderungen an den Anwender in wissenschaftlicher und informationstechnischer Hinsicht. Die Einrichtung eines Modells bis zum operationellen Einsatz kann mehrere Wochen bis Monate in Anspruch nehmen.

Aufgrund dieser Schwierigkeiten werden für die hier durchzuführenden Sensitivitätsrechnungen folgende Randbedingungen festgelegt:

Wahl einer geeigneten Episode: Um den Rechenaufwand bei Berücksichtigung möglichst vieler Sensitivitätsfälle vertretbar zu halten, werden alle Berechnungen für eine zweitägige Episode durchgeführt (25.07.1994 – 26.07.1994). Diese Fokussierung auf zwei Tage des Jahres

1994 bedeutet eine erhebliche Verringerung der verwertbaren Ausgabedaten sowie des für jeden Rechenlauf erforderlichen Zeitaufwands im Vergleich zu sonst üblichen Simulationsepisoden von mehreren Tagen. Zudem ist diese Zwei-Tages-Episode Teil der FLUMOB¹-Messkampagne (ABRAHAM et al., 1995), die vom 23.07.94 bis 27.07.94 in der Region Berlin-Brandenburg mit einem Untersuchungsgebiet von ca. 100 x 100 km² stattfand. Während dieses Zeitraums wurden bodennahe Ozonkonzentrationen von mehr als 200 µg/m³ gemessen, die damit die gesundheitlich relevante Grenze von 120 µg/m³ (WHO, 1999) und den Schwellenwert zur Unterrichtung der Bevölkerung von 180 µg/m³ (22. BIMSCHV, 1994) überschreiten. Daher ist diese Episode für lufthygienische Untersuchungen besonders interessant.

Chemie-Transport-Modell: Für die hier beschriebenen Sensitivitätsrechnungen wird das EURAD²-CTM eingesetzt, das inklusive der notwendigen Eingangsdaten vom Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln zur Verfügung gestellt wurde. Dieses Modell wurde 1987 initiiert und seitdem ständig weiterentwickelt (siehe auch Modellkurzbeschreibung in Kapitel 6.3). Für die vorliegenden Arbeiten ist es aufgrund verschiedener Eigenschaften besonders geeignet:

- Nestfähigkeit: Mit einer entsprechenden Initialisierung kann in die Untersuchungsgebiete hineingezoomt werden. Dadurch sind Untersuchungen für verschiedene räumliche Auflösungen möglich.
- Räumliche Bandbreite: Standarduntersuchungen in Europa beginnen bei einem europaweiten Gitter mit einer Auflösung von ca. 50 km. In vier Nest-Stufen kann auf Gebiete von mehreren 1000 km² bei einer Auflösung von 2 km fokussiert werden. Daher ist das Modell auch für kleinräumige Untersuchungen nicht auf Randwerte anderer Modelle angewiesen.
- Die Rechenzeit für einen Modelllauf liegt bei ca. drei Stunden (Nest 3 bei 56 x 68 Gitterpunkten) auf einem NEC-SX5-Vektorrechner (16 CPU, 4GFLOPS peak performance, 32 GByte Hauptspeicher, Weltranglistenplatz 167 im November 2000) und damit noch in einem Bereich, der die Durchführung vieler Einzelberechnungen erlaubt.
- Das Standard-EURAD-CTM ist in FORTRAN implementiert und wird über Shellskripte gesteuert. Daher ist es relativ leicht portierbar.
- Zusätzlich zum CTM wurden von der EURAD-Arbeitsgruppe alle notwendigen Zusatzprogramme (Berechnung der Fahnenüberhöhung, Berechnung der biogenen Emissionen, Umrechnung von VOC-Stoffklassen) und Eingangsdaten (meteorologische Felder, Landnutzung, J-Values) in drei räumlichen Auflösungsstufen zur Verfügung gestellt. Dadurch wird die Vorarbeit erheblich erleichtert.
- Das EURAD-CTM wurde im Rahmen des Troposphärenforschungsprogramms (GSF, 2000) für vier verschiedene Episoden evaluiert. Auch für die FLUMOB-Episode liegt ein Vergleich der vom EURAD-CTM berechneten Ozonkonzentrationen mit Flugzeugmessungen vor (SCHALLER und WENZEL, 2000). Das EURAD-CTM erzielte die zweithöchste Trefferquote unter sechs verschiedenen Modellsystemen. Auch im europäischen Vergleich von Ozonprognosemodellen liegt das EURAD-CTM im Verbund mit dem Lokalen Modell (Meteorologiemodell) des Deutschen Wetterdienstes in der Vorhersage-

¹ Flugzeug- und Bodenmessungen von Ozon und Vorläuferstoffen zur Abschätzung der Wirksamkeit von emissionsmindernden Maßnahmen im Großraum Berlin-Brandenburg

² Europäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell

genauigkeit von Ozon an der Spitze (TILMES et al., 2000). Damit kann das EURAD-CTM als Stand der Technik für mesoskalige Ozonsimulationsmodelle angesehen werden.

Untersuchungsgebiet für kleinräumige Rechnungen: Die Tatsache der langen Rechenzeiten, die um so höher sind, je mehr Gitterpunkte verarbeitet werden, führt auch zu der Notwendigkeit, sich nur auf ein Gebiet zur Durchführung der Sensitivitätsrechnungen in hoher räumlicher Auflösung zu beschränken. Dazu bietet sich besonders das FLUMOB-Gebiet an, da hier im Untersuchungszeitraum hohe Ozonkonzentrationen gemessen wurden und andererseits das eingesetzte CTM für genau dieses Gebiet schon evaluiert wurde. Es ergeben sich insgesamt drei ineinander genestete Gebiete, die in Abb. 6-2 dargestellt sind.

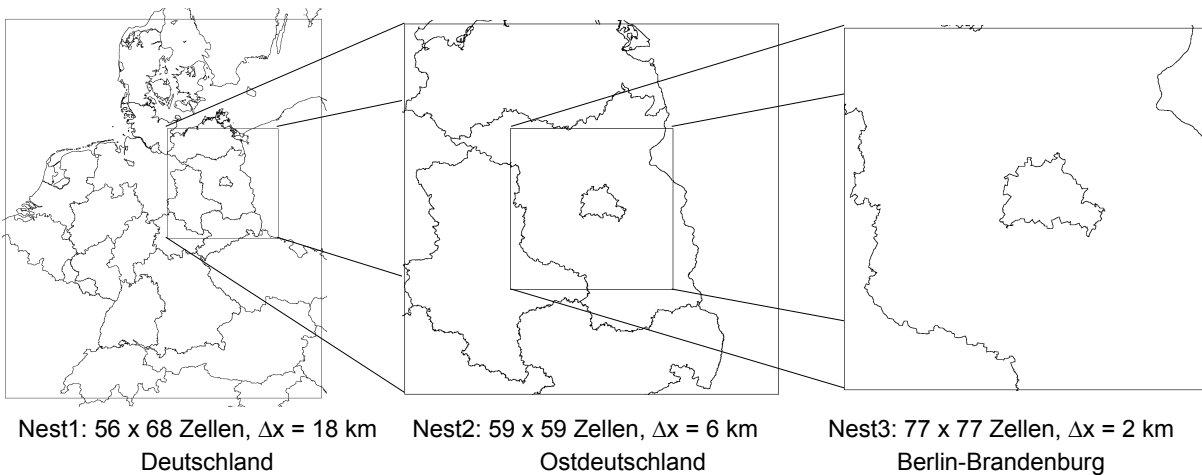


Abb. 6-2: Untersuchungsgebiete für die Sensitivitätsrechnungen. Die größerskaligen Gebiete liefern jeweils die Randwerte für die Gebiete mit der höheren räumlichen Auflösung.

Das größte Gebiet (Nest1) umfasst Deutschland, die Schweiz, Österreich, die Benelux-Staaten, Dänemark und Teile von Polen, Tschechien, Slowakei, Ungarn, Slowenien, Italien, Frankreich und Schweden mit einer Gitterweite von 18 km und einer Gesamtfläche von ca. 1,2 Mio. km². Das Nest2-Gebiet (ca. 125.000 km²) überdeckt größtenteils die neuen Bundesländer und Teile von Polen und Tschechien mit einer Gitterweite von 6 km. Das Gitter mit der höchsten räumlichen Auflösung von 2 km x 2 km fokussiert mit einer Fläche von ca. 24.000 km² auf den Großraum Berlin-Brandenburg. Die Randwerte für das Nest1-Gebiet stammen aus einer großräumigen europäischen Simulation und werden für alle Sensitivitätsfälle gleich angewendet.

Zielgröße: Chemie-Transport-Modelle können in der Regel alle Substanzen, die in den Transport- und Reaktionsgleichungen verarbeitet werden, auch als zeitlich veränderliche 3D-Konzentrationsfelder ausgeben. Auch die Ozonkonzentrationen, die vom EURAD-CTM berechnet werden, liegen in allen vom Modell untersuchten Höhenschichten vor. Allerdings ist der für die Luftreinhaltepolitik interessanteste Bereich die bodennahe Schicht, da hier die schädigende Wirkung für Mensch und Umwelt auftritt. Aus diesem Grund werden als Sensitivitätskriterium nur die Änderungen in den Ozonkonzentrationen der untersten Schicht (bis ca. 75 m über Grund) ausgewählt, obwohl aus rein wissenschaftlicher Sicht auch die Konzentrationsänderungen der anderen chemischen Substanzen in allen Schichten von Interesse wären.

6.3 Kurzbeschreibung des EURAD-CTM

Das EURAD-CTM ist Teil des komplexen Eulerschen EURAD-Modellsystems zur Simulation der Ausbreitung, chemischen Umsetzung und Deposition von Schadstoffen in der Atmosphäre. Dieses Modellsystem wird vorwiegend für die episodenhafte Analyse von Belastungssituationen, wie sie z. B. bei Sommersmogepisoden vorliegen, eingesetzt. Aufgrund der Möglichkeit, Gebiete ineinander zu verschachteln, können großräumige Gebiete (Europa) mit einer Auflösung von ca. 50 km ebenso wie kleinskalige Gebiete mit Zellgrößen bis zu 2 km x 2 km untersucht werden.

Das EURAD-Emissionsmodell (EEM) simuliert die Emissionen auf der Grundlage von Jahresemissionen, die auf einem 150 km x 150 km Gitter vorliegen (MEMMESHEIMER et al., 1990; HOLZAPFEL et al., 1991), während vom meteorologischen Modell (MM5, GRELL et al., 1994) die meteorologischen Felder geliefert werden. Das CTM berechnet die zeit- und ortsabhängigen Spurengaskonzentrationen in der Troposphäre durch Lösung der Kontinuitätsgleichung für diese Gase. Hierbei werden die Prozesse des Transports (Advektion und Diffusion), der Deposition (nass und trocken), der Gasphasenchemie sowie der Nassphasenchemie und -physik berücksichtigt.

Für die vorliegende Arbeit wird mit einem 15-Schichtensystem unter Verwendung des RADM2 Mechanismus (STOCKWELL et al., 1990) für die Gasphasenchemie gerechnet. Der Übergang auf das jeweils nächstkleinere Gebiet erfolgt durch das so genannte Einweg-Nestung-Verfahren, bei dem die Randwerte des untergeordneten Gebiets aus den Simulationen für das übergeordnete Gebiet gewonnen werden. Da alle Berechnungen für dieselbe Episode durchgeführt werden, wird jeweils nur ein Datensatz für die meteorologischen Felder benötigt, der von der EURAD-Arbeitsgruppe zur Verfügung gestellt wurde. Anstelle der anthropogenen Emissionen aus dem EEM werden die Ergebnisse des für diese Arbeit entwickelten Emissionsmodells verwendet. Die Überführung der 32 Emissionsstoffklassen der NMVOC in die 16 vom CTM benötigten RADM2-Klassen nach MIDDLETON et al. (1990), die Aufteilung von NO_x in NO und NO_2 sowie die Berechnung der Fahnenüberhöhung übernimmt weiterhin das EEM. Zur Berechnung der biogenen Emissionen wird auf den im EEM implementierten Algorithmus von LÜBKERT (1989) zurückgegriffen. Generell besteht im EEM die Möglichkeit, auch andere Algorithmen zur Ermittlung biogener Emissionen einzusetzen (z. B. VOGEL et al., 1995). Das gilt ebenso für die chemisch-physikalischen Mechanismen des CTM.

Für eine detaillierte Beschreibung des EURAD-CTM sei auf HASS (1991) verwiesen. Einen Ausschnitt der vielfältigen Einsatzmöglichkeiten des EURAD-Modellsystems zeigen z. B. HASS et al. (1990), JACOBS et al. (1994), MEMMESHEIMER et al. (1997), EBEL et al. (1993), EBEL et al. (1995) und EBEL et al. (1997).

6.4 Meteorologische Situation

Mitteuropa liegt während des 25./26.07.1994 im Einflussbereich eines ausgedehnten Hochdruckgebiets, dem ein Tief über dem Nordostatlantik gegenübersteht (DEUTSCHER WETTERDIENST, 1994; BERLINER WETTERKARTE, 1994). Im Laufe des 26.07. überquert ein sich abschwächender Tiefausläufer ganz Deutschland, in dessen Folge es vereinzelt zu Schauer- und Gewitterbildung mit geringen Niederschlagsmengen kommt. Im Norden und Nordosten herrschen am 25.07. in den unteren Atmosphärenschichten starke Winde aus östlicher bis südöstlicher, im Westen aus südlicher bis südwestlicher Richtung vor, während es im Süden

Deutschlands allgemein nur schwachwindig ist (Abb. 6-3). Der 26.07. ist durch uneinheitliche

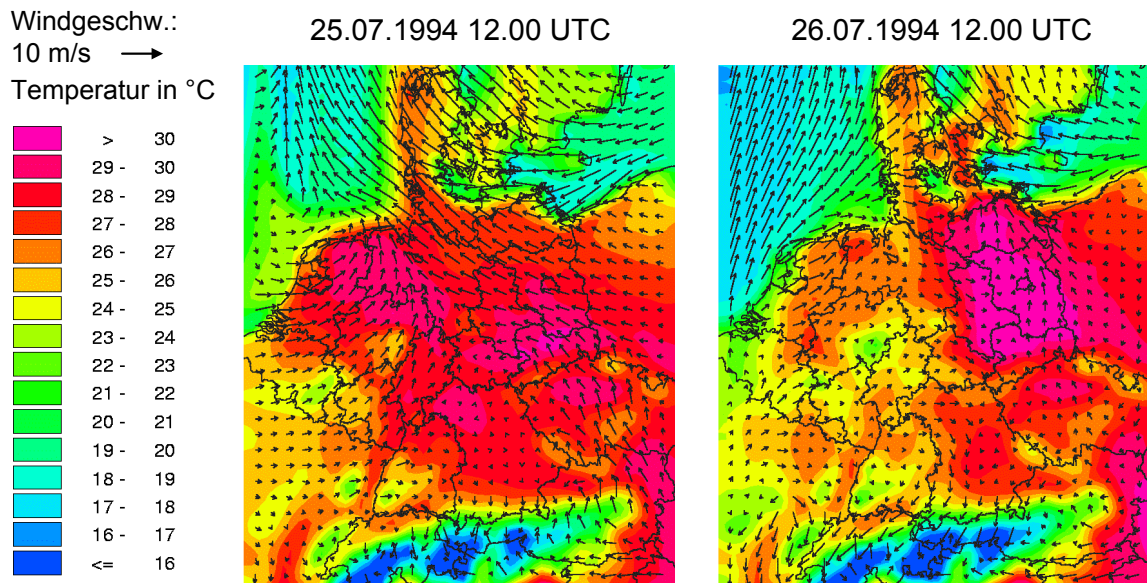


Abb. 6-3: Bodennahe Temperatur- und Windfelder am 25.07. und 26.07.1994 in Deutschland.

Windrichtungen bei niedrigen Windgeschwindigkeiten mit Ausnahme des äußersten Nordosten charakterisiert. An beiden Tagen steigen die Temperaturen vielerorts über 30 °C, im Norden werden in der Nacht 20 °C häufig nicht unterschritten. Die gesamte Episode vom 23.07.

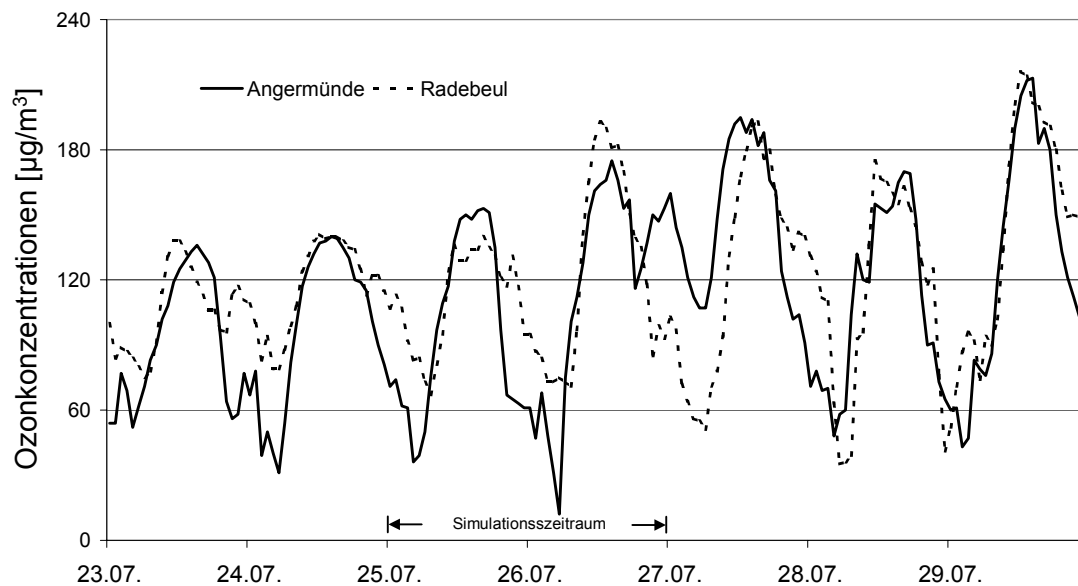


Abb. 6-4: Ozonmessungen von Bodenstationen in Angermünde und Radebeul (UMWELTBUNDESAMT, 1997).

bis 27.07. zeigt für Ostdeutschland den Aufbau einer Sommersmogsituation (Abb. 6-4): Am 25.07. ist in Angermünde und am 26.07. in Radebeul eine signifikante Anhebung der nachmittäglichen Spitzenwerte gegenüber dem Vortag zu verzeichnen. Am 26. und 27. werden Konzentrationen von 180 µg erreicht oder überschritten. Auch im übrigen Deutschland werden

Ozonkonzentrationen von mehr als 180 µg gemessen, Ozonspitzenwerte von über 240 µg werden in Darmstadt beobachtet.

6.5 Auswertemethode

Gegenstand der Untersuchung sollen ausschließlich das Emissionsmodell und die Auswirkungen der Veränderung in den Berechnungsalgorithmen sein, nicht aber die Evaluierung des Gesamtsystems. Um eine ausreichende Qualität des Gesamtsystems zu sichern, wurde eine schon evaluierte Episode des EURAD-CTM gewählt.

Zunächst wird ein Referenzdatensatz mit detaillierter Emissionsmodellierung unter Einbeziehung aller verfügbaren Grunddatenquellen erstellt. Die Ergebnisse der einzelnen Fälle, in denen die Auswirkung der Änderungen im Emissionsmodell auf die Ozonkonzentrationen untersucht wird, werden dann mit dem Ergebnis des Referenzfalls verglichen.

Eine andere Methode zur Abschätzung der Qualität des Gesamtsystems, wie sie für die Evaluierung von Luftqualitätsmodellen eingesetzt wird (EBEL et al., 1997a), ist der Vergleich der simulierten Konzentrationen mit realen Messwerten aus dem FLUMOB-Experiment. Derartige Untersuchungen wurden im Rahmen des Troposphärenforschungsprogramms unter Berücksichtigung von Flugzeugmessdaten durchgeführt (SCHALLER und WENZEL, 2000). Dieses Vorgehen hat zwei wesentliche Nachteile:

- Trotz der großen Menge an Messdaten für die FLUMOP-Episode ist die Anzahl der Messungen im Vergleich zu den Ausgabedaten des CTM, das Konzentrationen für zwei volle Tage auf den Gebieten Gesamtdeutschland, Ostdeutschland und Berlin-Brandenburg liefert, relativ gering. Beim Vergleich der Sensitivitätsfälle mit einem Referenzdatensatz können dagegen alle Stunden und Gitterpunkte berücksichtigt werden.
- Untersuchungsgegenstand sind Ozonkonzentrationen in Bodennähe. Ein Vergleich mit Messdaten könnte also nur mit Daten von bodengestützten Messsystemen erfolgen. Diese können aber meistens nur stationär betrieben werden und geben die Realität daher nur lokal sehr begrenzt wieder. Da die Konzentrationsfelder aber immer Mittelwerte in Rasterzellen darstellen, müssen Bodenstationen vor der Einbeziehung in Evaluierungsarbeiten sehr sorgfältig auf ihre Repräsentativität untersucht werden (z. B. TILMES und EBEL, 1998). Für die FLUMOB-Episode stehen keine ausreichend repräsentativen Datensätze von Bodenstationen zur Verfügung.

Neben dem Vergleich mittlerer Ozonkonzentrationen von Sensitivitäts- und Referenzfall werden drei weitere abgeleitete Größen in die Auswertung einbezogen: 0,95-Quantile, AOT60-Werte³ und Überschreitungshäufigkeiten von 120 µg/m³.

0,95-Quantile der absoluten Differenzen: Diese Größe soll als Hauptmaßstab für die Beurteilung der Berechnungsalgorithmen im Emissionsmodell dienen. Sie wird folgendermaßen ermittelt (Abb. 6-5): Zunächst werden für eine Stunde die Differenzen der Konzentrationswerte von betrachtetem Sensitivitätsfall und Referenzfall gebildet. Von diesen Differenzen werden die Absolutwerte berechnet und diese anschließend der Größe nach sortiert. Die Zahl der Werte ergibt sich aus der Multiplikation der Anzahl der Gitterzellen innerhalb Deutschlands (abhängig vom Nestgebiet) mit der Anzahl der Stunden (48). Das 0,95-Quantil berechnet sich schließlich als die Grenze, die 95 % dieser Werte nicht überschreiten. Diese zunächst etwas abstrakte

³ Accumulated amount of Ozone over the Threshold value of 60 ppbV

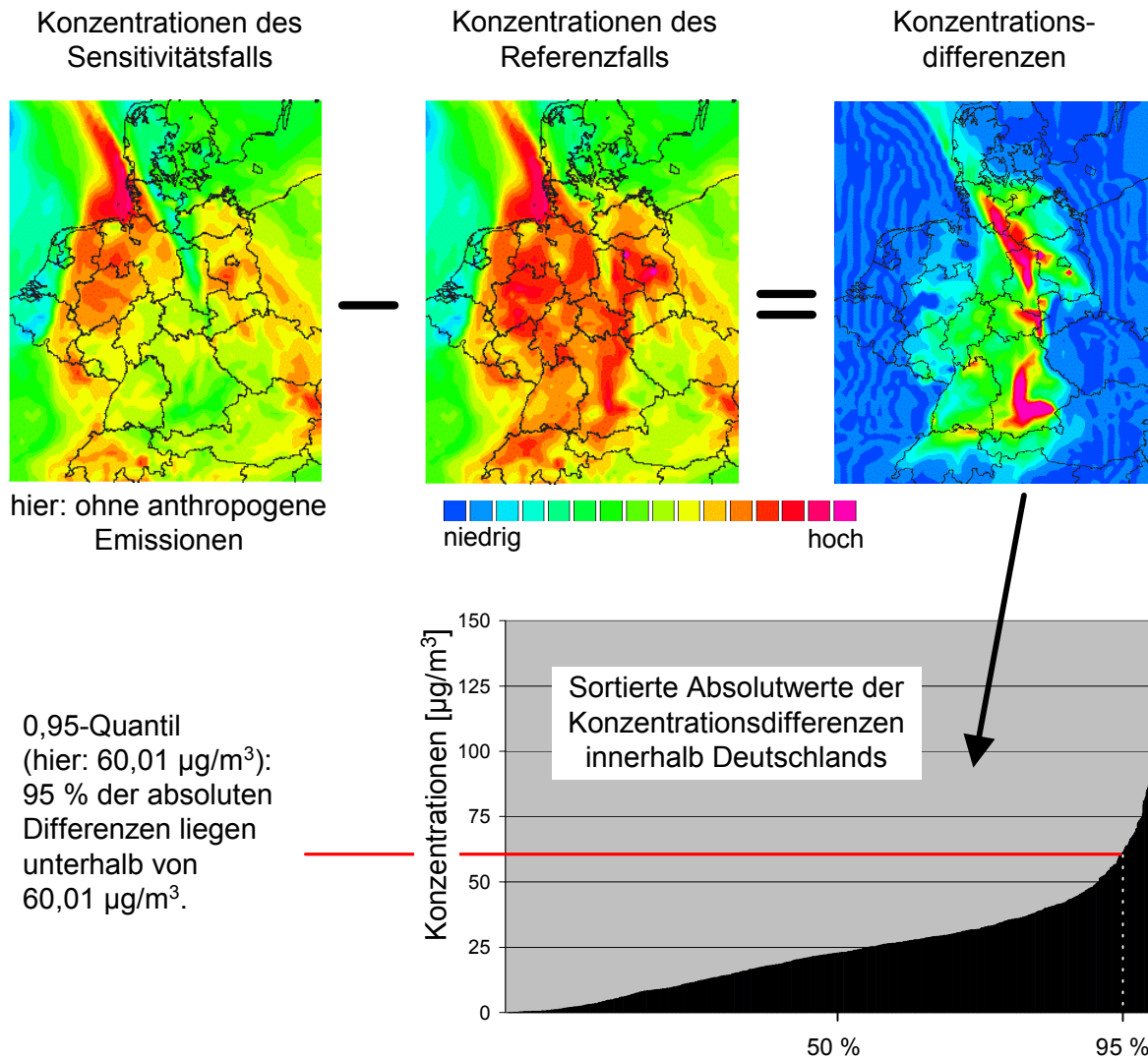


Abb. 6-5: Ermittlung des 0,95-Quantils der absoluten Differenzen. Für jede Stunde der Episode (hier: 26.07. 12:00 UTC) werden in jeder Gitterzelle die Differenzen von Sensitivitätsfall und dem Referenzfall gebildet und danach sortiert. Das 0,95-Quantil ist der Wert, der von 95 % aller Differenzen nicht überschritten wird.

Größe wird durch folgende Überlegung anschaulicher: Zum Vergleich der Ergebnisse von Chemie-Transport-Modellen mit Messwerten werden oft Fehlergrenzen definiert, innerhalb derer Simulation und Messung übereinstimmen sollen (z. B. SCHALLER und WENZEL, 1999). Jeder „Treffer“ wird gezählt und anschließend eine Trefferquote berechnet, um die Güte des betrachteten Modells für die gewählten Fehlergrenzen zu bestimmen. Umgekehrt kann auch zuerst eine Trefferquote festgelegt und dann berechnet werden, wie groß die Fehlerbandbreite für das Modell sein muss, damit diese Trefferquote erreicht wird. In der vorliegenden Arbeit werden die Ozonsimulationen mit den Emissionen des Referenzfalls als Vergleichswerte herangezogen, entsprechend den Messungen bei einer Modellevaluierung. Damit gibt das 0,95-Quantil für jeden Sensitivitätsfall die Fehlerbandbreite an, innerhalb derer 95 % aller Konzentrationswerte mit dem Referenzfall übereinstimmen. So können die einzelnen Fälle hinsichtlich ihrer Auswirkung auf die Genauigkeit der Ozonsimulation gegenüber dem Referenzfall verglichen werden.

AOT60-Werte: Diese Größe wird durch Summierung aller positiven Differenzen zwischen den Konzentrationen und einem Grenzwert von 60 ppbV in den Gitterzellen für eine vorgegebene Episode berechnet. Zur Vermeidung gesundheitlicher Schäden sollen 60 ppbV (AOT60 = 0) nicht überschritten werden (WHO, 1999; EU, 2000; EU, 2000a).

Überschreitungshäufigkeit von 120 µg: AOT60-Werte stellen eine zeitliche Mittelung dar, aus der keine Information über die Dauer der Überschreitung abgeleitet werden kann. Ein AOT60-Wert von 50 ppbVh kann im Extremfall bedeuten, dass 60 ppbV 50 Stunden lang um 1 ppbV überschritten wurden, oder dass nur in einer Stunde eine Überschreitung von 50 ppbV ermittelt wurde. Dagegen zeigen die Überschreitungshäufigkeiten von 120 µg innerhalb einer Episode an, wie lange diese Überschreitung andauert.

Noch ein Hinweis für die im Folgenden dargestellten Sensitivitätsuntersuchungen: *Das Auswertebiet, für das die Vergleichsgrößen ermittelt werden, umfasst nur jeweils den auf bundesdeutschem Gebiet liegenden Teil der einzelnen Nestgebiete.* Dies erscheint sinnvoll, da die Variationen nur für das Emissionsmodell von Deutschland durchgeführt werden und sich außer durch die Einflüsse der von Deutschland ausgehenden Emissionen auf dem übrigen Gebiet keine Änderungen ergeben sollen. Natürlich wird Deutschland auch von grenzüberschreitenden Luftmassen beeinflusst, um aber das europäische Emissionsmodell in die Untersuchungen einzubeziehen, müsste es zuvor erheblich verbessert und mit dem deutschen Emissionsmodell harmonisiert werden. *Wenn sich Daten im Text, in Tabellen oder Abbildungen auf die Gesamtfläche eines Gitters inklusive der außerhalb Deutschlands liegenden Gebiete beziehen, wird explizit darauf hingewiesen.*

6.6 Die Sensitivitätsfälle

Nach der in Kapitel 2 dargestellten Struktur des Emissionsmodells werden für die Ermittlung hochaufgelöster Emissionsdaten zunächst Jahresemissionen berechnet, die dann in einem weiteren Schritt mit Verteilungsfaktoren räumlich, zeitlich und stofflich disaggregiert werden. Dementsprechend bieten sich als Sensitivitätsuntersuchungen Modifikationen am Emissionsmodell an, bei denen die Jahresemissionen oder die Algorithmen zur Berechnung der Verteilungsfaktoren geändert werden. Im Folgenden werden der Referenzfall und 24 Sensitivitätsfälle und ihre Ergebnisse vorgestellt. In vier Fällen werden die Auswirkungen der anthropogenen und biogenen Emissionen auf die Ozonkonzentrationen untersucht. In acht Fällen wird das NMVOC/NO_x-Verhältnis der anthropogenen Emissionen variiert. Vier Fälle beschäftigen sich mit den Methoden der räumlichen Verteilung, sieben mit der zeitlichen. In einem weiteren Fall wird die Abhängigkeit der Ozonkonzentrationen vom für die Emissionen verwendeten VOC-Profil untersucht. Eine vergleichende Zusammenstellung aller Sensitivitätsfälle wird in Kapitel 6.7 gegeben.

6.6.1 Der Referenzfall REF

Als Referenzfall wird die Ozonsimulation für die beiden betrachteten Tage mit den detailliertesten Emissionsdaten aus dem Emissionsmodell für Deutschland bezeichnet. Er dient als Vergleichsmaßstab für die anderen Sensitivitätsfälle.

Eine Übersicht über die Anzahl der für die Berechnung verwendeten Datensätze gibt Tabelle 6-1. Bei der Emissionsberechnung des Referenzfalls werden für das gesamte Nest1-Gitter 227.457 Aktivitätsdaten, d. h. Einzelemissionsdaten verwendet. 178.852 liegen davon in

Tabelle 6-1: Anzahl der verwendeten Datensätze für den Referenzfall

	Nest1			Nest2			Nest3		
	Gesamt ¹	davon in Deutschland		Gesamt	davon in Deutschland		Gesamt	davon in Deutschland	
Aktivitäten	227457	178852	79%	40404	38620	96%	12389	12171	98%
Quellen	38170	36260	95%	5949	5926	100%	1903	1902	100%
Punktquellen	30756	29280	95%	5000	4987	100%	1629	1629	100%
Zeitkurven	270	164	61%	104	83	80%	56	42	75%
VOC-Profile	206	96	47%	120	96	80%	104	86	83%
Grid-Vektoren	4380	2795	64%	1475	1391	94%	635	626	99%

¹⁾ einschließlich der außerhalb Deutschlands liegenden Gebiete

Deutschland. Diese Emissionen werden von 38.170 Quellen verursacht, wovon 30.756 als Punktquellen erfasst werden. 95 % der Punktquellen liegen dabei auf deutschem Gebiet, da einerseits der größte Teil des Untersuchungsgebiets von Deutschland bedeckt wird, andererseits durch Verwendung der Emissionserklärungen in Deutschland wesentlich mehr Emissionen als Punktquellen erfasst werden, als dies bei den CORINAIR-Daten der Fall ist. Insgesamt werden 270 verschiedene Zeitkurven verwendet, allein in Deutschland 164, ferner 206 VOC-Profile und 4.380 Grid-Vektoren für die räumliche Verteilung. Zu den Emissionen des Nest3-Gitters tragen immerhin noch 1.903 Quellen bei, von denen 1.629 als Punktquellen ausgewiesen sind.

Welche Unterschiede in den Emissionsstärken der einzelnen Punktquellen vorliegen, zeigt Tabelle 6-2 für verschiedene Schadstoffe mit den Emissionsanteilen der jeweils 100 größ-

Tabelle 6-2: Emissionsanteil der Punktquellen an den Gesamtemissionen in Deutschland

Schadstoff	Emissionsanteil	
	der 100 größten Quellen	aller Punktquellen
SO ₂	72%	88%
NO _x	14%	30%
CO	12%	15%
NMVOG	2%	4%

ten Punktquellen in Deutschland. Bei SO₂ ist die Konzentration der Emissionen auf wenige Quellen am ausgeprägtesten: Die 100 größten Quellen machen 82 % aller Punktquellenemissionen aus und tragen mit 72 % zu den Gesamtemissionen bei. Dagegen ist der Punktquellenanteil der übrigen Emissionen wesentlich geringer, da sie zum Großteil aus Linien- oder diffusen Flächenquellen (z. B. Verkehr, Kleinf Feuerungen, Lösemittelverwendung) stammen.

Jahresemissionen

In Tabelle 6-3 sind jeweils die Gesamtemissionen und die Emissionen innerhalb Deutschlands für jedes Nestgebiet für den Referenzfall zusammengefasst. Um eine bessere Vergleichbarkeit zu gewährleisten, wurden die 32 Emissionsklassen der NMVOC mit dem EEM auf RADM2-Klassen transformiert. Auffällig ist das Fehlen von Methan (Klasse CH₄). Zwar werden in Deutschland erhebliche Mengen an Methan emittiert (1994 ca. 4 Mio. t, UMWELTBUNDESAMT,

Tabelle 6-3: Emissionen des Referenzfalls für verschiedene Gebiete am 25./26.07.1994

Substanz (-klasse) ¹	Nest1			Nest2			Nest3			
	Gesamt- gitter ⁴	davon in Deutschland		Gesamt- gitter ⁴	davon in Deutschland		Gesamt- gitter ⁴	davon in Deutschland		
	[t]	[t]		[t]	[t]		[t]	[t]		
SO2	21990	12254	56%	10261	9864	96%	1384	1384	100%	
SULF	1374	766	56%	641	616	96%	86	86	100%	
NO	16056	7533	47%	1969	1691	86%	446	446	100%	
NO2	1026	481	47%	126	108	86%	28	28	100%	
CO	70868	27261	38%	6059	4845	80%	1305	1305	100%	
NH3	8500	4084	48%	766	635	83%	133	133	100%	
ETH	369	73	20%	29	17	56%	6	6	100%	
HC3	3434	1495	44%	393	352	90%	111	111	100%	
HC5	6216	3011	48%	695	641	92%	182	182	100%	
HC8	3215	1716	53%	286	256	89%	80	80	100%	
OL2	1253	380	30%	125	84	67%	23	23	100%	
OLT	ant ²	1512	709	47%	153	132	86%	37	37	100%
	bio ³	15735	7023	45%	3132	2141	68%	829	779	94%
OLI	ant ²	389	181	47%	53	49	92%	14	14	100%
	bio ³	15735	7023	45%	3132	2141	68%	829	779	94%
TOL	2213	984	44%	170	141	83%	37	37	100%	
XYL	2212	1001	45%	181	154	86%	41	41	100%	
HCHO	515	195	38%	58	45	77%	12	12	100%	
ALD	426	159	37%	47	34	72%	9	9	100%	
KET	546	196	36%	29	22	76%	6	6	100%	
ISO	bio ³)	8243	2726	33%	1158	836	72%	211	209	99%
Σ VOC	ant ²)	22300	10101	45%	2220	1926	87%	558	558	100%
	bio ³)	39713	16771	42%	7422	5119	69%	1879	1766	94%
	gesamt	62013	26872	43%	9642	7045	73%	2436	2324	95%

¹) Definition nach STOCKWELL et al. (1990):

SO2	Schwefeldioxid	OL2	Ethen	KET	Ketone
SULF	Schwefelsäure	OLT	Endständige Alkene	ISO	Isopren
NO	Stickstoffmonoxid	OLI	Mittelständige Alkene		
NO2	Stickstoffdioxid	TOL	Toluol und weniger reaktive Aromaten		
CO	Kohlenmonoxid	XYL	Xylol und reaktivere Aromaten		
NH3	Ammoniak (keine Gasphasenchemie)	HCHO	Formaldehyd		
ETH	Ethan	ALD	Acetaldehyd und höhere Aldehyde		
HC3	Alkane mit OH Reaktionskonstanten zwischen $2,7 \cdot 10^{-13}$ und $3,4 \cdot 10^{-12}$ [$\text{cm}^3 \cdot \text{Molekül}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$]				
HC5	Alkane mit OH Reaktionskonstanten zwischen $3,4 \cdot 10^{-12}$ und $6,8 \cdot 10^{-12}$ [$\text{cm}^3 \cdot \text{Molekül}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$]				
HC8	Alkane mit OH Reaktionskonstanten größer $6,8 \cdot 10^{-12}$ [$\text{cm}^3 \cdot \text{Molekül}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$]				

²) anthropogen

³) biogen

⁴) einschließlich der außerhalb Deutschlands liegenden Gebiete

1998), allerdings ist dessen Lebensdauer mit ca. 14 Jahren so lang, dass für alle betrachteten Stunden eine konstante Konzentration angenommen werden kann. Diese Konstante wird direkt im CTM gesetzt (1,7 ppm) und nicht durch die Emissionsdaten vorgegeben. NH₃ geht zwar

nach STOCKWELL et al. (1990) keine Gasphasenreaktionen ein, spielt aber in der Nassphasenchemie eine Rolle und wird daher mitberücksichtigt. Die Emissionen der Gruppen OLT (endständige Alkene), OLI (mittelständige Alkene) und ISO (Isopren) sind fast ausschließlich biogenen Ursprungs. Abb. 6-6 stellt die biogenen NMVOC-Emissionen, wie sie vom CTM berechnet werden, den anthropogenen NMVOC-Emissionen für die Zwei-Tagesepisode gegenüber. Aus der Abbildung geht hervor, dass die Summe der biogenen Emissionen die der

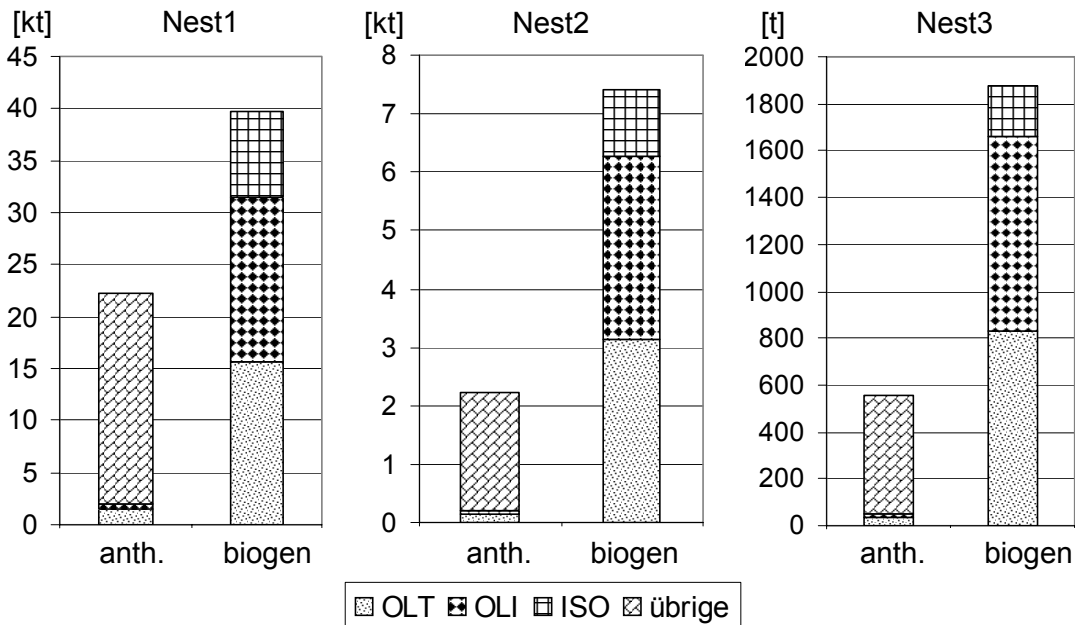


Abb. 6-6: Anthropogene und biogene NMVOC-Emissionen der Zwei-Tagesepisode in RADM2-Klassifikation. Es wird jeweils das gesamte Gitter einschließlich der außerhalb Deutschlands liegenden Gebiete betrachtet. Erklärung der Klassenkürzel: siehe Tabelle 6-3.

anthropogenen knapp um das 2-fache (Nest1) bis 3,5-fache (Nest2 und Nest3) übertrifft. Damit ist zwar noch keine Aussage über den konkreten Beitrag der jeweiligen Quellbereiche zur Ozonbildung möglich, aber die Größenordnung der biogenen Emissionen zeigt zumindest, dass diese bei der Untersuchung chemischer Prozesse in der Atmosphäre nicht vernachlässigt werden dürfen. Die unterschiedlichen Einflüsse biogener und anthropogener Emissionen werden in den Kapiteln 6.6.2 und 6.6.3 diskutiert.

Zeitlicher Verlauf der Emissionen

Anhaltspunkte für die saisonale Einordnung der Emissionen innerhalb der Untersuchungsperiode gibt Tabelle 6-4. Dort sind die Jahresemissionen von 1994 für den Teil der jeweiligen Nest-Gebiete aufgelistet, der innerhalb Deutschlands liegt. Daneben sind die Anteile der Emissionen der Zwei-Tagesepisode (Tabelle 6-3) an den Jahresemissionen sowie die Abweichung dieses Anteils vom Jahresdurchschnitt dargestellt. Einige Stoffgruppen weichen von diesem Durchschnittswert erheblich ab. Für CO (-26,0 % für Nest1) ist dies sicherlich auf den niedrigeren Anteil von Emissionen aus Kleinfeuerungen zurückzuführen, da die betrachtete Episode außerhalb der Heizperiode liegt. Auch sind die Fahrleistungen und damit die CO-Emissionen des Straßenverkehrs während der Haupturlaubszeit in Deutschland etwas niedriger als im Jahresdurchschnitt. Darüber hinaus sind in der wärmeren Jahreszeit geringere CO-Emissionen aus

Tabelle 6-4: Anthropogene Jahresemissionen auf den 3 Untersuchungsgebieten innerhalb Deutschlands mit Anteilen der Emissionen der Zwei-Tagesepisode

Substanz (-klasse)	Nest1			Nest2			Nest3		
	1994	25./26.07.		1994	25./26.07.		1994	25./26.07.	
	[t]	Anteil an 1994 gesamt	Abweichung vom Jahresdurchschnitt	[t]	Anteil an 1994 gesamt	Abweichung vom Jahresdurchschnitt	[t]	Anteil an 1994 gesamt	Abweichung vom Jahresdurchschnitt
SO ₂	2347474	0,52%	-4,7%	1824862	0,54%	-1,4%	263164	0,53%	-4,0%
SULF	146717	0,52%	-4,7%	114054	0,54%	-1,4%	16448	0,53%	-4,0%
NO	1418764	0,53%	-3,1%	318043	0,53%	-3,0%	84666	0,53%	-4,0%
NO ₂	90643	0,53%	-3,1%	20319	0,53%	-3,0%	5409	0,53%	-4,0%
CO	6721658	0,41%	-26,0%	1376098	0,35%	-35,7%	414724	0,31%	-42,6%
NH ₃	709304	0,58%	5,1%	123709	0,51%	-6,3%	23136	0,58%	5,3%
ETH	20806	0,35%	-35,7%	6037	0,27%	-49,8%	2163	0,28%	-48,5%
HC3	253116	0,59%	7,8%	64679	0,54%	-0,5%	19407	0,57%	4,0%
HC5	502065	0,60%	9,4%	117963	0,54%	-0,9%	31708	0,57%	4,7%
HC8	291559	0,59%	7,4%	44975	0,57%	3,9%	13877	0,57%	4,9%
OL2	91402	0,42%	-24,1%	23055	0,36%	-33,8%	6783	0,33%	-39,3%
OLT	129166	0,55%	0,2%	26730	0,49%	-10,1%	7372	0,50%	-8,6%
OLI	31705	0,57%	4,2%	9506	0,51%	-6,3%	2686	0,53%	-2,4%
TOL	209058	0,47%	-14,1%	34138	0,41%	-24,9%	9618	0,38%	-29,8%
XYL	196441	0,51%	-7,0%	32753	0,47%	-13,9%	9180	0,45%	-18,0%
HCHO	38000	0,51%	-6,3%	8769	0,51%	-7,0%	2341	0,51%	-7,0%
ALD	32468	0,49%	-10,8%	7009	0,49%	-10,8%	1913	0,49%	-11,0%
KET	33082	0,59%	8,3%	3722	0,59%	7,0%	1012	0,58%	6,3%

dem Kaltstartprozess zu erwarten. Die niedrigeren Anteile der Ethan-Emissionen (ETH, -35,7 % für Nest1) liegen aufgrund der geringeren Nutzungsgrade von Kleinf Feuerungen in den Sommermonaten ebenfalls unter dem Jahresdurchschnitt. Erheblich niedriger als der Jahresdurchschnitt sind auch die Ethen-Emissionen (OL2, -24,1 % für Nest1), was auf den im Sommer zurückgegangenen Einsatz fester Energieträger in Kleinf Feuerungen zurückzuführen ist.

Der Tagesverlauf der Emissionen in der betrachteten Episode ist in Abb. 6-7 dargestellt. Zunächst kann ein sehr ähnlicher Kurvenverlauf der fünf Stoffgruppen festgestellt werden. Die CO-Kurve entspricht im Wesentlichen den Fahrleistungen des Straßenverkehrs mit den ausgeprägten Morgen- und Abendspitzen, die SO₂-Kurve den Kraftwerkslastkurven mit einem Maximum um die Mittagszeit. Auch die NO-Emissionen beruhen hauptsächlich auf einer Kombination dieser beiden Aktivitäten, während die NMVOC-Emissionen, die im Sommer überwiegend aus der Kraftstoffverdunstung stammen, mit zunehmender Temperatur etwas später ansteigen und einen eher uneinheitlichen Verlauf aufweisen. Die NH₃-Emissionen (Hauptquelle Landwirtschaft) zeigen ein starkes Morgenmaximum und fallen mit sinkenden Außentemperaturen nach einem Nachmittagsplateau früher als die anderen Zeitkurven ab.

Eine Gegenüberstellung der stündlichen NMVOC-Emissionen anthropogenen bzw. biogenen Ursprungs auf dem Gebiet von Deutschland zeigt Abb. 6-8. Innerhalb der betrachteten Episode variiert das Verhältnis von biogenen Emissionen zu anthropogenen Emissionen in

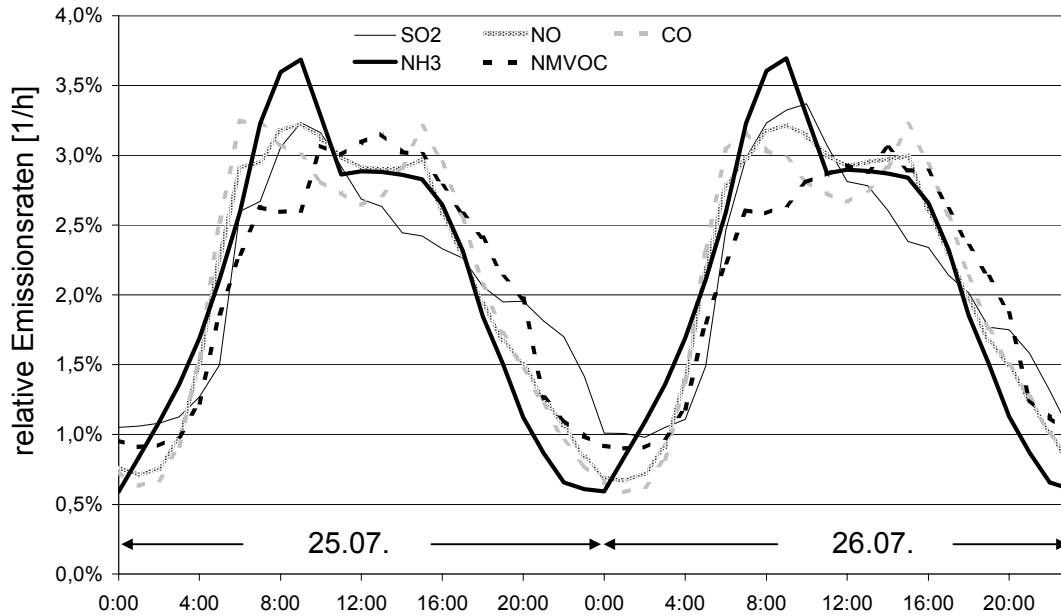


Abb. 6-7: Verlauf der relativen stündlichen anthropogenen Emissionen von SO₂, NO, CO, NH₃ und NMVOC in Deutschland. Die Emissionsanteile beider Tage summieren sich jeweils für die fünf Stoffgruppen zu 100 %. Zeitangaben in UTC.

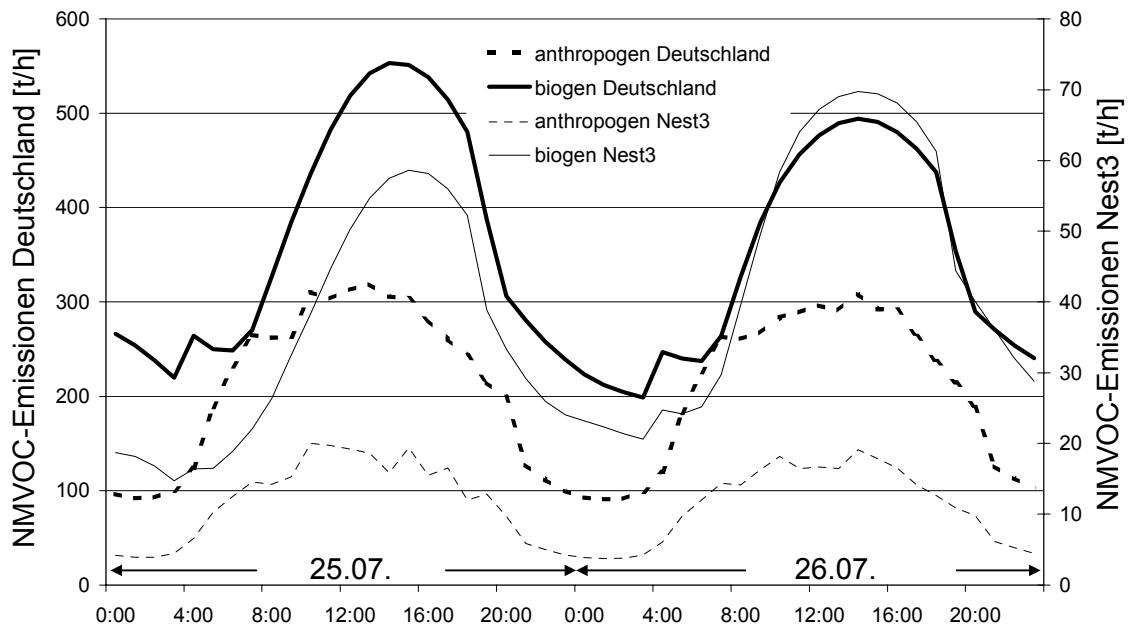


Abb. 6-8: Vergleich der stündlichen NMVOC-Emissionen aus biogenen und anthropogenen Quellen. Linke Skala: Emissionen von Deutschland, rechte Skala: Emissionen auf dem Nest3-Gebiet. Zeitangaben in UTC.

ganz Deutschland von 1 bis 2,7, auf dem Nest3-Gitter von 1,5 bis 6,4.

Räumliche Verteilung der Emissionen

Unter den 24 betrachteten Sensitivitätsfällen befassen sich vier Fälle mit Variationen in der räumlichen Verteilung der anthropogenen Emissionen. Als Beispiel der räumlichen Verteilung des Referenzfalls zeigt Abb. 6-9 die anthropogenen Emissionen von NO, wie sie auf den drei

Nestern am 25.07. um 12 Uhr UTC berechnet werden. In die Kataster sind außerdem die Um-

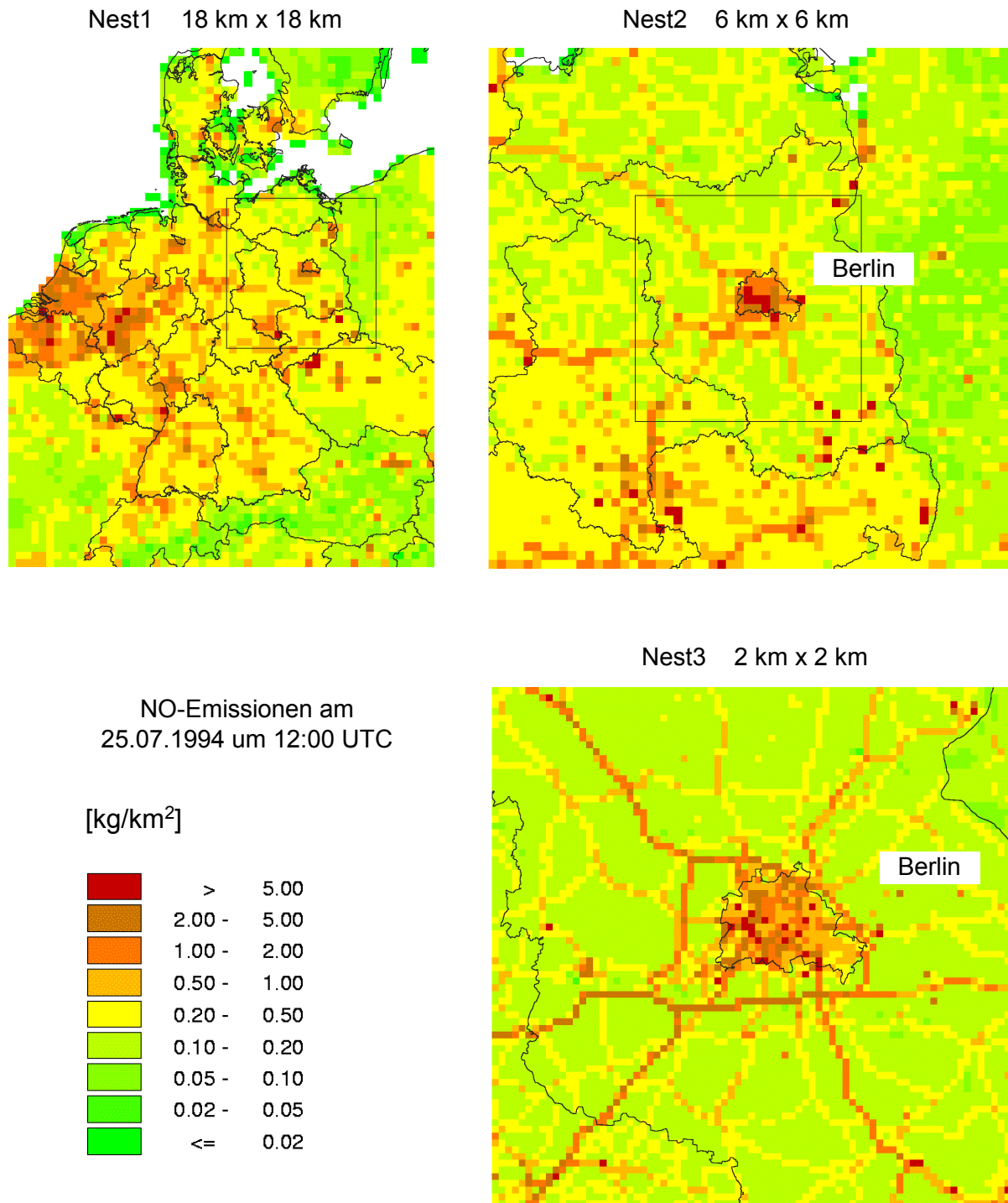


Abb. 6-9: Räumliche Verteilung der NO-Emissionen am 25.07.1994 um 12:00 UTC. In den beiden größerskaligen Graphiken sind die Umrisse des nächstkleineren Nest-Gebiets angedeutet.

risse der nächst kleineren Nestgebiete eingezeichnet. Die Hauptquellen sind leicht zu identifizieren: Einerseits der Verkehr in den Ballungszentren und auf Fernstraßen, andererseits besonders hohe Emissionen einzelner Punktquellen. Die logarithmische Skala darf nicht darü-

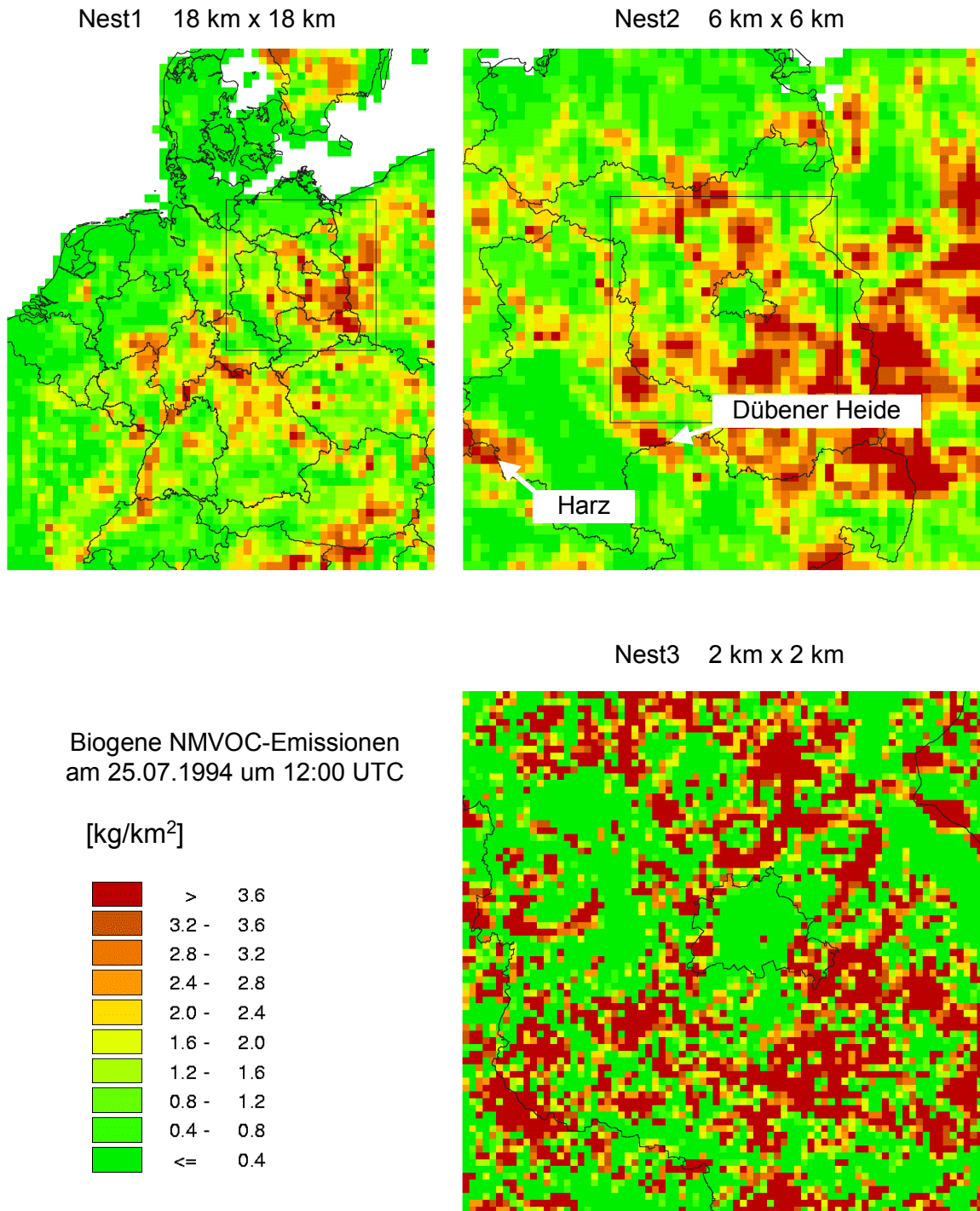


Abb. 6-10: Räumliche Verteilung der biogenen NMVOC-Emissionen am 25.07.1994 um 12:00 UTC.

ber hinwegtäuschen, dass zwischen Zellen mit den niedrigsten und den höchsten Emissionen mehrere Größenordnungen liegen.

Auf dem Nest1-Gitter konzentrieren sich die Emissionen eher auf die Benelux-Staaten und den westlichen Teil Deutschlands. Letzteres ist plausibel, da 1994 in Westdeutschland aus den dort vorherrschenden höheren Fahrleistungen und Durchschnittsgeschwindigkeiten auf Fernstraßen auch höhere NO_x-Emissionen resultieren. Außerdem übersteigt die Bevölkerungsdichte Nordrhein-Westfalens oder des Großraums Frankfurt / Main weit die der östlichen Bun-

desländer mit Ausnahme von Berlin. Das Nest2-Gitter zeigt die höchsten Emissionen Ostdeutschlands im Großraum Berlin, noch erweitert durch den Berliner Autobahnring. Daneben sind die Autobahnen Berlin-Hamburg, Berlin-Dortmund, Berlin-München und Aachen-Dresden sowie die Ballungszentren Halle/Leipzig/Bitterfeld, Chemnitz und Dresden hervorgehoben. Auch die als Punktquellen ausgewiesenen Kraftwerke im Süden von Brandenburg und Sachsen-Anhalt, im Nordwesten und Nordosten von Sachsen wie auch die Raffinerie von Schwedt sind deutlich erkennbar. In der Nest3-Auflösung, die sich ganz auf Berlin-Brandenburg konzentriert, sind schließlich auch innerstädtische Punktquellen von den umliegenden Flächenquellen zu unterscheiden.

Demgegenüber sind in Abb. 6-10 die biogenen NMVOC-Emissionen auf den verschiedenen Nestgebieten am 25.07.1994 um 12:00 UTC dargestellt. Die räumliche Lage der Emissionen wird hauptsächlich durch die Verteilung der Waldgebiete bestimmt. In den Ballungszentren (z. B. Großraum Berlin) sind kaum biogene Emissionen zu verzeichnen.

Ozonkonzentrationen

Unter Verwendung der oben dargestellten Emissionsdaten, meteorologischen Felder sowie Rand- und Anfangsbedingungen werden mit dem EURAD-CTM die Ozonkonzentrationen für alle drei Nestgebiete berechnet und in stündlicher Auflösung ausgegeben. Die Ergebnisse für die mittleren bodennahen Konzentrationen zeigen Abb. 6-11 im zeitlichen Verlauf und Abb. 6-

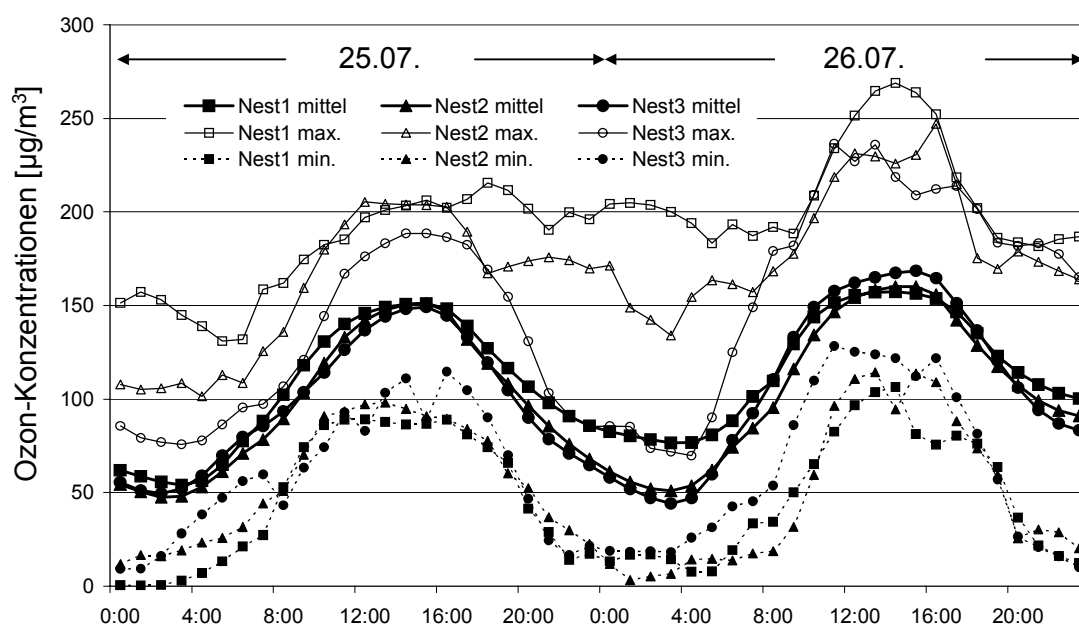


Abb. 6-11: Stündliche mittlere O_3 -Konzentrationen des Referenzfalls auf den drei Nest-Gebieten in Deutschland mit Minimum und Maximum der jeweiligen Stunden. Zeitangaben in UTC.

12 in der räumlichen Verteilung. Die Umrechnung der Einheiten [ppm] in $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ erfolgt unter Verwendung der allgemeinen Gasgleichung, der barometrischen Höhenformel und den vom meteorologischen Modell simulierten Temperaturen.

Zu Beginn der Episode (Abb. 6-11), in der Nacht zum 25.07., liegen die mittleren Konzentrationen auf allen drei Nestgebieten zwischen $54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $62 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Wesentliche Unterschiede in der Nacht zeigen sich vor allem bei den O_3 -Maxima, die sich im Nest3-Gebiet noch

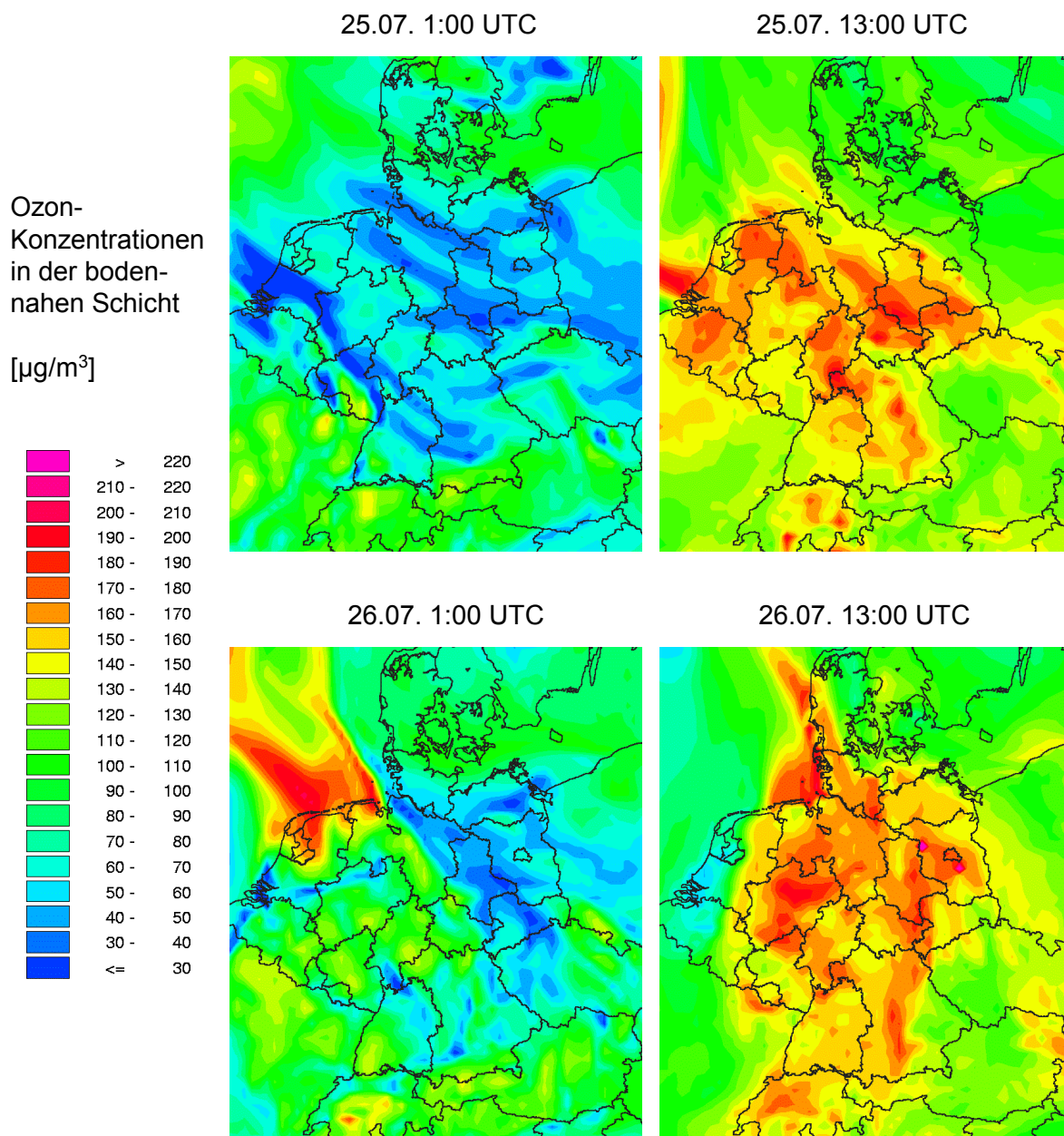


Abb. 6-12: Ozonmodellierung für den Referenzfall. Konzentrationen von Ozon in der untersten Modellschicht (0 – 75 m) zu vier Zeitpunkten am 25.07. und 26.07.1994.

weit unter $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bewegen, im Nest2-Gebiet leicht über $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$, während sie im Nest1-Gebiet sogar $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ überschreiten. Der Tagesverlauf der drei Gebiete ist sehr ähnlich, die Mittelwerte erreichen knapp $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$. In Abb. 6-12 sind am 25.07., 12:00 UTC, hohe bodennahe O_3 -Werte in ganz Deutschland außer im Nordwesten erkennbar, in den Benelux-Staaten, Nordfrankreich und Teilen der Schweiz. Während die mittleren Konzentrationen des Nest2- und des Nest3-Gitters auch in der Nacht zum 26.07. einen ähnlichen Verlauf zeigen und bis auf $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ abfallen (Abb. 6-11), sinken die Mittelwerte auf dem Nest1-Gitter nicht unter $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Grund dafür ist eine Ozonfahne (Abb. 6-12), die sich in der 2. Tageshälfte des 25.07. über der Nordsee und im Küstenbereich bildet und dort auch nachts nicht abgebaut wird. Daher bleiben die nächtlichen O_3 -Maxima des Nest1-Gebiets (Abb. 6-11) auf demselben Niveau wie die Tageswerte am 25.07. Im Verlauf des 26.07. steigen die mittleren Konzentrationen wieder

an und erreichen Ozonwerte bis über $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Dabei liegen die des Nest3-Gitters um etwa $8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ höher als die der anderen beiden Gitter. Das Maximum von $268 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wird auf dem Nest1-Gebiet nördlich von Rathenow um 15:00 Uhr UTC simuliert. Bis zum Ende des 26.07. sinken die mittleren Konzentrationen wieder auf unter $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ab.

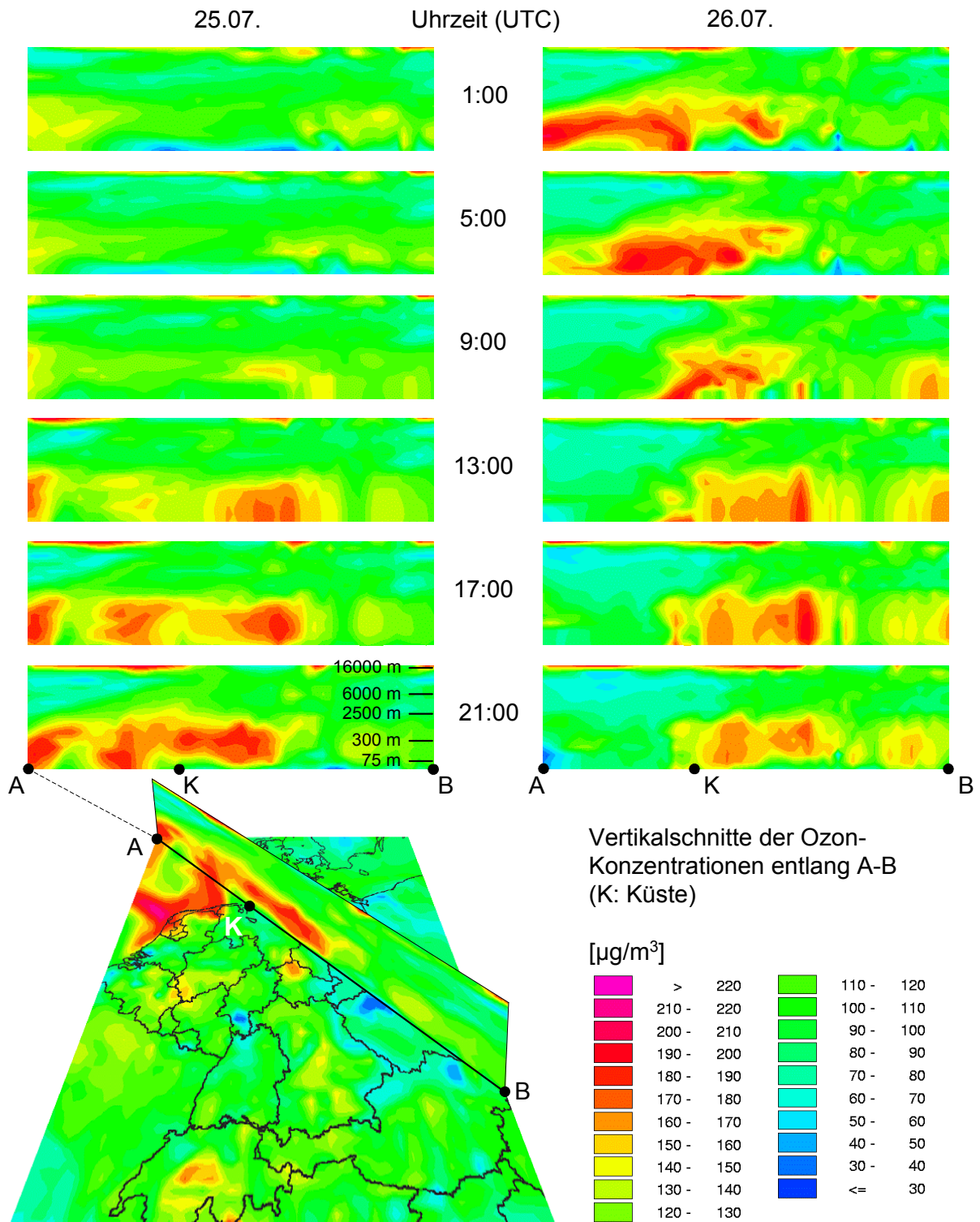


Abb. 6-13: Vertikalschnitte der O_3 -Konzentrationen im Referenzfall. In den Nachtstunden wird der O_3 -Abbau in der bodennahen Schicht über dem Festland (K – B) deutlich, während über der Nordsee (A – K) kein Abbau stattfindet. Zeitangaben in UTC.

Das Ozon, das sich in den Tagesstunden des 25. und 26.07. bildet, wird nur in der untersten Schicht weitgehend abgebaut, wie Abb. 6-13 belegt. Gezeigt sind Vertikalschnitte entlang einer von Nordwest nach Südost verlaufenden Linie (A – K – B) für jeweils 6 Stunden an beiden Tagen. Am Abend des 25. gehen die Konzentrationen in der untersten Schicht über dem Festland (K – B) stark zurück, während das Ozon in höheren Schichten nachts erhalten bleibt. Nur über der Nordsee (A – K) reicht dieses Reservoir in die unterste Schicht hinein und führt zu der in Abb. 6-12 deutlich ausgeprägten Ozonfahne. Am Abend des 26.07. ist ebenfalls der nächtliche O₃-Abbau in der bodennahen Schicht zu beobachten.

Ziel der Nestung ist es, durch Erhöhung der horizontalen Auflösung für ein Teilgebiet die ortsabhängigen physikalischen und chemischen Prozesse genauer abzubilden, als dies in der gröberen Auflösung möglich ist. Daher sind in der Darstellung der O₃-Konzentrationen des Nest2- bzw. Nest3-Gitters auch jeweils die Ergebnisse der Simulationen der gröberen Gitter enthalten (Abb. 6-14 und Abb. 6-15). Offensichtlich werden durch den Übergang der Gitterweite von 18 km (Nest1) auf 6 km (Nest2) wesentliche Änderungen in der räumlichen Auflösung der Ozonkonzentrationen erreicht. Dagegen bringt eine weitere Verringerung der Gitterweite auf 2 km (Nest3) einen kleineren Informationsgewinn. Dies lässt sich unter anderem mit der für atmosphärenchemische Verhältnisse relativ langen Lebensdauer des Ozons von einigen Tagen erklären (FABIAN, 1992). Aufgrund der in den beiden kleineren Nestgebieten weniger ausgeprägten Orographie und der während dieser Zwei-Tagesepisode räumlich gesehen eher gleichförmigen Meteorologie sind in den O₃-Konzentrationen keine auffallenden lokalen Ereignisse zu erwarten. Welche Rolle in diesem Zusammenhang die Lokalisierung und räumliche Auflösung der anthropogenen Emissionen spielt, wird in Kapitel 6.6.5 näher untersucht.

In Tabelle 6-5 sind einige charakteristische Größen der Ozonkonzentrationen für den Referenzfall zusammengefasst. Mit Blick auf die festen Anfangsbedingungen aller CTM-Modellläufe wird die Auswertung nicht nur für die gesamte Episode, sondern auch für die beiden Einzeltage durchgeführt. Die mittleren Konzentrationen (vgl. auch Abb. 6-11) sind mit Werten über 100 µg/m³ relativ hoch, obwohl auch die niedrigen nächtlichen Konzentrationen in die Mittelung einbezogen werden. Der Anstieg vom ersten auf den zweiten Tag zeigt sich in den Konzentrationen, aber auch in den Überschreitungshäufigkeiten von 120 µg/m³ und den AOT60-Werten. So wird auf dem Nest1-Gebiet am 25.07. bei 40 % der Stundenwerte die 120 µg/m³-Marke überschritten, am 26.07. schon bei über 50 %. Auf dem Nest2- und Nest3-Gebiet sind die mittleren Konzentrationen auf städtischem Gebiet höher als die Konzentrationen auf dem Gesamtgebiet. Das liegt vermutlich daran, dass dort die tagsüber stärkere Ozonproduktion in den Städten aufgrund des größeren Angebots an Ozonvorläufersubstanzen gegenüber dem nächtlichen durch NO-Emissionen induzierten Ozonabbau leicht überwiegt.

Während die Überschreitungshäufigkeiten eher ein Maß für die räumliche und zeitliche Ausdehnung hoher Ozonkonzentrationen darstellen (diese Werte liegen umso höher, je länger die hohen Konzentrationen andauern und je größer das betroffene Gebiet ist), geben die AOT60-Werte eine Vorstellung davon, wie groß diese Überschreitung ist (60 ppbV ≈ 120 µg/m³ bei 1000 mbar und 20 °C). Da beide Parameter implizite Schwellen enthalten, können sie eine wesentlich stärkere Dynamik entwickeln als die reinen Mittelwerte, vor allem dann, wenn sich die Ozonkonzentrationen im Bereich dieser Schwelle bewegen. Dies ist z. B. auf dem Nest3-Gebiet zu beobachten: Während sich die Mittelwerte der beiden Tage von

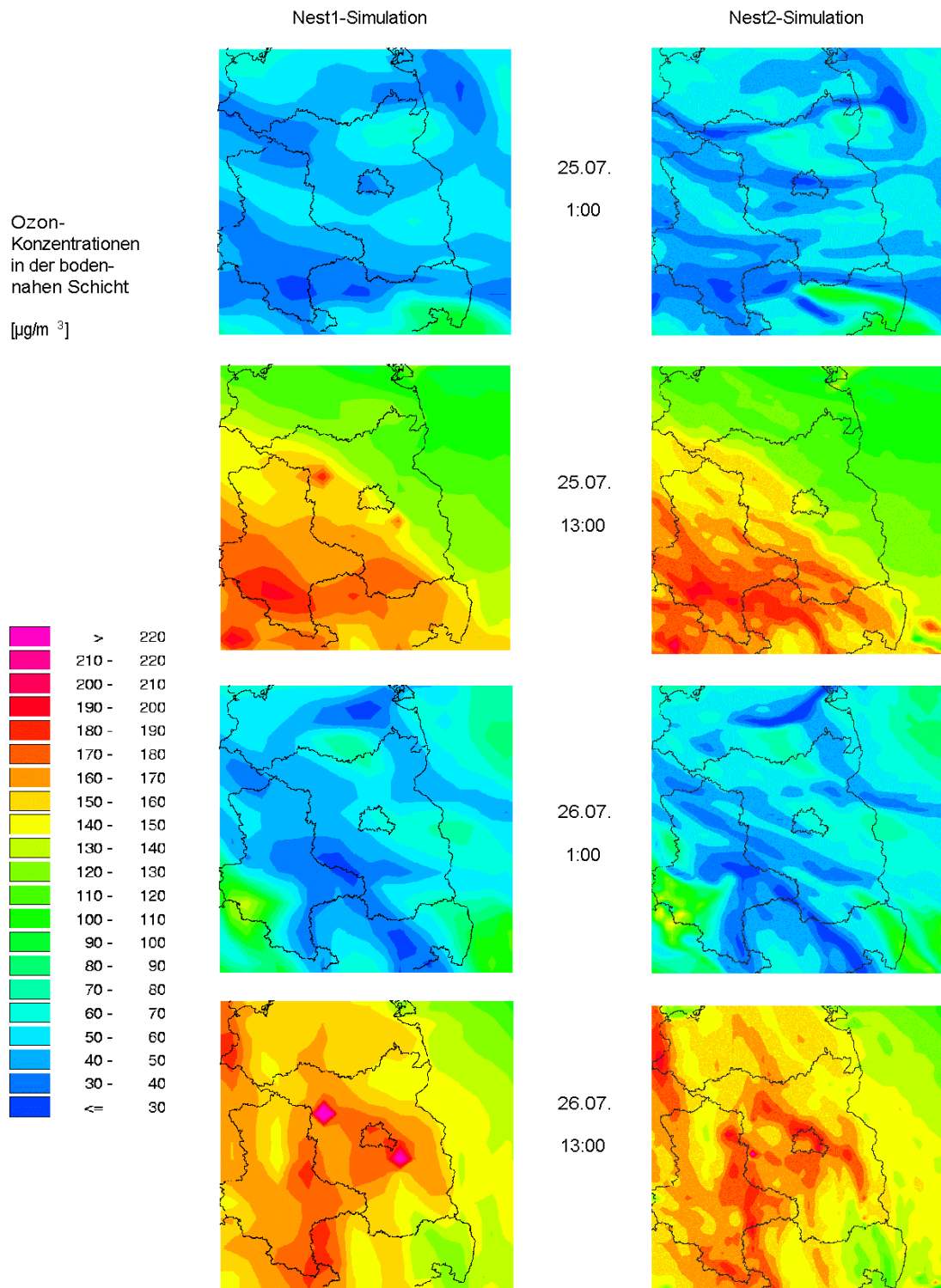


Abb. 6-14: Bodennahe O₃-Konzentrationen auf dem vom Nest2-Gitter überdeckten Gebiet. Die linke Reihe stellt die Ergebnisse der Nest1-Simulation in einer Auflösung von 18 km x 18 km dar, die rechte die der Nest2-Simulation (6 km x 6 km). Zeitangaben in UTC.

96,8 µg/m³ auf 109,8 µg/m³ um nur etwa 13 % ändern, steigen die Überschreitungshäufigkeiten um 64 % und die AOT60-Werte sogar um 135 %.

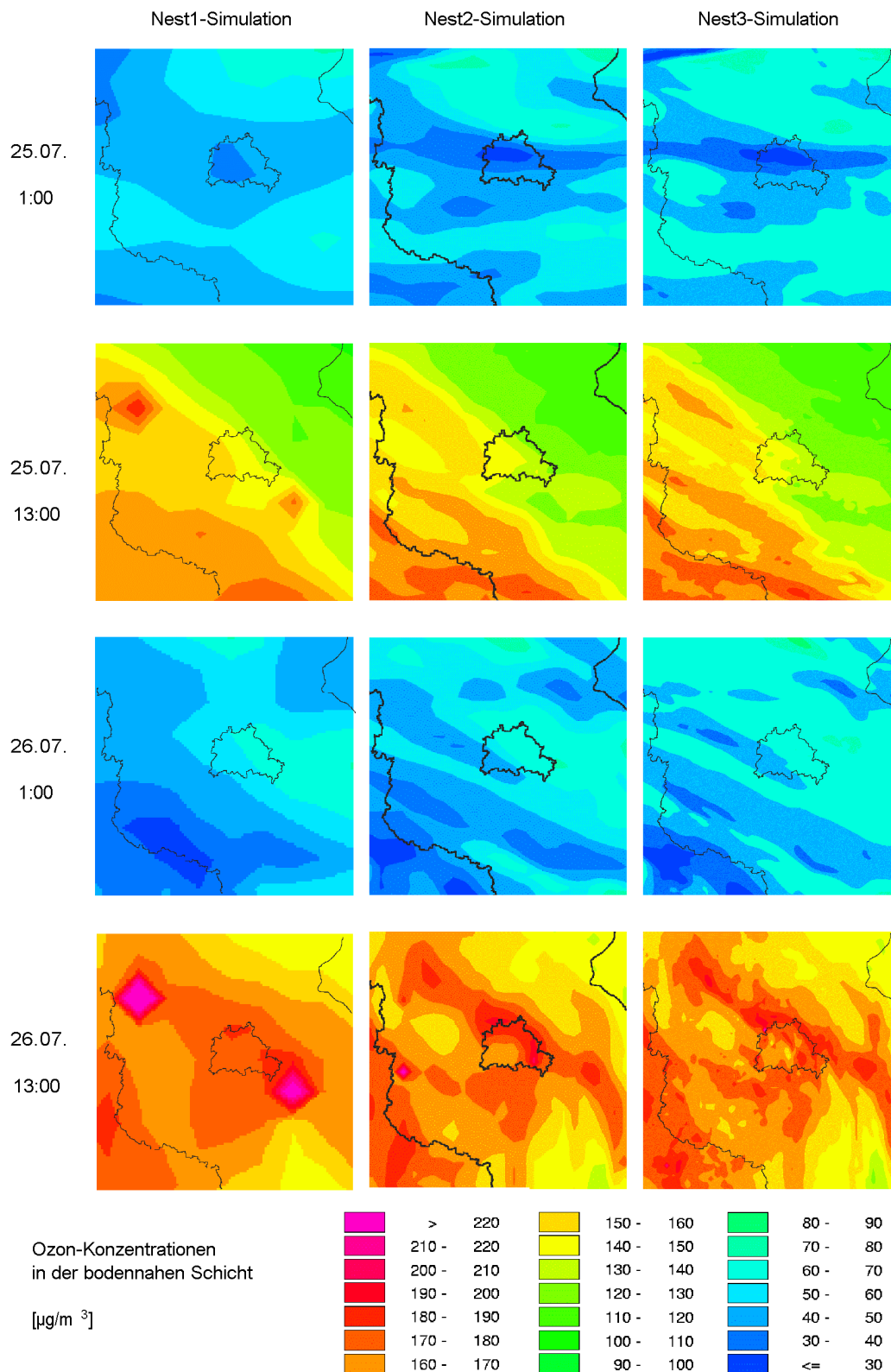


Abb. 6-15: Bodennahe O_3 -Konzentrationen auf dem Nest3-Gebiet. Die linke Reihe stellt die Ergebnisse der Nest1-Simulation in einer Auflösung von $18 \text{ km} \times 18 \text{ km}$ dar, die mittlere die der Nest2-Simulation ($6 \text{ km} \times 6 \text{ km}$), die rechte die der Nest3-Simulation ($2 \text{ km} \times 2 \text{ km}$). Zeitangaben in UTC.

Tabelle 6-5: Zusammenfassung der charakteristischen Vergleichswerte für den Referenzfall REF

		Nest1		Nest2		Nest3	
		gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch
mittlere Konzentrationen [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Episode	111,0	106,3	101,8	102,7	103,3	102,6
	1. Tag	104,9	100,2	97,2	98,8	96,8	95,5
	2. Tag	117,0	112,4	106,4	106,5	109,8	109,8
Überschreitungs- häufigkeit von 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Episode	46%	44%	36%	38%	37%	38%
	1. Tag	40%	41%	29%	34%	28%	30%
	2. Tag	51%	47%	43%	41%	46%	45%
AOT60 [ppb·h]	Episode	301	315	249	282	268	283
	1. Tag	125	127	101	119	80	75
	2. Tag	176	187	147	163	188	208

6.6.2 Einfluss anthropogener und biogener Emissionen

In der Komplexität atmosphärenchemischer Prozesse stellen anthropogene Emissionen einen wichtigen Einflussfaktor dar. Daher soll zunächst die generelle Wirkung der anthropogenen Emissionen und deren Relation zum Einfluss biogener Emissionen erfasst werden.

Betrachtete Fälle

Es werden zwei Fälle definiert:

- OBIO: Keine biogenen Emissionen in Deutschland
- OANT: Keine anthropogenen Emissionen in Deutschland

Die Änderungen in den anthropogenen Emissionen können aus Tabelle 6-3 auf Seite 89 abgeleitet werden. Im Fall OBIO verringern sich die NMVOC-Emissionen um die in Tabelle 6-6 angegebenen Werte. Bei allen drei Stoffgruppen stammen fast die gesamten Emissionen aus

Tabelle 6-6: Biogene Emissionen von Deutschland auf dem jeweiligen Nestgebiet während der Zwei-Tagesepisode

RADM2- klasse ¹	Nest1		Nest2		Nest3	
	[t]	Anteil ²	[t]	Anteil ²	[t]	Anteil ²
OLT	7023	91%	2141	94%	779	95%
OLI	7023	97%	2141	98%	779	98%
ISO	2726	100%	836	100%	209	100%
Summe	16771	62%	5119	73%	1766	76%

¹⁾ Erklärung siehe Tabelle 6-3

²⁾ Anteil an der Summe aus biogenen und anthropogenen Emissionen von Deutschland auf dem jeweiligen Gitter

biogenen Quellen. Auch an den Gesamt-NMVOC-Emissionen machen sie, wie schon in Abb. 6-6 in Summe für das gesamte Gittergebiet dargestellt, einen Anteil von über 60 % aus.

Ergebnisse und Diskussion

Das „Abschalten“ der anthropogenen bzw. biogenen Emissionen kann verschiedene Auswirkungen auf die bodennahen O_3 -Konzentrationen haben, wie in Abb. 6-16 illustriert wird: In der

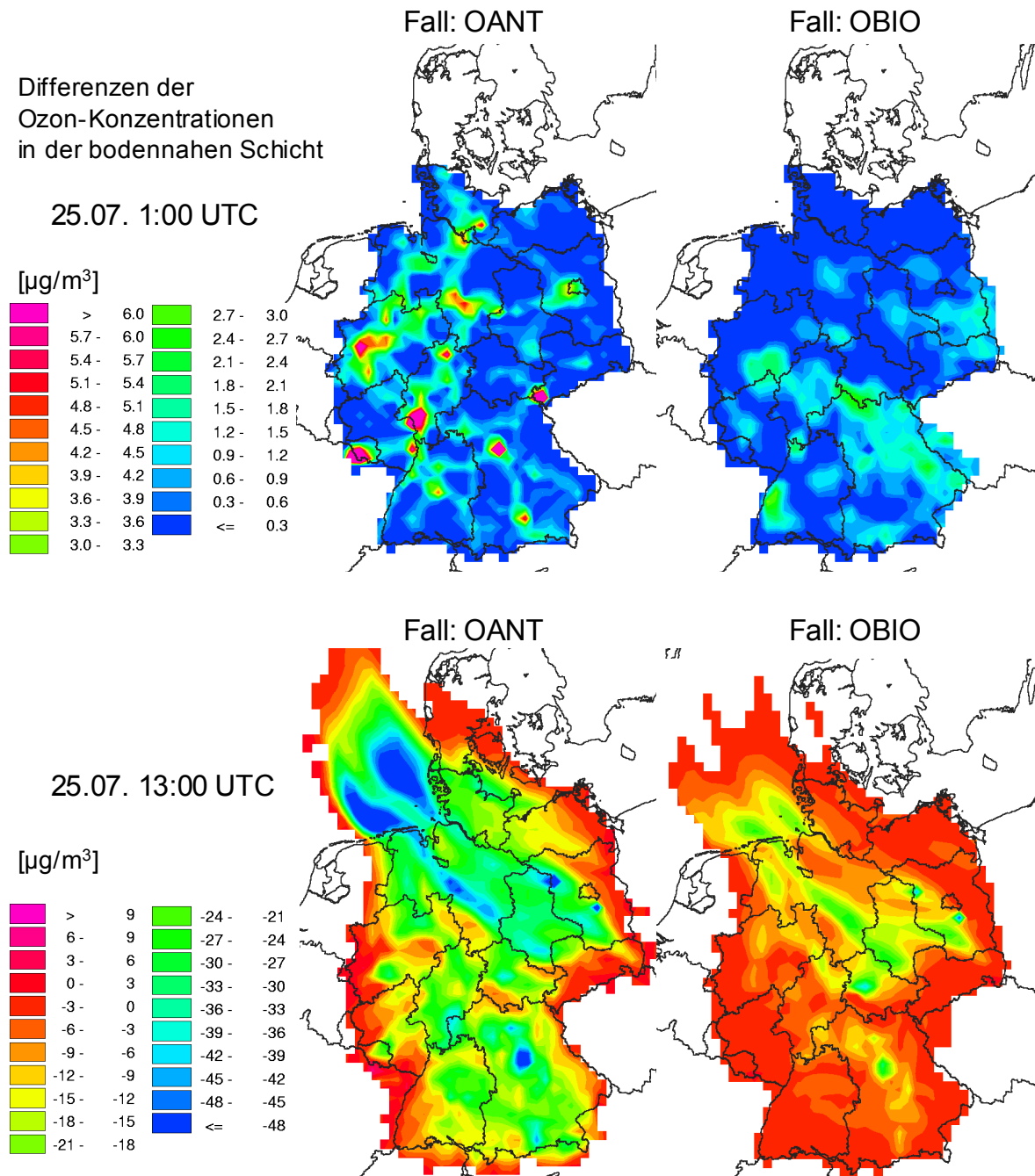


Abb. 6-16: Differenzen der bodennahen Ozonkonzentrationen für die Sensitivitätsfälle OANT und OBIO zu zwei verschiedenen Zeitpunkten am 25.07.1994. Gezeigt wird jeweils die Differenz zwischen den Konzentrationen des Sensitivitätsfalls und denen des Referenzfalls (z. B. Differenz = $\text{Konz}_{\text{OANT}} - \text{Konz}_{\text{REF}}$).

Nacht wird durch NO , das zum Großteil im Straßenverkehr emittiert wird, Ozon abgebaut. Werden die anthropogenen Emissionen in Deutschland nicht in die Simulation einbezogen, verbleibt deshalb in den Ballungszentren, an einzelnen Punktquellenstandorten oder entlang

der Autobahnen im OANT-Fall mehr Ozon als im Referenzfall. Tagsüber in der photochemisch aktiven Phase tragen dagegen die anthropogenen Emissionen verstärkt zur Ozonbildung bei, so dass ein Abschalten dieser Emissionen im Vergleich zum Referenzfall um bis zu $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ geringere Ozonkonzentrationen bewirkt. Aus dem unteren Differenzenbild wird auch die Herkunft eines Teils der Ozonfahne über der Nordsee (siehe Abb. 6-12) deutlich: Sie wird unter anderem aus Vorläufersubstanzen gebildet, die aufgrund der meteorologischen Verhältnisse in nordwestlicher Richtung transportiert werden und im OANT-Fall nicht vorhanden sind. Die am 26.07. auftretenden hohen Ozonkonzentrationen über der Nordsee (siehe Abb. 6-5) werden dagegen durch Transport unter Westwindeinfluss einer von den Niederlanden ausgehenden Fahne gebildet.

Das Fehlen der biogenen Emissionen (OBIO-Fall rechts) führt zu keinen so drastischen Konzentrationsabnahmen wie im OANT-Fall, zeigt aber ähnliche Tendenzen: Nachts kommt es zu geringfügig höheren Ozonkonzentrationen, vor allem in Gebieten, wo im OANT-Fall kein Anstieg zu beobachten ist. Am Tag wird weniger Ozon produziert, hier liegen allerdings die größten Differenzen nur bei $-33 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Die Auswirkungen von OANT und OBIO im zeitlichen Verlauf sind unterschiedlich (Abb. 6-17): Beim Fehlen der biogenen Emissionen treten vor allem zum Sonnenaufgang die

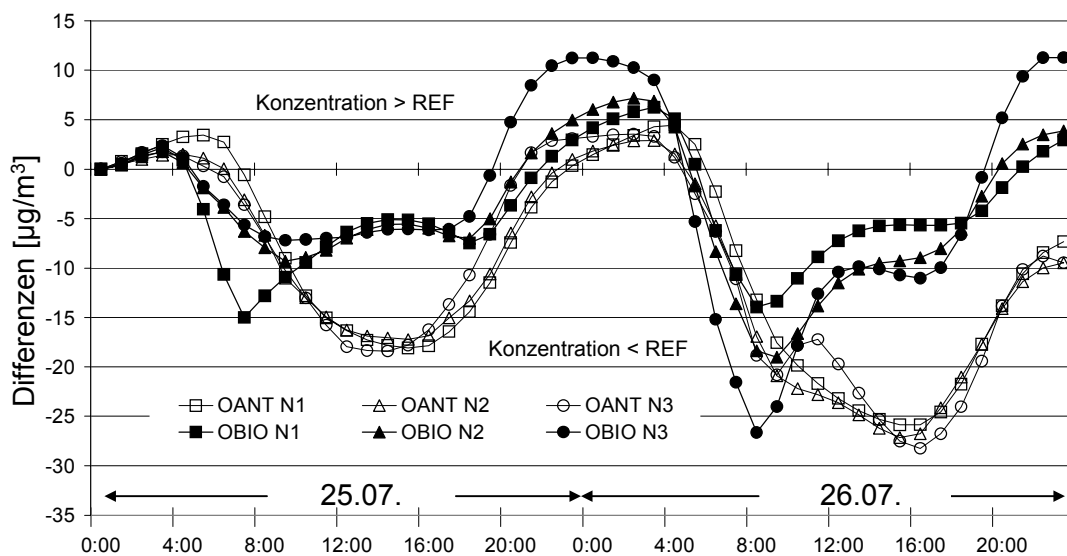


Abb. 6-17: Zeitlicher Verlauf der Differenzen der mittleren O_3 -Konzentrationen auf den drei Nest-Gebieten und dem Referenzfall für OANT und OBIO. Zeitangaben in UTC.

höchsten Konzentrationsrückgänge im Vergleich zum Referenzfall auf, ohne die anthropogenen Emissionen liegen die Minima der Differenzen (= Maxima der Ozonverminderung) dagegen am frühen Nachmittag und sind wesentlich breiter. Die nachts zu beobachtende Ozonerhöhung vom 25.07. auf den 26.07. fällt im OBIO-Fall etwa doppelt so hoch aus wie beim OANT-Fall, vermutlich wegen ausbleibender Ozonolyse der biogen emittierten Substanzen.

Zusammenfassung

Eine Zusammenfassung der Auswirkungen des OANT- und des OBIO-Falls auf die Ozonkonzentrationen in Deutschland gibt Tabelle 6-7. Über die gesamte Episode hinweg zeigt sich

Tabelle 6-7: Zusammenfassung der O₃-Konzentrationen für die Fälle OANT und OBIO

		Nest1		Nest2		Nest3	
		gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch
REF	absolut [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	111,0	106,3	101,8	102,7	103,3	102,6
OANT	absolut [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	101,3	108,2	91,4	95,2	93,4	95,3
	Abw. von REF [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	-9,6	1,9	-10,4	-7,5	-9,9	-7,4
	Abw. von REF [%]	-9%	2%	-10%	-7%	-10%	-7%
OBIO	absolut [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	106,9	101,3	97,7	97,6	100,2	99,4
	Abw. von REF [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	-4,0	-5,0	-4,1	-5,0	-3,1	-3,2
	Abw. von REF [%]	-4%	-5%	-4%	-5%	-3%	-3%

eine Verminderung der mittleren O₃-Konzentrationen von ca. 10 % im OANT-Fall und 3 – 4 % im OBIO-Fall, solange das Gesamtgitter betrachtet wird. Nur auf städtischem Gebiet (bebaute Fläche der Gitterzellen ≥ 25 %) hebt sich im OANT-Fall das Nest1-Gitter von den anderen beiden ab: Dort erhöhen sich die mittleren Ozonkonzentrationen wegen großräumig fehlender NO-Emissionen für den Ozonabbau um 2 %, während sie auf dem Nest2- und Nest3-Gitter um 7 % abnehmen.

6.6.3 Variation der biogenen Emissionen

Für die Bewertung der Auswirkungen von Unsicherheiten in der Berechnung anthropogener NMVOC-Emissionen auf bodennahe Ozonkonzentrationen ist speziell für sommerliche Episoden ein Vergleich mit den Sensitivitäten biogener Emissionen interessant, da sie im Untersuchungszeitraum die anthropogenen Emissionen um bis zu 350 % übertreffen (siehe Abb. 6-6). Es werden folgende Fälle definiert:

- BIO[0,5]: Reduktion der biogenen Emissionen in Deutschland um 50 %
- BIO[1,5]: Erhöhung der biogenen Emissionen in Deutschland um 50 %

Die sich aus diesen Variationen ergebenden Emissionen können aus Tabelle 6-6 berechnet werden. Änderungen in der räumlichen, zeitlichen oder stofflichen Auflösung werden nicht durchgeführt.

Ergebnisse und Diskussion

Aus dem stündlichen Verlauf der Konzentrationsdifferenzen zum Referenzfall lassen sich wieder die maßgeblichen Prozesse der Ozonchemie erkennen (Abb. 6-18). Um die Hälfte verringerte Emissionen von biogenen NMVOC (BIO[0,5]) bewirken tagsüber, insbesondere in den Vormittagsstunden, eine Verminderung der Ozonproduktion gegenüber dem Referenzfall. In den Nachtstunden findet dagegen weniger Ozonolyse statt, also wird weniger Ozon abgebaut. Der Effekt ist ungefähr halb so stark wie beim völligen Abschalten der biogenen Emissionen im Fall OBIO (siehe Abb. 6-17). Eine Erhöhung der biogenen NMVOC-Emissionen hat gerade den umgekehrten Effekt zur Folge.

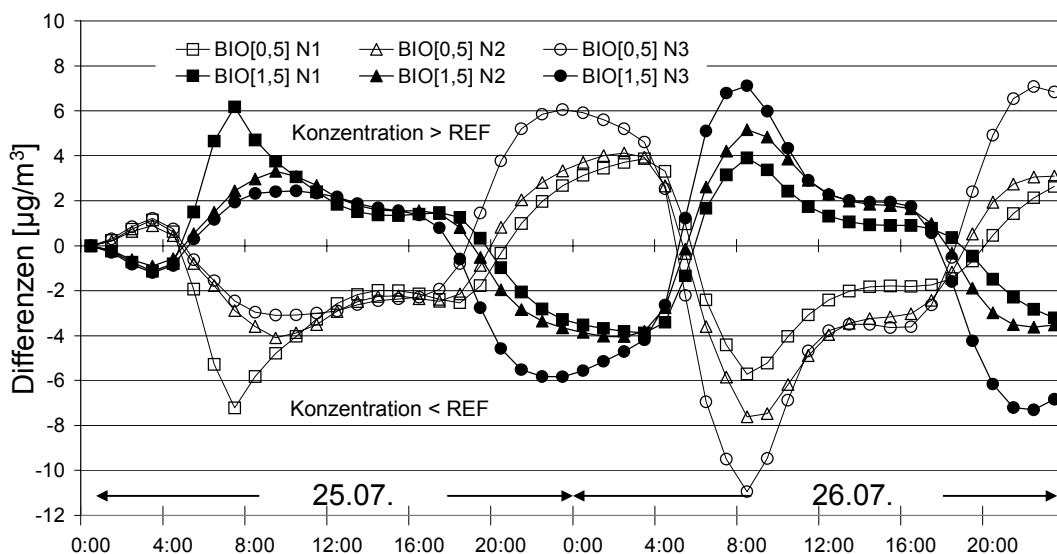


Abb. 6-18: Zeitlicher Verlauf der Differenzen der mittleren O₃-Konzentrationen auf den drei Nest-Gebieten und dem Referenzfall für BIO[0,5] und BIO[1,5]. Zeitangaben in UTC.

Zusammenfassung

Die Auswirkungen dieser pauschalen Änderungen von biogenen Emissionen in Deutschland für die Fälle BIO[0,5] und BIO[1,5] zeigt Tabelle 6-8. Im Mittel wird durch die Halbierung der

Tabelle 6-8: Zusammenfassung der O₃-Konzentrationen für die Fälle BIO[0,5] und BIO[1,5]

		Nest1		Nest2		Nest3	
		gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch
REF	absolut [µg/m ³]	111,0	106,3	101,8	102,7	103,3	102,6
	absolut [µg/m ³]	109,8	104,4	100,7	101,1	102,7	102,1
BIO[0,5]	Abw. von REF [µg/m ³]	-1,2	-1,8	-1,1	-1,6	-0,6	-0,5
	Abw. von REF [%]	-1%	-1,7%	-1,1%	-1,5%	-0,5%	-0,5%
BIO[1,5]	absolut [µg/m ³]	111,3	107,6	102,1	103,4	102,9	102,3
	Abw. von REF [µg/m ³]	0,4	1,3	0,3	0,7	-0,4	-0,4
	Abw. von REF [%]	0,3%	1,3%	0,3%	0,7%	-0,4%	-0,4%

biogenen Emissionen (BIO[0,5]) eine leichte Verringerung der Ozonkonzentrationen erreicht, die Erhöhung der biogenen Emissionen (BIO[1,5]) führt auf dem Nest1- und Nest2-Gebiet zu einem leichten Anstieg, auf dem Nest3-Gebiet aber, wegen des stärkeren Effekts der nächtlichen Ozonolyse, zu geringfügig niedrigeren bodennahen Ozonkonzentrationen verglichen mit dem Referenzfall.

6.6.4 Variation des VOC/NO_x-Verhältnisses

Das VOC/NO_x-Verhältnis spielt im Ozonbildungsmechanismus eine wichtige Rolle. Steigt das Konzentrationsverhältnis eines typischen städtischen Luftgemischs, ausgedrückt in VOC/NO₂ [ppbC/ppb], über einen Wert von 5,5, so überwiegen nach SEINFELD (1997) die VOC-OH-Reaktionen, was zu einer verstärkten Peroxyradikalbildung führt und die Ozonproduktion beschleunigt. Unterhalb dieses Wertes finden verstärkt Reaktionen von NO₂ mit OH zu HNO₃

statt, wodurch NO_2 dem Kreislauf entzogen und so die Ozonproduktion vermindert wird. Ist soviel VOC vorhanden, dass die Ozonbildung auf NO_x wesentlich sensitiver reagiert als auf VOC, spricht man von NO_x -Limitierung, im umgekehrten Fall von VOC-Limitierung. Diese Reaktionen lassen sich auch in chemischen Boxmodellen unter gleichmäßigen meteorologischen Bedingungen nachvollziehen. Bei der Simulation der Ozonkonzentrationen unter dem Einfluss realitätsnaher Meteorologie und räumlich und zeitlich variierender Emissionen weisen die Ergebnisse keine so klaren Gesetzmäßigkeiten auf. Dennoch stellt die Änderung des VOC/ NO_x -Verhältnisses eine interessante Möglichkeit zur Variation der anthropogenen Jahresemissionen dar.

Betrachtete Fälle

Es werden folgende Fälle mit variierenden NO_x - und NMVOC-Emissionen definiert (Methan wird vom CTM vorgegeben), wobei die Zahlen in eckigen Klammern die Faktoren angeben, mit denen jeweils die anthropogenen NMVOC-Emissionen (NM) bzw. NO_x -Emissionen (N) multipliziert werden:

- NM[2]N[1]
- NM[1,5]N[0,75]
- NM[1]N[0,5]
- NM[1]N[2]
- NM[0,75]N[1,5]
- NM[0,5]N[1]
- NM[2]N[2]

Es werden also eine Verdoppelung und eine Halbierung des NMVOC/ NO_x -Verhältnisses auf unterschiedlichen Emissionsniveaus simuliert. Die sich hieraus ergebenden Gesamtemissionen zeigt Tabelle 6-9. Im rechten Teil der Tabelle werden die resultierenden NMVOC/ NO_x -Ver-

Tabelle 6-9: NMVOC- und NO_x -Emissionen (anthropogen und biogen) der Sensitivitätsfälle zur Untersuchung der Auswirkungen von Änderungen im NMVOC/ NO_x -Verhältnis

Fall	Faktor ¹	NMVOC Gesamtemissionen [t]			Faktor ¹	NO_x Gesamtemissionen [t]			NMVOC/ NO_x - Verhältnis ²		
		N1	N2	N3		N1	N2	N3	N1	N2	N3
REF	1	26872	7045	2317	1	12006	2695	710	2,2	2,6	3,3
NM[2]N[1]	2	36973	8970	2869	1	12006	2695	710	3,1	3,3	4,0
NM[1,5]N[0,75]	1,5	31922	8008	2593	0,75	9004	2021	533	3,5	4,0	4,9
NM[1]N[0,5]	1	26872	7045	2317	0,5	6003	1347	355	4,5	5,2	6,5
NM[1]N[2]	1	26872	7045	2317	2	24012	5389	1420	1,1	1,3	1,6
NM[0,75]N[1,5]	0,75	24347	6563	2179	1,5	18009	4042	1065	1,4	1,6	2,0
NM[0,5]N[1]	0,5	21821	6082	2042	1	12006	2695	710	1,8	2,3	2,9
NM[2]N[2]	2	36973	8970	2869	2	24012	5389	1420	1,5	1,7	2,0
NM[0,5]N[0,5]	0,5	21821	6082	2042	0,5	6003	1347	355	3,6	4,5	5,7

¹⁾ Quotient der anthropogenen Emissionen des betrachteten Stoffes und derer des Referenzfalls REF

²⁾ Resultierendes NMVOC/ NO_x -Verhältnis aus den Summen der anthropogenen und biogenen Emissionen

hältnisse aus der Summe der anthropogenen und biogenen NMVOC-Emissionen und den anthropogenen NO_x -Emissionen gezeigt.

Ergebnisse und Diskussion

Die zeitliche und räumliche Verteilung der NMVOC/ NO_x -Emissionsverhältnisse ist in den beiden folgenden Grafiken am Beispiel des Nest3-Gitters illustriert. Abb. 6-19 zeigt die Ent-

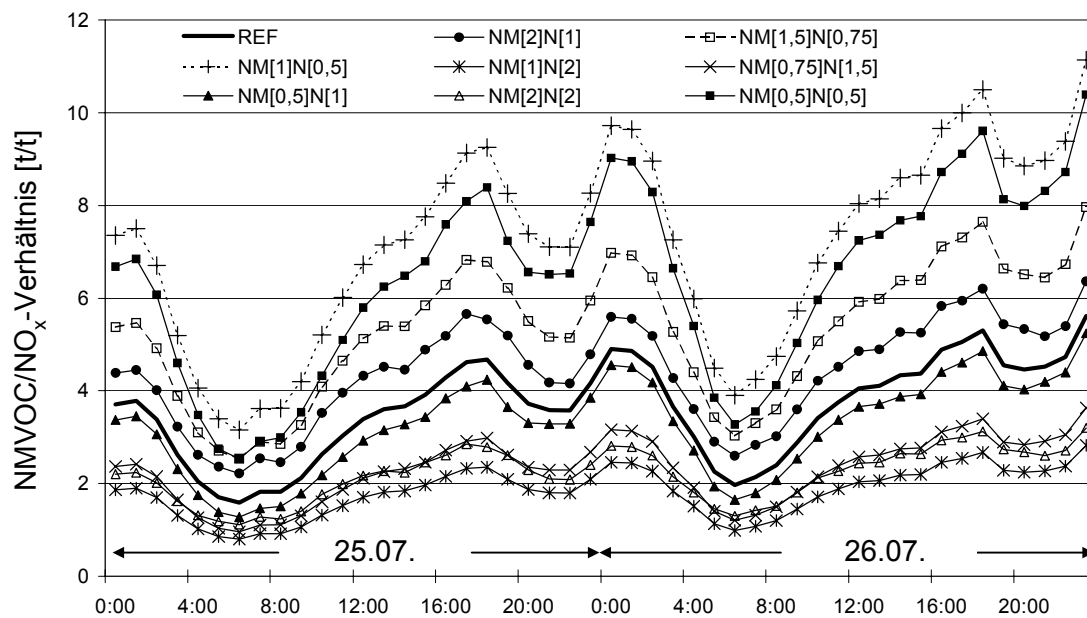


Abb. 6-19: Zeitlicher Verlauf der NMVOC/ NO_x -Emissionsverhältnisse auf dem Nest3-Gebiet für die Sensitivitätsfälle und den Referenzfall.

wicklung der mittleren NMVOC/ NO_x -Verhältnisse über die Zwei-Tagesepisode. Die Bandbreite der NMVOC/ NO_x -Verhältnisse reicht bei dieser räumlichen Mittelung von 0,8 am 25.07. um 7:00 UTC im NM[1]N[2]-Fall bis 11,13 am Ende der Episode im NM[1]N[0,5]-Fall. Auf den anderen beiden Gittern sieht der Verlauf sehr ähnlich aus, allerdings erreichen die Verhältnisse, wie auch schon Tabelle 6-9 vermuten ließ, nicht so hohe Werte.

Die räumliche Verteilung der NMVOC/ NO_x -Verhältnisse am 25.07. um 13:00 UTC ist in Abb. 6-20. dargestellt. Da hohe NO_x -Emissionen meistens aus sehr eng begrenzten Quellen, nämlich aus Punkt- oder Linienquellen stammen, lassen sich nur wenige Strukturen (z. B. Autobahnen) erkennen. In einzelnen Gitterpunkten können die Werte weit über 20 liegen. Nach den Angaben zur Häufigkeitsverteilung liegen knapp 2/3 der Werte unter einem NMVOC/ NO_x -Verhältnis von 4, der Rest darüber.

Ein Differenzenbild der Ozonkonzentrationen in zeitlicher Auflösung am Beispiel des Nest3-Gebiets zeigt Abb. 6-21. Deutlich wird der steigende Einfluss der Änderungen des NMVOC/ NO_x -Verhältnisses im Episodenverlauf. Die stärksten Änderungen liegen am Nachmittag des 26.07. in den Fällen NM[1]N[0,5] und NM[0,5]N[0,5] (jeweils Halbierung der NO_x -Emissionen) mit einer Konzentrationsabnahme von ca. $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ vor, sowie in den Fällen NM[2]N[2] ($+13,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$) und NM[1]N[2] ($+11,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$), in denen die NO_x -Emissionen jeweils verdoppelt werden. In den Tagesstunden verlaufen die Ozonkonzentrationen wie erwartet: Werden die NO_x -Emissionen gemindert (NM[1,5]N[0,75], NM[1]N[0,5], NM[0,5]N[0,5]),

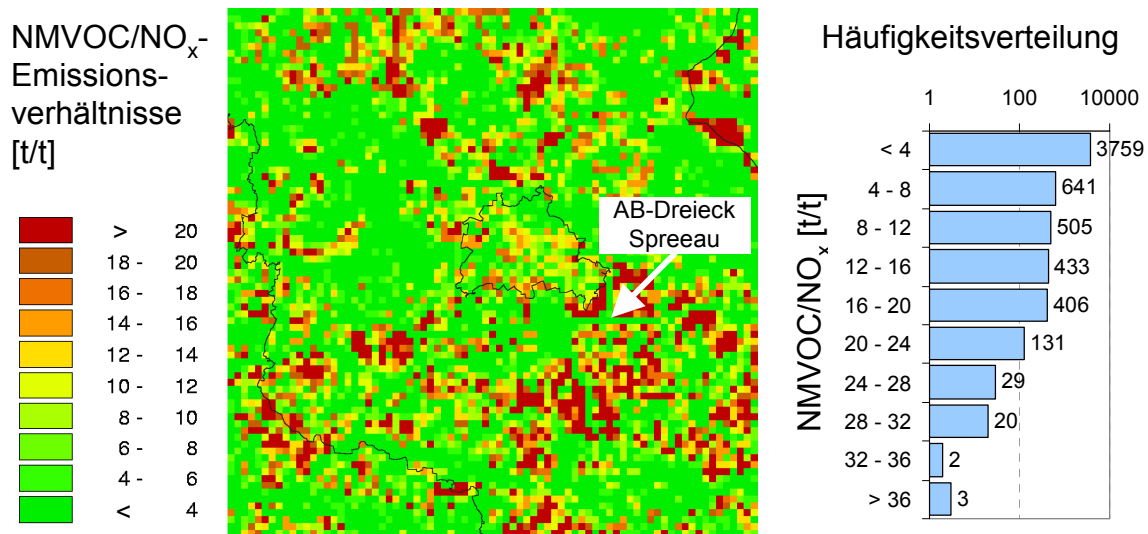


Abb. 6-20: Räumliche Verteilung der NMVOC/NO_x-Verhältnisse auf dem Nest3-Gitter am 25.07. um 13:00 UTC für NM[2]N[1]. Das rechte Diagramm zeigt die Häufigkeitsverteilung der NMVOC/NO_x-Verhältnisse.

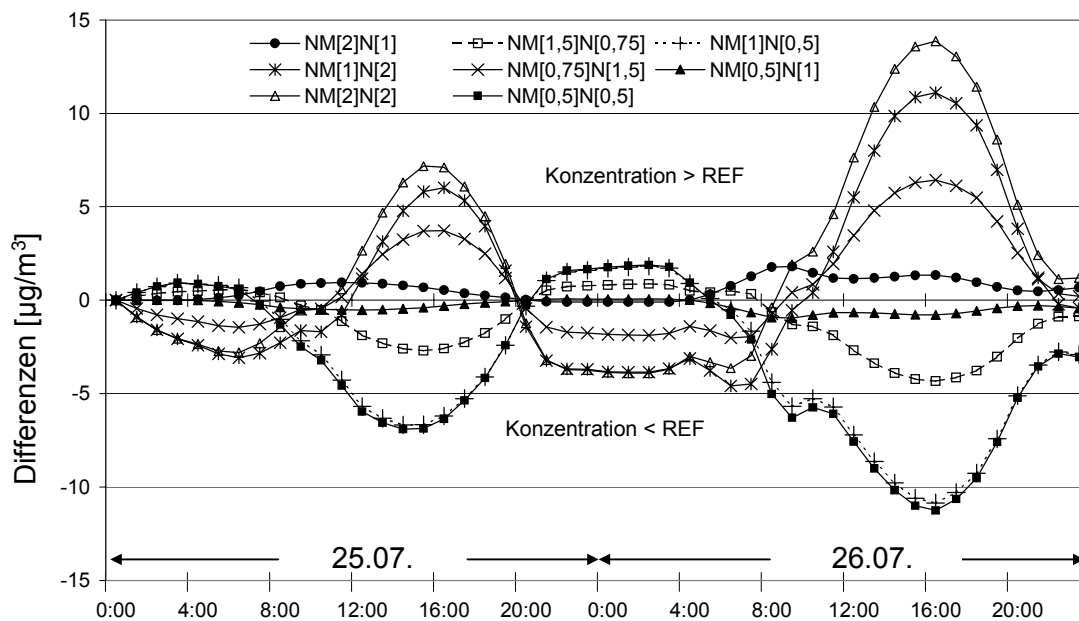


Abb. 6-21: Zeitlicher Verlauf der stündlich gemittelten Differenzen der Ozonkonzentrationen für die Sensitivitätsfälle und den Referenzfall auf dem Nest3-Gebiet.

gehen auch die bodennahen Konzentrationen von Ozon zurück. Der Einfluss der unterschiedlichen NMVOC-Emissionen in NM[1]N[0,5] und NM[0,5]N[0,5] ist wegen des hohen Anteils biogener Emissionen nicht so bedeutend. In den Fällen, wo NO_x nicht verändert wird (NM[2]N[1] und NM[0,5]N[1]) geben die erhöhten bzw. erniedrigten NMVOC-Emissionen den Ausschlag für die Änderungen in den Ozonkonzentrationen. Die Fälle mit höheren NO_x-Emissionen führen tagsüber alle zu einer Verstärkung der Ozonproduktion, auch wenn – wie im Fall von NM[0,75]N[1,5] – die NMVOC-Emissionen vermindert werden. Bei gleicher Erhöhung von NO_x (NM[1]N[2] und NM[2]N[2]) führen wiederum die im letzteren Fall verdoppelten NMVOC-Emissionen zu größeren Konzentrationen. In den Nachtstunden herrschen in

etwa umgekehrte Verhältnisse: Aufgrund der Eigenschaft von NO, Ozon abzubauen, liegen die Konzentrationsdifferenzen in den Fällen, wo die NO_x-Emissionen höher als im Referenzfall sind, im negativen Bereich, wo sie niedriger sind, im positiven Bereich. In den beiden Fällen ohne Veränderung der NO_x-Emissionen (NM[0,5]N[1], NM[2]N[1]) können nachts kaum Änderungen der Ozonkonzentrationen festgestellt werden.

Zusammenfassung

Eine Zusammenfassung der Konzentrationen aus der Ozonmodellierung mit diesen Fällen gibt Tabelle 6-10. Gegenüber dem Referenzfall sind die Änderungen in den mittleren Konzentrationen

Tabelle 6-10: Zusammenfassung der charakteristischen O₃-Vergleichswerte für die Fälle NM[2]N[1] – NM[0,5]N[0,5]

Sensitivitätsfall	Nest1		Nest2		Nest3		
	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	
REF	111,0	106,3	101,8	102,7	103,3	102,6	
NM[2]N[1]	112,1	109,0	102,9	104,0	103,9	103,3	
NM[1,5]N[0,75]	110,8	111,3	101,2	103,1	102,3	102,3	
NM[1]N[0,5]	108,8	112,7	98,9	101,7	100,2	100,8	
NM[1]N[2]	108,2	87,9	101,2	98,7	104,2	101,2	
NM[0,75]N[1,5]	109,9	96,3	101,9	100,8	104,2	102,3	
NM[0,5]N[1]	110,3	104,8	101,2	101,9	103,0	102,3	
NM[2]N[2]	110,3	91,0	103,0	100,7	105,2	102,3	
NM[0,5]N[0,5]	108,4	111,8	98,6	101,2	100,0	100,6	
mittlere Konzentrationen							
NM[2]N[1]	1,0%	2,6%	1,0%	1,3%	0,6%	0,6%	
NM[1,5]N[0,75]	-0,2%	4,8%	-0,6%	0,4%	-1,0%	-0,3%	
NM[1]N[0,5]	-2,0%	6,1%	-2,9%	-1,0%	-3,0%	-1,7%	
NM[1]N[2]	-2,5%	-17,3%	-0,6%	-3,9%	0,9%	-1,4%	
NM[0,75]N[1,5]	-0,9%	-9,4%	0,1%	-1,8%	0,8%	-0,3%	
NM[0,5]N[1]	-0,6%	-1,4%	-0,6%	-0,7%	-0,3%	-0,3%	
NM[2]N[2]	-0,6%	-14,4%	1,2%	-1,9%	1,9%	-0,3%	
NM[0,5]N[0,5]	-2,3%	5,2%	-3,2%	-1,4%	-3,2%	-1,9%	
Abweichungen vom Referenzfall							

onen eher gering, sie liegen auf den Nest-Gebieten zwischen -3,2 % (NM[0,5]N[0,5], Nest2) und +1,9 % (NM[2]N[2], Nest3).

Auf rein städtischem Gebiet können die Abweichungen bis zu -17,3 % betragen (NM[1]N[2], Nest1). Auch in den übrigen Fällen zeigen die städtischen Gebiete auf dem Nest1-Gitter die höchsten Unterschiede. Dies ist darauf zurückzuführen, dass nach der Definition der städtischen Gebiete diese zu mindestens 25 % der Zellenfläche bebaut sind. Dadurch werden auf dem Nest1-Gitter nur die größten Ballungsräume berücksichtigt, die relativ hohe NO_x-Emissionen aufweisen, welche dort nachts mehr zum Ozonabbau beitragen als die tagsüber höheren Emissionen von NO_x und NMVOC zur Ozonproduktion. Dementsprechend führt eine Verringerung der NO_x-Emissionen zu höheren Ozonkonzentrationen (z. B. NM[1]N[0,5]),

eine Erhöhung zum Gegenteil. Eine direkte Abhängigkeit der Ozonkonzentrationen auf städtischem Nest1-Gebiet vom NMVOC/NO_x-Verhältnis ist zu erkennen (vgl. auch Tabelle 6-9): In den Fällen, wo das NMVOC/NO_x-Verhältnis größer als das des Referenzfalls ist, werden höhere Ozonkonzentrationen beobachtet, ist es kleiner, liegen die Konzentrationen unterhalb derer des Referenzfalls.

Aus den Ergebnissen lässt sich ersehen, dass die Änderungen von NO_x-Emissionen größere Auswirkungen auf die bodennahen Ozonkonzentrationen haben, als die von NMVOC-Emissionen. Daraus folgt, dass eine NO_x-Limitierung vorliegt.

6.6.5 Variation der räumlichen Verteilung

Die räumliche Auflösung der Emissionen spielt bei der Ozonmodellierung eine entscheidende Rolle. Während Gesamtemissionen der hier betrachteten Stoffe für Deutschland relativ leicht durch Auswertung verfügbarer Statistiken, Studien und Gutachten ermittelt werden können, ist es nicht so einfach möglich, diese Emissionen mit Hilfe von regionalisierten Daten auf kleinräumige Gebiete zu verteilen. Das liegt vor allem daran, dass ein Großteil der Emissionen kleinräumig von Punkt- oder Linienquellen emittiert wird, die nicht gleichmäßig in Deutschland verteilt sind und deren Lage nicht aus statistischen Daten zu ermitteln ist. Vielfach müssen daher Emissionen oder deren Aktivitäten schon von vornherein kleinräumig erfasst werden, z. B. aus Emissionserklärungsdaten, Fahrleistungsdaten auf georeferenzierten Straßenabschnitten oder hochaufgelösten Landnutzungsdaten. Dabei stellt sich die Frage, inwieweit sich der Aufwand einer Erhöhung der räumlichen Auflösung von Ozonvorläufersubstanzen für die bodennahe Ozonmodellierung lohnt.

Betrachtete Fälle

Zur Untersuchung dieser Fragestellung werden vier Sensitivitätsfälle definiert (siehe auch Abb. 6-22):

- OFUEH: „ohne Fahnenüberhöhung“: Bei Emissionen aus Punktquellen mit hohen Schornsteinen, großen Abgastemperaturen und / oder Abgasgeschwindigkeiten wird das Abgas innerhalb sehr kurzer Zeit vertikal in größere Höhen transportiert, bevor es mit der Umgebungsluft reagieren kann und sich den meteorologischen Bedingungen gemäß ausbreitet. Die Berechnung dieser Fahnenüberhöhung erfolgt normalerweise im EEM-Präprozessor des CTM. Im OFUEH-Fall wird dieser Simulationsschritt abgeschaltet und alle Emissionen in die unterste Modellschicht verfrachtet.
- OLANU: „ohne Landnutzung“: Wie in Kapitel 4 erläutert, werden flächenhafte Emissionen, die auf Kreisebene oder auf Bundeslandebene berechnet werden, unter Verwendung von Landnutzungsdaten auf die einzelnen Gitterzellen verteilt. Dadurch wird z. B. gesichert, dass Emissionen des Haushaltssektors nur auf bebautem Gebiet auftreten, Emissionen aus der Viehhaltung nur auf landwirtschaftlich genutzten Flächen. Für die Ozonsimulation im OLANU-Fall werden keine Landnutzungsdaten verwendet, sondern alle Emissionen gleichmäßig auf die Kreisgebiete verteilt (Abb. 6-22 links).
- OLIN: OLANU + „ohne Linienquellen“: Die Emissionen des Straßenverkehrs auf Bundesfernstraßen sowie auf einigen Landes- und Kreisstraßen können direkt als linienhafte Emissionen ermittelt werden, da georeferenzierte Straßennetze vorliegen. Neben den Landnutzungsdaten wird im OLIN-Fall auch auf diese geographischen Informationen

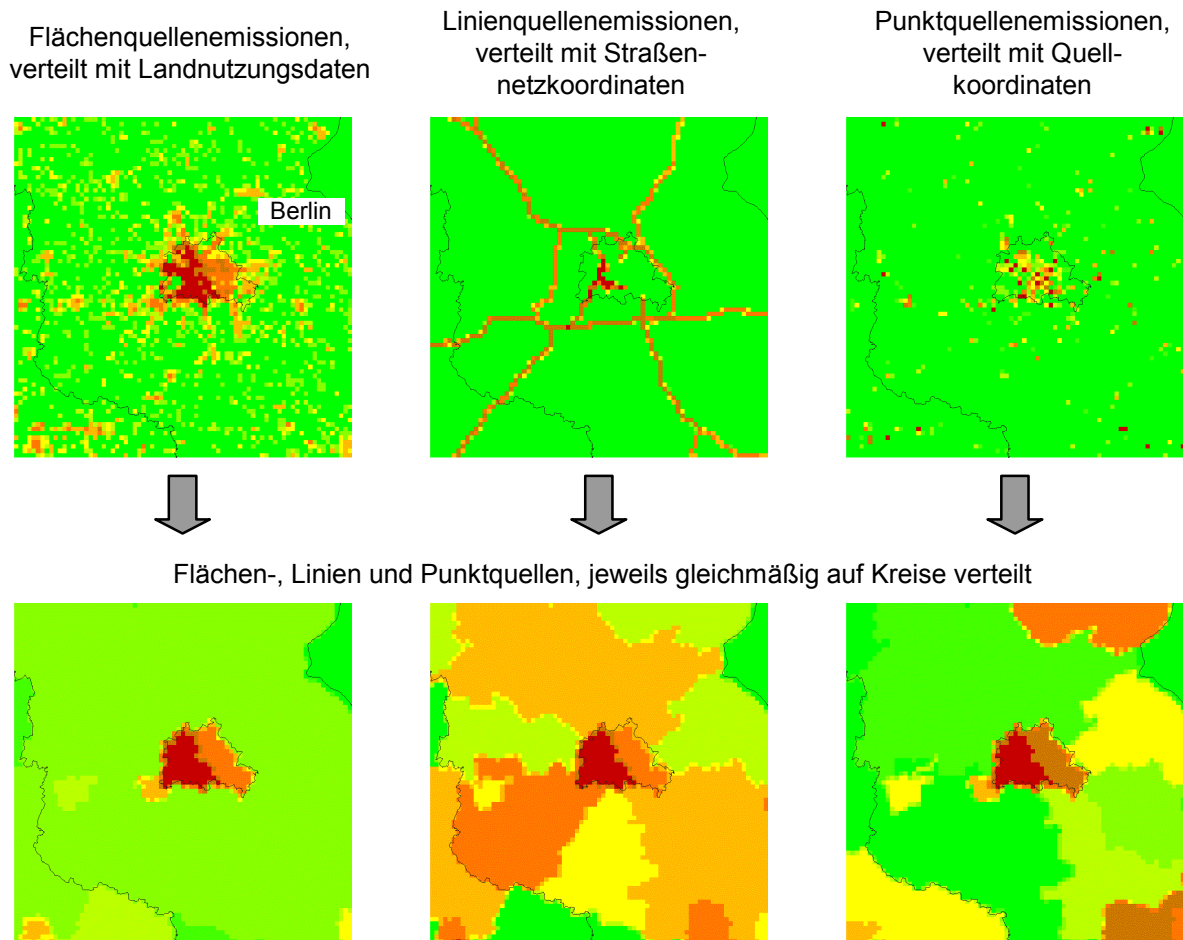


Abb. 6-22: Schematische Darstellung der Änderung der räumlichen Auflösung für die Sensitivitätsfälle OLANU, OLIN, OPKT.

verzichtet, da auch die Emissionen der Linienquellen auf die Kreise gleich verteilt werden (Abb. 6-22 Mitte).

- OPKT: OLANU + OLIN + „ohne Punktquellen“: Hier werden sämtliche Emissionen zu Flächenquellen auf Kreisebene transformiert, das heißt, es werden auch die Koordinaten von Punktquellen nur berücksichtigt, um festzustellen, in welchem Kreis sie sich befinden. Die Fahnenüberhöhung wird ebenfalls abgeschaltet (Abb. 6-22 rechts).

In allen vier Fällen bleibt die absolute Höhe der Emissionen erhalten, soweit die Verteilung auf Kreisflächen an den Rändern der drei Nestgebiete keine geringfügigen Änderungen verursachen. Auswirkungen auf die Ozonkonzentrationen sind insbesondere bei den beiden Fällen OFUEH und OPKT zu erwarten, wo auch die NO_x -Emissionen der Punktquellen in die unterste Schicht (75 m) verfrachtet werden und dort zusätzlich zum Ozonabbau beitragen können.

Zusammenfassung

Die Ergebnisse dieser Sensitivitätsfälle sind in Tabelle 6-11 angegeben. Mit Ausnahme des OFUEH-Falls, wo allein die Fahnenüberhöhung abgeschaltet wird und alle Emissionen einer Gitterzelle in der untersten Schicht gesammelt werden, haben die Änderungen der räumlichen Auflösung nur einen geringen Einfluss auf die mittleren Konzentrationen auf dem Gesamtgebiet der Nester. Im OPKT-Fall werden zwar ebenfalls die Emissionen in die unterste Schicht

Tabelle 6-11: Zusammenfassung der O₃-Konzentrationen für die Fälle mit Variationen zur räumlichen Auflösung

	Sensitivitätsfall	Nest1		Nest2		Nest3	
		gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch
mittlere Konzentra- tionen	REF	111,0	106,3	101,8	102,7	103,3	102,6
	OFUEH	109,0	95,6	99,5	95,6	101,2	98,8
	OLANU	111,0	106,6	101,8	102,8	103,3	102,7
	OLIN	111,3	107,9	102,1	103,1	103,7	103,1
	OPKT	110,0	101,0	101,1	100,7	103,6	102,5
Abwei- chungen vom Referenz- fall	OFUEH	-1,7%	-10,0%	-2,3%	-6,9%	-2,0%	-3,7%
	OLANU	0,0%	0,3%	0,0%	0,1%	0,0%	0,1%
	OLIN	0,3%	1,5%	0,3%	0,4%	0,4%	0,5%
	OPKT	-0,8%	-4,9%	-0,7%	-1,9%	0,2%	-0,1%

verfrachtet, hier werden sie aber gleichmäßig über die gesamte Kreisfläche verteilt, so dass lokal keine so hohen Konzentrationen der emittierten Substanzen auftreten wie im OFUEH-Fall. Relativ hohe Konzentrationsänderungen im OFUEH- und OPKT-Fall werden auf den städtisch geprägten Flächen beobachtet, wo ein großer Teil der NO_x-Quellen lokalisiert ist. Die wesentlich größeren Auswirkungen des OFUEH-Falls im Vergleich zum OPKT-Fall sind auf die im OFUEH-Fall lokal extrem hohen NO_x-Konzentrationen zurückzuführen, während im OPKT-Fall zwar ebenfalls alle Emissionen in die unterste Schicht verlegt, diese aber gleichmäßig auf der Kreisfläche verteilt werden.

6.6.6 Variation des zeitlichen Verlaufs

Ebenso wie die Ermittlung der räumlichen Auflösung ist auch die Ermittlung hochaufgelöster Zeitkurven für die einzelnen Emissionsprozesse mit sehr hohem Aufwand verbunden. Dies hat mehrere Gründe:

- Viele Prozesse zeigen ein unterschiedliches zeitliches Emissionsverhalten. Während sich z. B. die Abgasemissionen weitgehend proportional zur Fahrleistung verhalten, müssen für andere Prozesse, z. B. den Kaltstart oder die Kraftstoffverdampfung räumlich differenzierte stündliche Temperaturdaten bei der Berechnung der Emissionen verwendet werden.
- Oft richtet sich der zeitliche Verlauf von Emissionen aus gewerblichen Prozessen nach den Arbeitszeiten der Beschäftigten. Je nach Anzahl der Arbeitsschichten können also für denselben Emissionsprozess in derselben Branche unterschiedliche Zeitkurven notwendig werden.
- Bei Industrieanlagen, die nach Bedarf gefahren werden, lässt sich der zeitliche Verlauf der Emissionen nur aus direkten Betreiberangaben richtig abbilden.
- Eine stündliche Gesamtjahreskurve setzt sich meistens aus unterschiedlichen Einzelkurven zusammen, die jeweils den Tagesgang, Wochentagsfaktoren und den monatlichen Jahresgang enthalten. Diese Daten müssen oft getrennt aus unterschiedlichen Quellen ermittelt werden.
- Die sich ändernden meteorologischen Verhältnisse und die jährliche Verschiebung der Wochentagsabfolge erfordern – soweit eine realitätsnahe Simulation und keine Szenarien-

rechnung beabsichtigt ist – für jedes Bezugsjahr eine erneute Erstellung der Zeitkurven.

- Weiterhin müssen regionale Feiertage und die Sommerzeitumstellung berücksichtigt werden.

Unter diesen Umständen ist es wichtig, zu untersuchen, inwieweit sich Änderungen des zeitlichen Verlaufs der Emissionen auf die Ozonmodellergebnisse auswirken oder ob Vereinfachungen ähnliche Ergebnisse zeigen wie der Referenzfall.

Aufgrund der Tatsache, dass derzeit aus Kosten- und Rechenzeitgründen mit dem CTM kein ganzes Jahr in stündlicher Auflösung simuliert werden kann, müssen sich die Sensitivitätsfälle auf die Variation des Tagesverlaufs der Emissionen beschränken. Experimente, die das Gesamtniveau der Emissionen verändern, können nicht von Änderungen der Jahresemissionen unterschieden werden, deren Auswirkungen Untersuchungsgegenstand in den Fällen zum geänderten NMVOC/NO_x-Verhältnis ist. Auch zum Einfluss von Änderungen im saisonalen Zeitgang können Untersuchungen der Zwei-Tagesepisode nicht beitragen.

Betrachtete Fälle

Insgesamt werden sieben Sensitivitätsfälle definiert:

- TPLUS: „Stunde plus eins“: Verschiebung der Zeitkurven um eine Stunde nach hinten. Dadurch setzen die Emissionen eine Stunde später ein.
- TMINUS: „Stunde minus eins“: Verschiebung der Zeitkurven um eine Stunde nach vorne. Dadurch setzen die Emissionen eine Stunde früher ein.
- TEINF: „vereinfachte Zeitkurven“: Aus dem Referenzfall auf Nest1-Gebiet wird für die Schadstoffe SO₂, CO, NO_x, NH₃ und NMVOC jeweils eine Zeitkurve der Zwei-Tagesepisode berechnet. Diese Tagesgänge werden auf den Zwei-Tages-Emissionsanteil an den Jahresemissionen normiert und schließlich erneut für die Emissionsberechnung auf allen drei Gittern eingesetzt. Mit diesem Vorgehen werden so die sektoralen und räumlichen Unterschiede der Zeitkurven herausgefiltert.
- TRECHT: „Zeitkurven in Rechteckform“: Die fünf im TEINF-Fall ermittelten Zeitkurven werden weiter vereinfacht, indem der ganze Tagesgang nur noch als Stufenfunktion abgebildet wird. Dazu werden für alle Werte über dem Median und unter dem Median der stündlichen Emissionen jeweils Mittelwerte gebildet und diese als oberer bzw. unterer Wert der Rechteckfunktion verwendet.
- TSTEIL: „Verstärkung des Anstiegs“: Um die Mittagszeit werden zwei Stunden herausgenommen und die jeweils letzte und erste Stunde des Tages verdoppelt. Die so entstandenen Zeitkurven werden wieder auf den ursprünglichen Anteil an den Jahresemissionen normiert.
- TFLACH: „Abflachung des Anstiegs“: Um die Mittagszeit werden zwei Stunden verdoppelt und die jeweils erste und letzte Stunde des Tages gelöscht. Danach erfolgt die Normierung auf den ursprünglichen Anteil der Jahresemissionen.
- TRAUSCH: „statistisches Rauschen“: Alle Einzelwerte der Zeitkurven werden Stunde für Stunde mit einem statistischen Fehler (Gleichverteilung innerhalb der angegebenen Bandbreite) versehen, die Verkehrszeitkurven um $\pm 25\%$, alle übrigen Zeitkurven um $\pm 45\%$, entsprechend den Unsicherheitsuntersuchungen von KÜHLWEIN et al. (1999). Danach werden die Zeitkurven wieder normiert.

Ergebnisse und Diskussion

Die Auswirkungen dieser Änderungen bei der Erstellung der Zeitkurven im Vergleich zum Referenzfall sind beispielhaft in Abb. 6-23 dargestellt: TMINUS und TPLUS (a) haben dieselbe

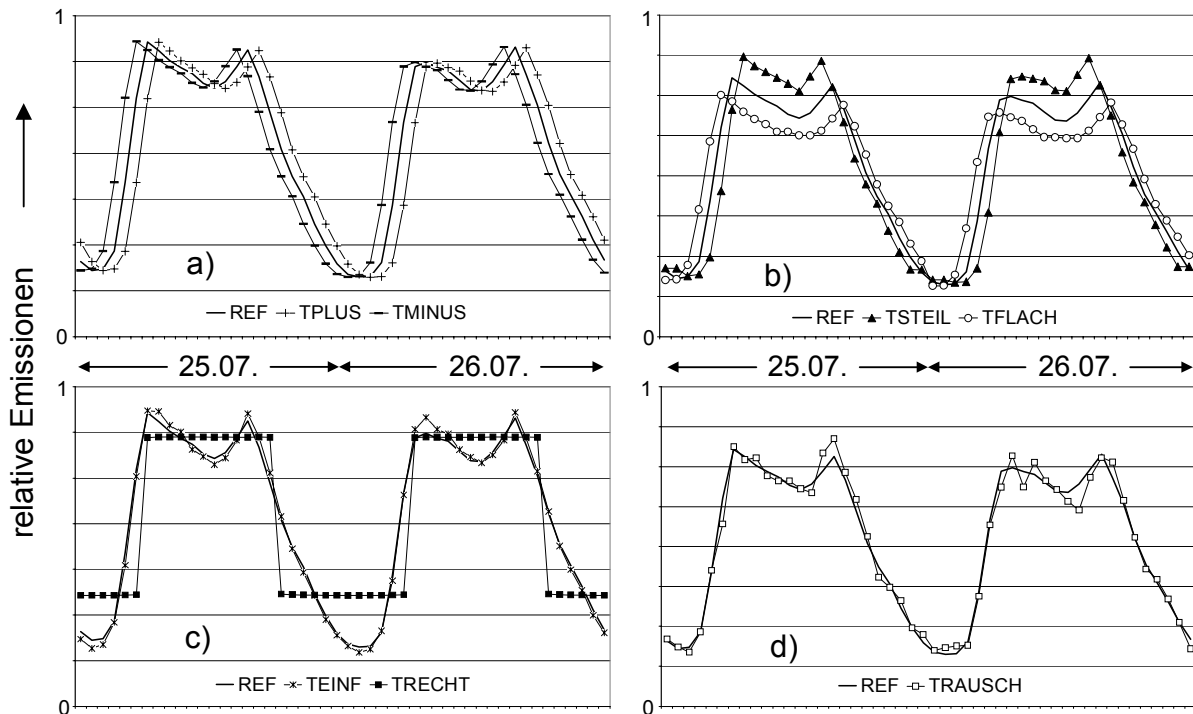


Abb. 6-23: Verlauf der relativen CO-Emissionen der zeitlichen Sensitivitätsfälle auf dem Nest3-Gebiet. Es werden die Fälle TPLUS, TMINUS (a), TSTEIL, TFLACH (b), TEINF, TRECHT (c) und TRAUSCH (d) mit dem Referenzfall verglichen.

Verlaufscharakteristik wie REF, sind aber um jeweils eine Stunde nach hinten bzw. nach vorne verschoben. Auch TSTEIL und TFLACH (b) zeigen einen ähnlichen Verlauf, tagsüber bilden sie allerdings eine schmalere und höhere (TSTEIL) oder eine breitere und flachere Kurve (TFLACH) als im Referenzfall. Mit dem Rechteckmuster (TRECHT) in Teilabbildung c) nimmt das Emissionsmodell dem Referenzzeitgang alle kurzzeitigen Maxima und Minima und produziert Emissionen auf nur 2 Niveaus. Der Unterschied von TEINF und REF in derselben Teilabbildung ist kaum zu erkennen. Das liegt daran, dass die Kurve des Referenzfalls den Mittelwert über das gesamte Gebiet darstellt, woraus gerade die rein vom Spurenstoff abhängigen Zeitverläufe von TEINF gebildet werden. Die dennoch auftretenden Abweichungen sind auf die regional leicht unterschiedlichen Zeitkurven auf dem Nest1-Gebiet, die den Kurven von TEINF zugrunde liegen, und dem Nest3-Gebiet, für das der Zeitverlauf in dieser Abbildung dargestellt ist, zurückzuführen. Die Zeitkurve von TRAUSCH (d) weist gemäß ihrer Definition vor allem bei höheren Emissionen stärkere Abweichungen von der Referenzkurve auf. Insbesondere am 25.07. scheint sich das Rauschen von bis zu 45 % bei der hier verwendeten Mittelung über alle auf dem Nest3-Gebiet aktiven Quellen weitgehend gedämpft zu haben. In der eigentlichen Emissionsberechnung wird keine derartige räumliche Mittelung durchgeführt. Je kleinräumiger also das Untersuchungsgebiet ist, desto größer sind die räumlichen Variationen der Zeitkurven.

Die sich aus den Simulationen mit dem CTM ergebenden mittleren stündlichen Differenzen der Ozonkonzentrationen der Sensitivitätsfälle und des Referenzfalls zeigt Abb. 6-24: Im

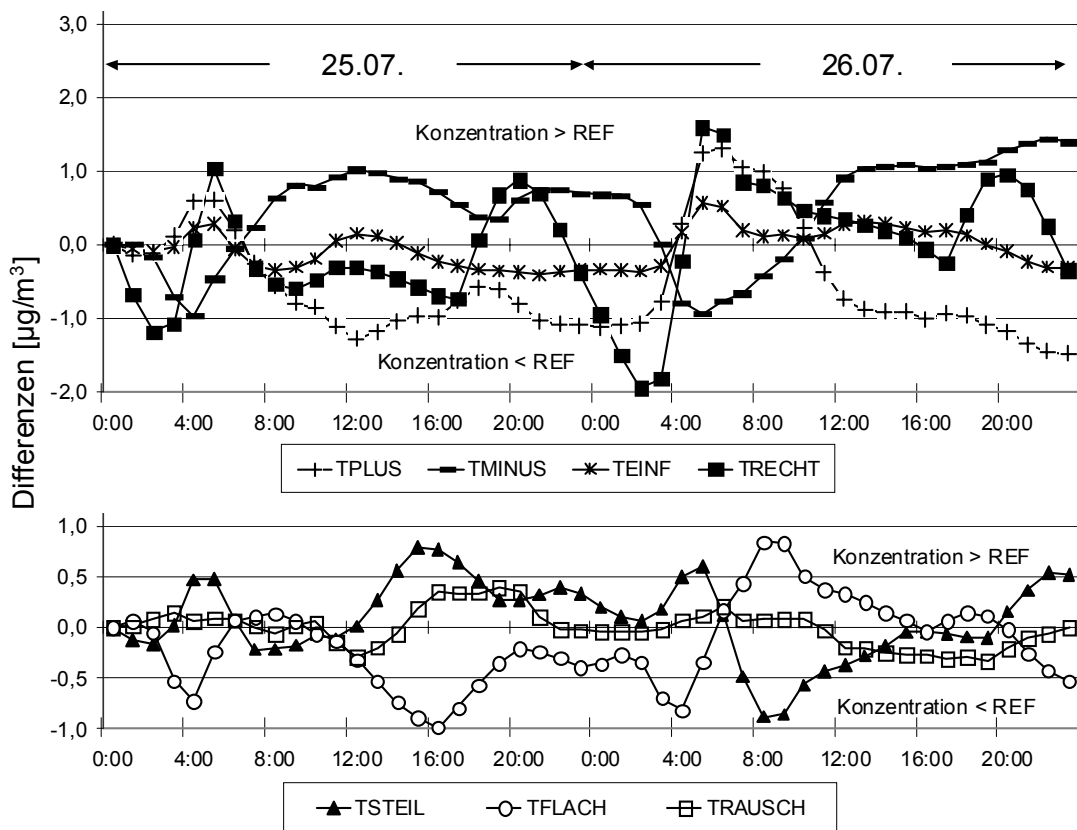


Abb. 6-24: Zeitlicher Verlauf der stündlich gemittelten Differenzen der Ozonkonzentrationen von TPLUS bis TRAUSCH und dem Referenzfall auf dem Nest3-Gebiet.

TMINUS-Fall sind die Differenzen bis ca. 6:00 UTC negativ, das heißt, es entsteht weniger Ozon als im Referenzfall. Dies kommt von den um eine Stunde früher einsetzenden NO-Emissionen, die vor der mit Sonnenaufgang beginnenden photochemischen Aktivität zunächst noch Ozon abbauen. Im Tagesverlauf liegen die mittleren Konzentrationen um fast $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ über dem Referenzfall, da durch die früher einsetzenden Emissionen auch mehr NO_2 zur Ozonbildung zur Verfügung steht.

Im TPLUS-Fall werden die Emissionen um eine Stunde weiter nach hinten verschoben, daher sieht der Verlauf symmetrisch zu TMINUS aus. Die beiden oben erwähnten Phänomene wirken sich nun umgekehrt aus: Durch die später einsetzenden NO-Emissionen kann in den frühen Morgenstunden weniger Ozon abgebaut werden als im Referenzfall, im Tagesverlauf liegen die Konzentrationen niedriger, da insgesamt weniger NO_2 produziert wird.

Die im TEINF-Fall erhaltenen Ozonkonzentrationen unterscheiden sich zumindest bei den in Abb. 6-24 dargestellten Gebietsmittelwerten nur sehr wenig vom Referenzfall.

Der zeitliche Konzentrationsverlauf des TRECHT-Falls folgt ziemlich genau den Mechanismen, die bei ausschließlicher Betrachtung der NO_x -Ozon-Reaktionen erwarten werden: Liegen die Emissionen bedingt durch die Rechteckform oberhalb derer des Referenzfalls, steigen tagsüber die Konzentrationen, während sie nachts absinken, liegen sie unterhalb, setzen gegenläufige Prozesse ein.

Entsprechendes gilt genauso für die beiden Fälle TSTEIL und TFLACH, die ebenfalls fast symmetrische Abweichungen vom Referenzfall zeigen. Die größten Differenzen von knapp $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ treten in diesen beiden Fällen am späten Nachmittag des 25.07. und im Verlauf des Vormittags vom 26.07. auf. Das auf alle Zeitkurven zugeschlagene Rauschen in TRAUSCH bewirkt kaum Änderungen im mittleren Verlauf der Ozonkonzentrationen von Nest3.

Zusammenfassung

Die relativ niedrigen Abweichungen vom Referenzfall spiegeln sich in den noch geringeren Differenzen der über die gesamte Episode gemittelten Konzentrationen in Tabelle 6-12 wieder:

Tabelle 6-12: Zusammenfassung der O_3 -Konzentrationen für die Sensitivitätsfälle mit zeitlicher Variation

Sensitivitätsfall	Nest1		Nest2		Nest3		
	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	gesamt	städtisch	
REF	111,0	106,3	101,8	102,7	103,3	102,6	
TPLUS	110,0	105,7	101,2	102,0	102,8	102,1	
TMINUS	111,6	106,3	102,3	103,2	103,8	103,1	
TEINF	110,6	104,6	101,7	102,3	103,3	102,0	
TRECHT	110,6	104,6	101,8	102,3	103,3	102,1	
TSTEIL	111,5	107,7	102,0	103,1	103,4	102,8	
TFLACH	110,3	104,6	101,5	102,2	103,1	102,4	
TRAUSCH	111,0	106,4	101,9	102,7	103,3	102,6	
Abweichungen vom Referenzfall	TPLUS	-0,8%	-0,5%	-0,6%	-0,6%	-0,5%	-0,5%
	TMINUS	0,6%	0,1%	0,5%	0,5%	0,4%	0,4%
	TEINF	-0,3%	-1,6%	-0,1%	-0,3%	0,0%	-0,6%
	TRECHT	-0,3%	-1,6%	0,0%	-0,3%	0,0%	-0,5%
	TSTEIL	0,5%	1,3%	0,2%	0,4%	0,1%	0,2%
	TFLACH	-0,6%	-1,5%	-0,3%	-0,4%	-0,2%	-0,3%
	TRAUSCH	0,0%	0,1%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%

Die größte Änderung auf den Nest-Gebieten wird im TPLUS-Fall mit $-0,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ erreicht, bei Betrachtung der städtisch geprägten Gitterzellen in den Fällen TEINF und TRECHT mit $-1,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

6.6.7 Variation der stofflichen Auflösung

Im hier verwendeten Emissionsmodell kommen für Deutschland bis zu 96 verschiedene NMVOC-Profile zum Einsatz (siehe auch Tabelle 6-1), die sich grob in Profile für den Straßenverkehr, für Feuerungsanlagen und für die Verwendung von Lösemitteln klassifizieren lassen. Je nach betrachtetem Prozess (z. B. Kaltstart, Abgas innerorts, Running Losses), nach Brennstoffart oder nach Branche werden verschiedene Profile verwendet.

Betrachteter Fall

Der hier untersuchte Fall NMVOC94 dient zur Überprüfung, wie wichtig eine derart detaillierte Differenzierung für die nachfolgende Ozonmodellierung ist. Dazu wird statt der 96 VOC-Profile nur ein einziges eingesetzt, das vorher aus den Jahresemissionen von 1994 für Deutschland berechnet wird. Dies bewirkt eine zeitliche und räumliche Mittelung der anthropogenen VOC-Profile.

Ergebnisse und Diskussion

Als Beispiel der räumlichen Variationen der anthropogenen NMVOC-Emissionen des Referenzfalls werden in Abb. 6-25 die aggregierten anthropogenen NMVOC-Emissionen von drei

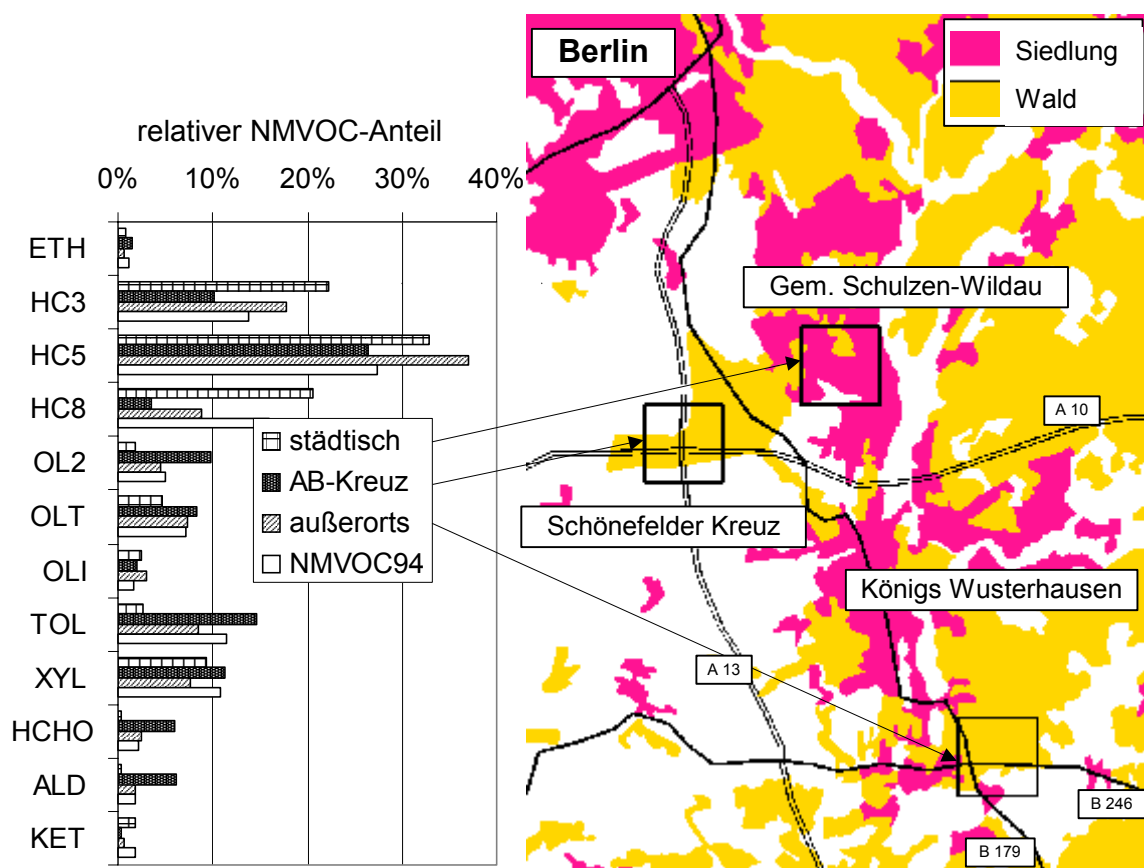


Abb. 6-25: Beispiel für die räumliche Variation der VOC-Profile. Die aggregierten anthropogenen VOC-Profile von drei Gitterzellen des Nest3-Gebiets mit unterschiedlicher Prägung werden dem Gesamt-VOC-Profil der Jahresemissionen von 1994 in Deutschland gegenübergestellt.

Gitterzellen des Nest3-Gebiets mit dem Gesamtprofil des NMVOC94-Falls verglichen. Die Emissionen in den Gitterzellen sind von unterschiedlichen Emissionsprozessen geprägt: Die Zelle oben in der Bildmitte von Abb. 6-25 liegt fast ganz auf städtischem Gebiet, die linke Zelle über einem Autobahnkreuz, während die Zelle rechts unten eine Kreuzung von zwei Bundesstraßen überdeckt. Die Unterschiede der regionalen VOC-Profile können, wie aus der linken Graphik in Abb. 6-25 hervorgeht, in einzelnen Klassen bis zu 95 % (HCHO, ALD) betragen,

in den Stoffklassen mit den höchsten Emissionen liegen die maximalen Unterschiede bei 28 % (HC5) und 54 % (HC3).

Die Variationen in den relativen VOC-Anteilen fallen im zeitlichen Verlauf nicht ganz so hoch aus wie beim Vergleich einzelner Gitterzellen (Abb. 6-26). Sie erreichen auf dem Nest3-

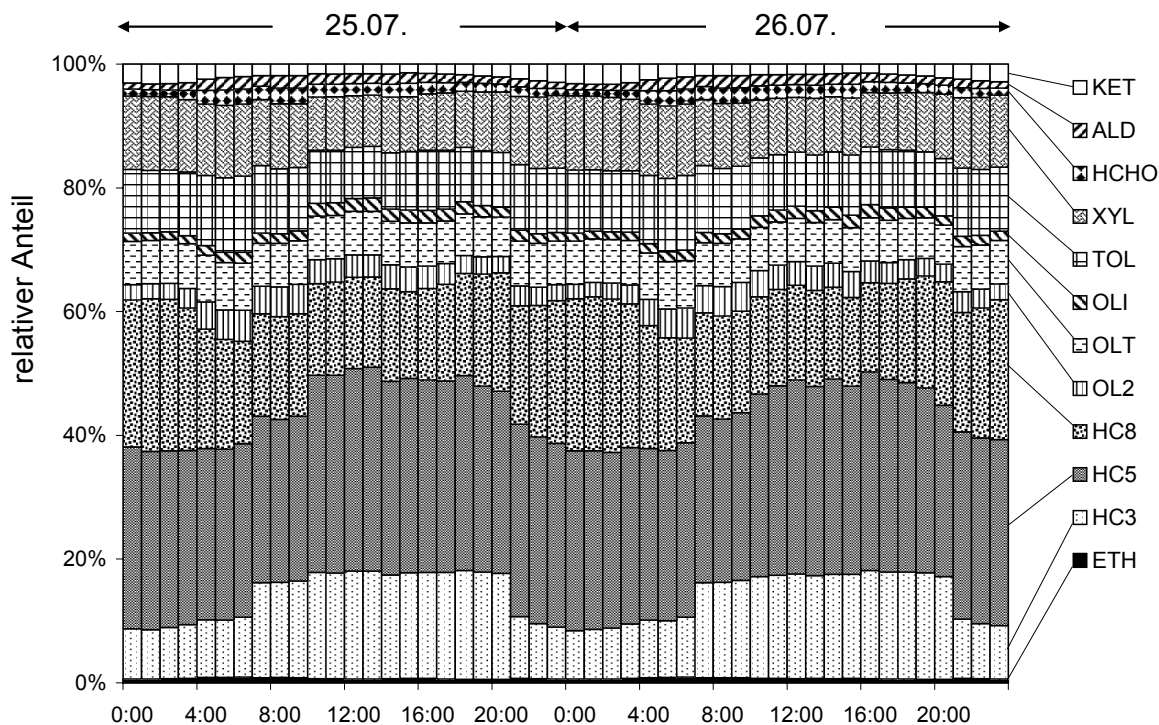


Abb. 6-26: Zeitliche Änderung der relativen NMVOC-Klassenanteile anthropogener Emissionen im Referenzfall auf dem Nest3-Gebiet. Erklärung der RADM2-Klassen siehe Tabelle 6-3.

Gebiet maximal 68 % (KET). In den beiden Klassen mit den größten Anteilen sind sie mit den räumlichen Variationen vergleichbar: 49 % (HC3) und 27 % (HC5).

Zusammenfassung

Sowohl die räumlichen als auch die zeitlichen Variationen der VOC-Profile wirken sich offensichtlich kaum auf die bodennahen Ozonkonzentrationen aus, wie die Ergebnisse der Ozonsimulationen mit dem einheitlichen VOC-Profil des NMVOC94-Falls in Tabelle 6-13 zeigen: Die absoluten Größen der Konzentrationen ändern sich um weniger als 1 %.

Tabelle 6-13: Zusammenfassung der O₃-Konzentrationen für den NMVOC94-Fall

	Nest1		Nest2		Nest3	
	ges.	städtisch	ges.	städtisch	ges.	städtisch
absolut [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	111,0	106,6	101,9	102,8	103,4	102,7
Abw. von REF [%]	0,1%	0,3%	0,1%	0,1%	0,1%	0,1%

6.7 Gesamtbetrachtung aller Sensitivitätsfälle

In den vorherigen Unterkapiteln wurden die Ergebnisse von 24 Sensitivitätsfällen vorgestellt, die die Auswirkungen von Änderungen im Emissionsmodell auf die mit dem CTM berechneten bodennahen Ozonkonzentrationen untersuchen. Zur zusammenfassenden Auswertung werden

acht Parameter ausgewählt, deren Größen auch im Anhang aufgelistet sind: Konzentrationsmittelwerte, Differenz der Konzentrationen zum Referenzfall, AOT60-Werte, Differenz der AOT60-Werte zum Referenzfall, Überschreitungshäufigkeiten von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$, Differenz der Überschreitungshäufigkeiten zum Referenzfall und die 0,95-Quantile der zeitlich und räumlich hochaufgelösten Konzentrationsdifferenzen zum Referenzfall. Es wird teilweise zwischen Gesamtperiode und den beiden einzelnen Tagen unterschieden, um die Entwicklung dieser Parameter abzubilden. Die Auswertung der 0,95-Quantile wird sowohl für das ganze Nestgebiet als auch für städtisch geprägte Rasterzellen durchgeführt, wodurch besser auf die Verhältnisse im Nahbereich der Hauptquellen eingegangen werden kann.

6.7.1 Untersuchung der Konzentrationsänderungen

Zunächst kann festgestellt werden, dass die einzelnen Sensitivitätsfälle relativ geringe Änderungen in den mittleren absoluten Ozonkonzentrationen (Abb. 6-27) bewirken. Die mittleren

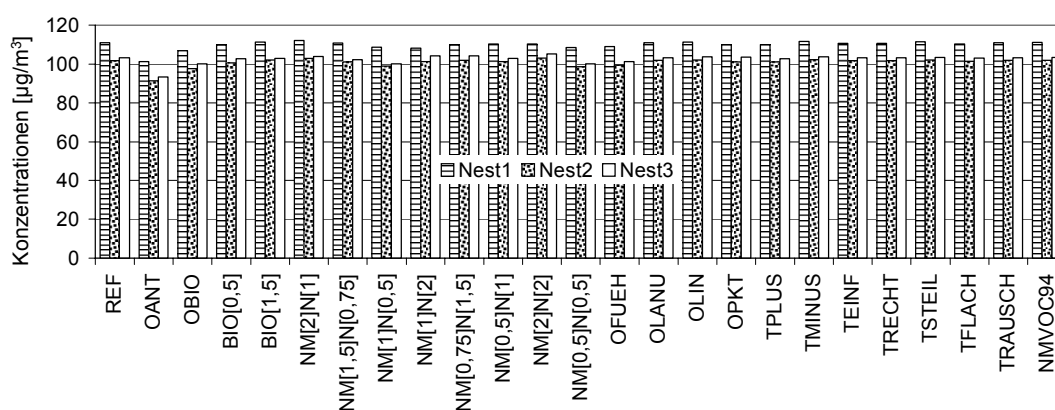


Abb. 6-27: Mittlere Konzentrationen aller Sensitivitätsfälle. Fallübersicht: Tabelle 7-1.

Konzentrationen über die gesamte Episode zeigen eine Bandbreite von nicht mehr als 11 % auf den Nestgebieten. Dagegen zeigen sich bei den Überschreitungshäufigkeiten mit bis zu 38 % auf dem Nest2-Gebiet und bei den AOT60-Werten mit 70 % auf dem Nest2- und dem Nest3-Gebiet wesentlich größere Änderungen, was auf der in diesen beiden Parametern impliziten Schwelle von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. 60 ppbV beruht (Abb. 6-28 und Abb. 6-29). Innerhalb der Falluntersuchungen sind die Maximalwerte immer auf dem Nest1-Gebiet zu beobachten, die Werte für das Nest3-Gebiet übersteigen die des Nest2-Gebiets geringfügig.

Besser lassen sich die Sensitivitätsfälle untereinander mit den Differenzen der Konzentrationsmittelwerte vom Referenzfall vergleichen (Abb. 6-30 bis Abb. 6-32). In diesen Graphiken wird für die drei Nestgebiete zusätzlich zwischen den Mittelwerten der Gesamtperiode sowie denen der Tages- bzw. Nachtstunden unterschieden. Beim Vergleich dieser Größen für jeweils denselben Fall ist zu beachten, dass sich die mittlere Gesamtabweichung nicht aus Kombination der Tages- und Nachtabweichungen ableiten lässt, weil nachts die Abweichungen meistens von einem viel niedrigeren Niveau aus erfolgen.

Am Beispiel des Nest3-Gebiets (Abb. 6-30) können die Auswirkungen der unterschiedlichen Sensitivitätsfälle verglichen werden: Der OANT-Fall ohne anthropogene Emissionen verursacht die größten Ozonänderungen, sowohl im Episodenmittel ($-9,6 \%$) als auch tagsüber ($-13,1 \%$). Dass die Konzentrationen auch nachts im Mittel unter denen des Referenzfalls lie-

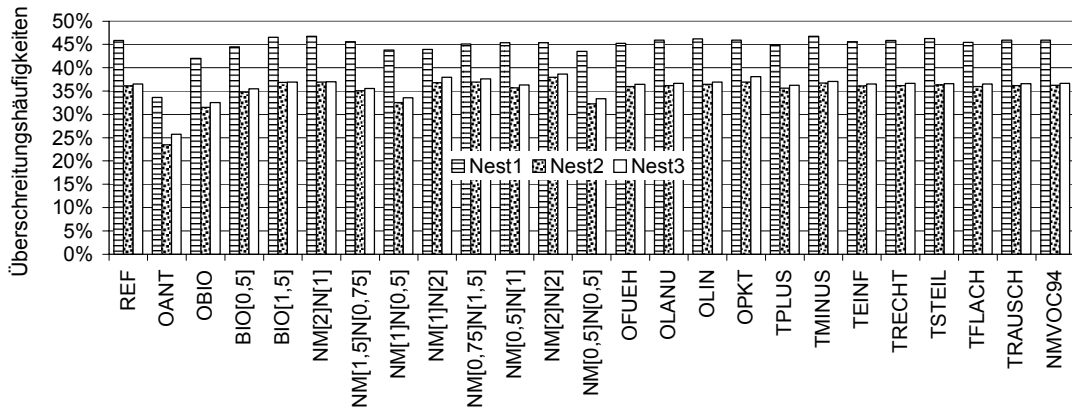


Abb. 6-28: Überschreitungshäufigkeiten von 120 µg/m³ aller Sensitivitätsfälle. Fallübersicht: Tabelle 7-1.

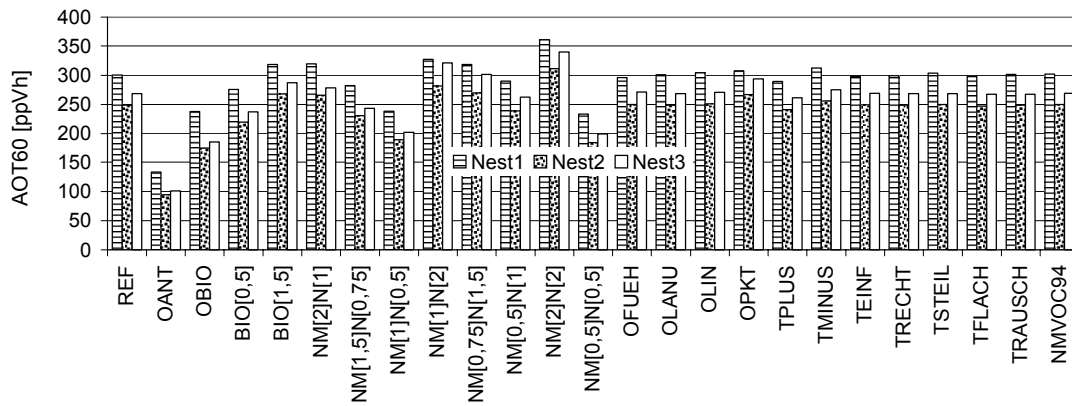


Abb. 6-29: AOT60-Werte aller Sensitivitätsfälle. Fallübersicht: Tabelle 7-1.

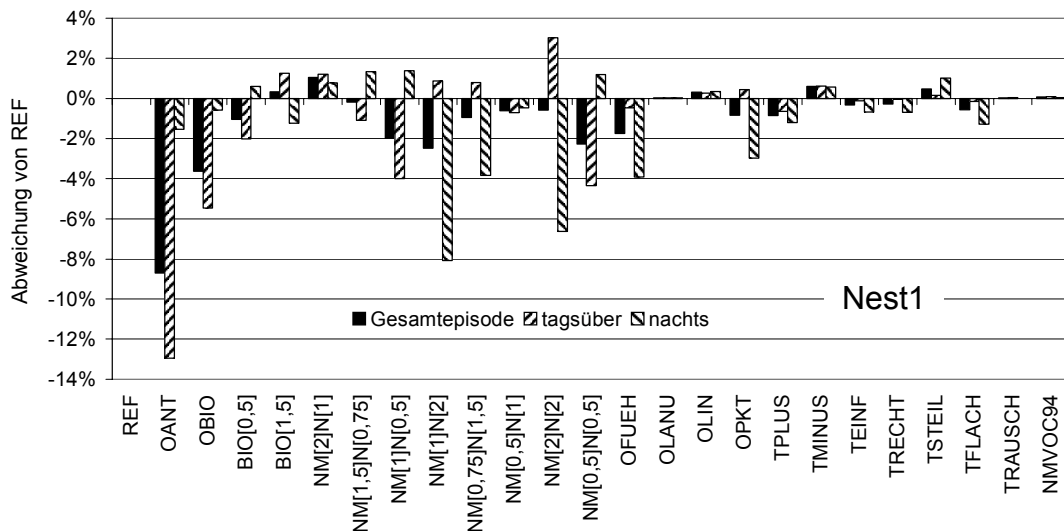


Abb. 6-30: Abweichungen der mittleren Konzentrationen auf dem Nest1-Gebiet. Fallübersicht: Tabelle 7-1.

gen (-1,5 %), obwohl keine NO-Emissionen mehr zum Ozonabbau zur Verfügung stehen, liegt daran, dass tagsüber nicht mehr soviel Ozon gebildet wird und der verbliebene Rest auch über die anderen Abbaupfade vermindert wird.

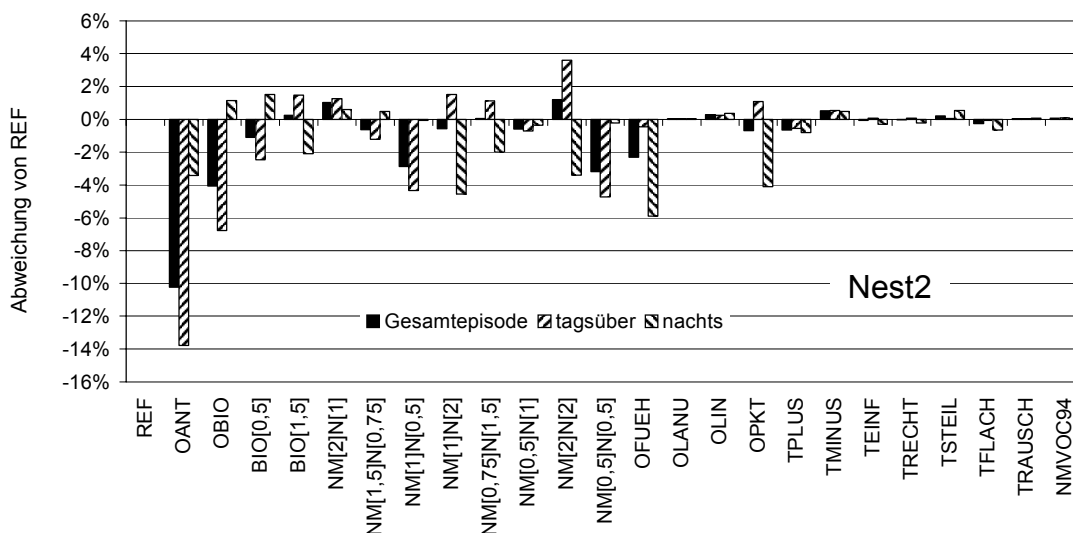


Abb. 6-31: Abweichungen der mittleren Konzentrationen auf dem Nest2-Gebiet.

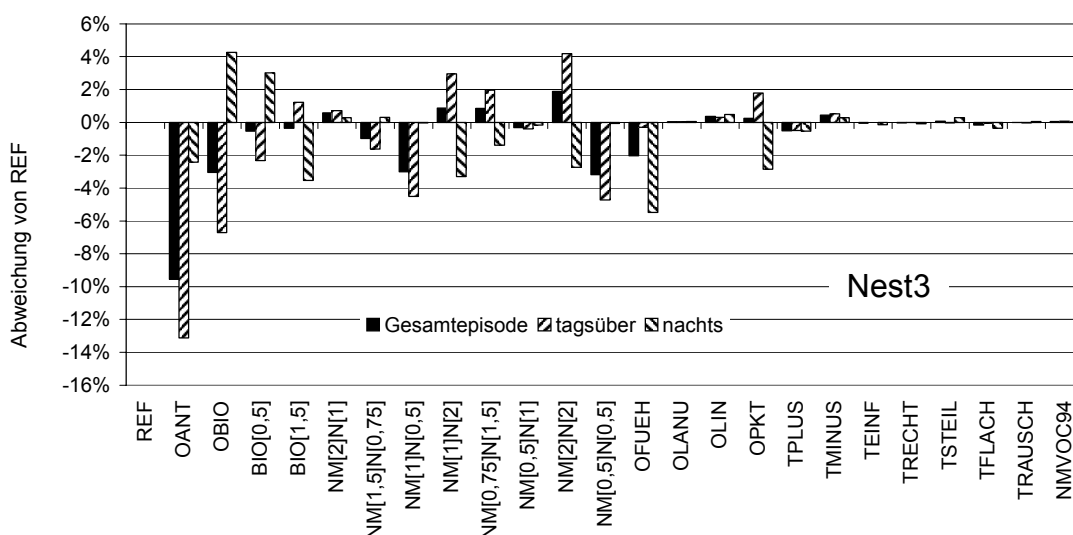


Abb. 6-32: Abweichungen der mittleren Konzentrationen auf dem Nest3-Gebiet.

Ein Abschalten der biogenen NMVOC-Emissionen (OBIO) führt zu einem Ozonrückgang, im Mittel von $-3,0\%$. Die nächtliche Zunahme von $4,3\%$ durch Verminderung der durch organische Substanzen hervorgerufenen Ozonolyse wird durch die Verringerung tagsüber um $-6,7\%$ mehr als ausgeglichen. Die gleichen Effekte, allerdings in geringerer Höhe, werden durch die Halbierung der biogenen Emissionen (BIO[0,5]) bewirkt. Bei einer Erhöhung dieser Emissionen um 50% drehen sich dagegen die Vorzeichen der Abweichungen zum Referenzfall tagsüber und nachts um, wodurch sich im Mittel immer noch ein leichter Ozonrückgang ergibt.

Werden die anthropogenen NMVOC-Emissionen bei gleichbleibenden NO_x -Emissionen erhöht (NM[2]N[1]), steigen auch die Ozonkonzentrationen gegenüber dem Referenzfall leicht an. Ein Absenken der NO_x -Emissionen um 25% und Verstärken der anthropogenen NMVOC-Emissionen um 50% bewirkt tagsüber eine Abnahme des Ozons, nachts aber wegen des fehlenden NO eine Zunahme, so dass insgesamt im Fall NM[1,5]N[0,75] nur um $1,6\%$ verringerte Ozonkonzentrationen zu beobachten sind. In derselben Richtung wirkt auch die Halbierung der NO_x -Emissionen unter Beibehaltung der NMVOC-Emissionen (NM[1]N[0,5]). Hier wird aber

tagsüber noch weniger Ozon produziert, so dass sich insgesamt eine Verringerung um 4,5 % ergibt. Werden die NO_x -Emissionen erhöht, drehen sich die Vorzeichen der Tag- und Nachtabweichungen um: Eine Verdoppelung der NO_x -Emissionen (NM[1]N[2]) bewirkt eine so große Ozonsteigerung, dass trotz der Abnahme der Konzentrationen in den Nachtstunden im Episodenmittel eine Konzentration um 0,9 % höher als im Referenzfall simuliert wird. Genauso lässt sich auch die Erhöhung der Konzentrationen im Fall NM[0,75]N[1,5] um 0,8 % erklären.

Eine einseitige Verminderung der anthropogenen NMVOC-Emissionen um 50 % im Fall NM[0,5]N[1] ergibt eine leichte Abnahme über die ganze Episode um im Mittel 0,6 %. Werden sowohl NO_x - als auch NMVOC-Emissionen verdoppelt (NM[2]N[2]), überwiegt die tagsüber stattfindende Ozonproduktion gegenüber der nächtlichen Verminderung, die mittlere Konzentration wird um 1,9 % erhöht. Die gleichzeitige Halbierung der anthropogenen NO_x - und NMVOC-Emissionen (NM[0,5]N[0,5]) ist in der Wirkung ähnlich dem NM[1]N[0,5]-Fall, wo die NMVOC-Emissionen beibehalten werden: Geringe Veränderungen bei Nacht und eine Abnahme von 4,7 % tagsüber ergibt eine Nettoverringerung der Ozonkonzentrationen um 3,2 %.

Bei den Variationen in der räumlichen Auflösung spielen vor allem die Punktquellen in den Fällen OFUEH und OPKT eine große Rolle. Im OFUE-Fall werden alle Punktquellenemissionen in der untersten Schicht gesammelt. Dadurch können mehr NO_x -Emissionen das Ozon in dieser Schicht angreifen und verringern so die Konzentrationen, tagsüber nur leicht wegen des konkurrierenden Ozonbildungsprozesses (-0,3 %), nachts wesentlich stärker (-5,5 %). Im Fall OPKT werden die Punktquellenemissionen nicht nur in die unterste Schicht verfrachtet, sondern zusätzlich mit den Linien- und Flächenquellenemissionen gleichmäßig auf die jeweilige Kreisfläche verteilt. Hierdurch ergeben sich insgesamt niedrigere Konzentrationen der emittierten Stoffe, aber auch eine räumlich bessere Durchmischung, was auf dem Nest3-Gebiet, wo aufgrund der kleinen Gitterzellen der Unterschied zum Referenzfall am stärksten ausfällt, im Mittel zu einem leichten Ozonanstieg um 0,2 % führt. Tagsüber liegen dabei die Konzentrationen um 1,8 % über denen des Referenzfalls, nachts um -2,8 % darunter. Die ausschließliche Verteilung der Flächenquellenemissionen ohne Verwendung der Landnutzungsdaten auf Kreise (OLANU) zeigt keine auffälligen Änderungen in den mittleren Ozonkonzentrationen. In Kombination mit der räumlichen Gleichverteilung der Linienquellenemissionen auf Kreisebene (OLIN) ergibt sich über die gesamte Episode eine leichte Ozonerhöhung, im Mittel um 0,4 %.

Die Fälle zur Untersuchung der Auswirkungen von Änderungen in den Emissionszeitkurven (TPLUS, TMINUS, TEINF, TRECHT und TSTEIL) sowie der NMVOC94-Fall, wo für die Emissionsberechnungen nur ein einziges VOC-Profil verwendet wird, führen im Vergleich zu den übrigen Fällen auf dem Nest3-Gebiet zu keinen signifikanten Konzentrationsänderungen.

Die oben beschriebenen Effekte, die für das Nest3-Gebiet beobachtet werden, lassen sich nicht ohne weiteres verallgemeinern, wie eine Gegenüberstellung der Konzentrationsdifferenzen, diesmal jeweils zusammengefasst für die Gesamtperiode, die Tages- und Nachtstunden in den Abb. 6-33 bis Abb. 6-35 zeigt. Tagsüber sind die Vorzeichen der Änderungen aller Nestgebiete bei den Fällen, die Abweichungen vom Referenzfall um mehr als 0,5 % hervorrufen, gleich (Abb. 6-33). Die Variationen in den NO_x -Emissionen haben aber auf dem Nest3-Gebiet offensichtlich die größten Auswirkungen, während veränderte NMVOC-Emissionen bei gleichbleibenden NO_x -Emissionen auf dem Nest3-Gebiet die geringste Wirkung zeigen. In den Nachtstunden (Abb. 6-34) sorgen erhöhte NO_x -Emissionen vor allem auf dem Nest1-Gebiet

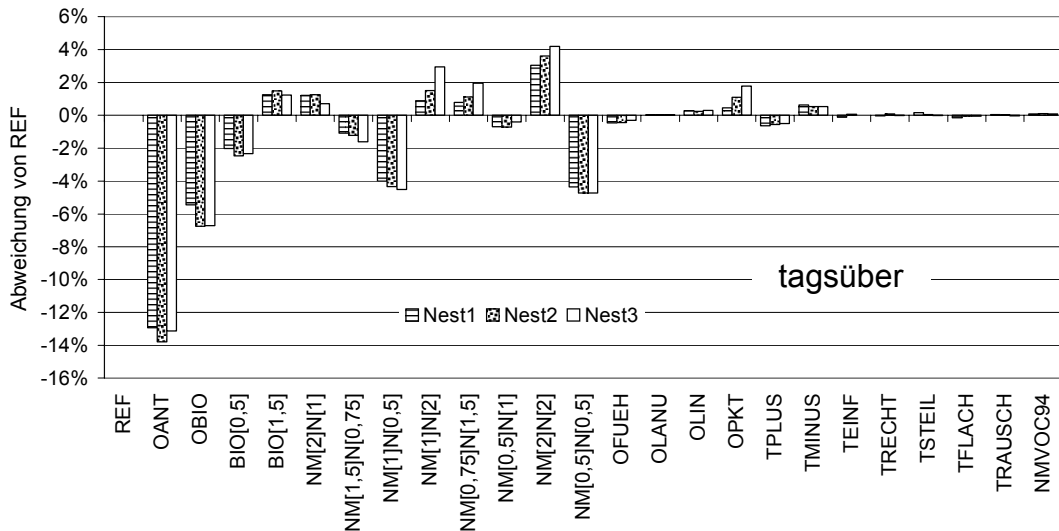


Abb. 6-33: Abweichungen der mittleren Konzentrationen tagsüber. Fallübersicht: Tabelle 7-1.

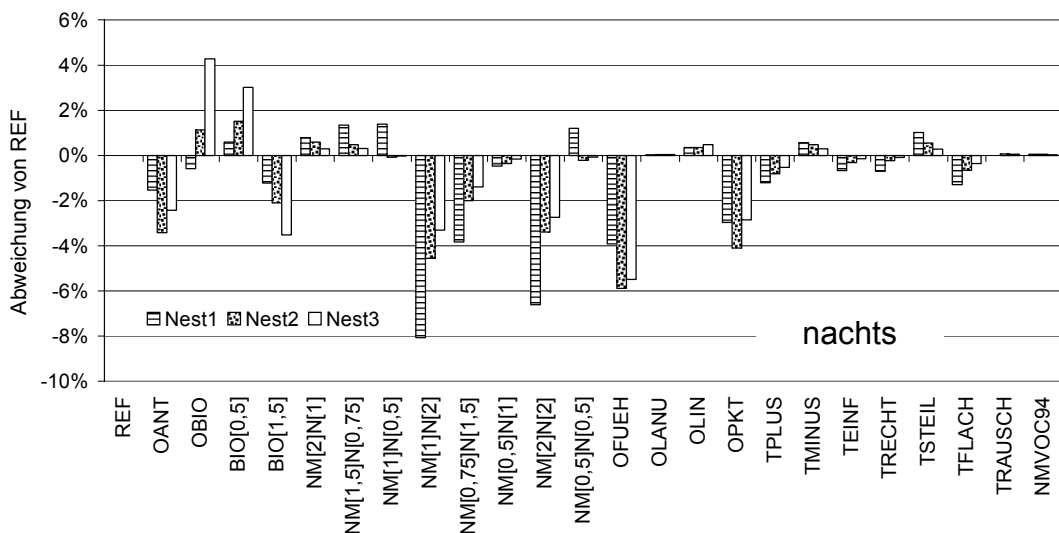


Abb. 6-34: Abweichungen der mittleren Konzentrationen nachts.

für einen starken Ozonabbau. Dies ist wahrscheinlich auf die Skalenunterschiede zwischen den einzelnen Nestgebieten zurückzuführen: Eine Erhöhung der NO_x -Emissionen wirkt im Nest1-Gebiet mit einer Zellgröße von 18 km x 18 km auf eine viel größere Fläche, während auf den anderen beiden Gittern nur die quellnahen Flächen bis zu einem Maximalabstand von 6 km beim Nest2-Gebiet bzw. 2 km beim Nest3-Gebiet betroffen sind. Dadurch kann der Ozonabbau auf dem Nest1-Gebiet wesentlich großflächiger stattfinden. Aus demselben Grund führt die Verminderung von NO_x vor allem auf dem Nest1-Gebiet nachts zu höheren Konzentrationen als im Referenzfall. Das Ansteigen der nächtlichen Ozonkonzentrationen auf dem Nest2- und Nest3-Gebiet bei Wegfall bzw. Verminderung der biogenen NMVOC-Emissionen ist auf den in den Fällen OBIO und BIO[0,5] geringeren Anteil der Ozonolyse durch Kohlenwasserstoffe zurückzuführen.

Die regionalen auflösungsabhängigen Unterschiede in der Nacht- und Tagchemie führen zu den in Abb. 6-35 dargestellten Abweichungen für die Gesamtepisode. Auffallend ist, dass – aus den oben genannten Gründen – in den Fällen der anthropogenen NO_x - und NMVOC-Emis-

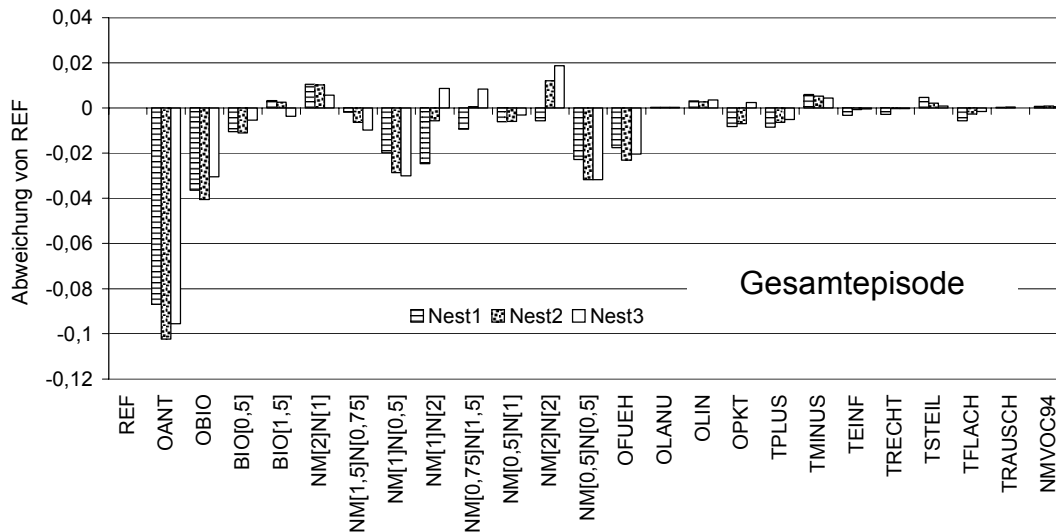


Abb. 6-35: Abweichungen der mittleren Konzentrationen für die Gesamtperiode.

sionsänderungen mit Ausnahme des NM[2]N[1]-Falls auf dem Nest1-Gitter immer eine Minderung der mittleren Ozonkonzentrationen erreicht wird, auch bei Verdoppelung der anthropogenen Emissionen.

Dieses relativ grobe Erklärungsmodell kann nur für räumliche und zeitliche Mittelwerte herangezogen werden. Sollen auch die Wirkungen veränderter Emissionen auf stündliche Einzelwerte der Konzentrationen in den Gitterzellen analysiert werden, müssen zusätzlich die meteorologischen Verhältnisse, die Rand- und Startbedingungen, die übrigen Höhenschichten sowie die räumliche, zeitliche und stoffliche Charakteristik der Emissionen im Detail betrachtet werden, was im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich ist.

6.7.2 Vergleich der 0,95-Quantile der Konzentrationsdifferenzen

Eine Aussage über die für das Verständnis des Emissionsmodells wichtigen zeitlichen und räumlichen Variationen der Abweichungen vom Referenzfall kann durch alleinige Betrachtung von Konzentrationsmittelwerten nicht gemacht werden. Dazu müssen die 0,95-Quantile der absoluten Differenzen herangezogen werden (Abb. 6-36), da sie aufgrund der konkaven Form der sortierten Differenzen (siehe Abb. 6-5) wesentlich empfindlicher auf Konzentrationsänderungen reagieren. Dieser Untersuchungsparameter ist aber weniger zur prozessanalytischen Betrachtung, sondern hauptsächlich zum Vergleich der durch Anwendung der Sensitivitätsfälle bewirkten Konzentrationsänderungen – in hoher Auflösung – geeignet. Er gibt an, welche Fehlerbandbreite akzeptiert werden muss, wenn bei einer Ozonsimulation unter Verwendung der Emissionsdaten im jeweiligen Sensitivitätsfall 95 % aller stündlichen zellbezogenen Ozonkonzentrationswerte mit dem Referenzfall übereinstimmen sollen. So muss diese Fehlerbandbreite z. B. im Fall ohne anthropogene Emissionen (OANT) auf dem Nest1-Gebiet $\pm 41 \mu\text{g}/\text{m}^3$ betragen, damit während der gesamten Zwei-Tagesperiode 95 % der stündlich in Deutschland berechneten Konzentrationen das „gleiche“ Ergebnis wie der Referenzfall erzielen (Abb. 6-36). Diese Bandbreite ist unterschiedlich je nach räumlicher Auflösung und Untersuchungsgebiet. In dem Beispiel liegen die 0,95-Quantile der Differenzen für das Nest3-Gebiet nur bei $35,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Auch ein Abschalten der biogenen Emissionen ist mit einer hohen Fehlerbandbreite verbunden, die mit $26,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf dem Nest3-Gebiet über dem des Nest1-Gebiets

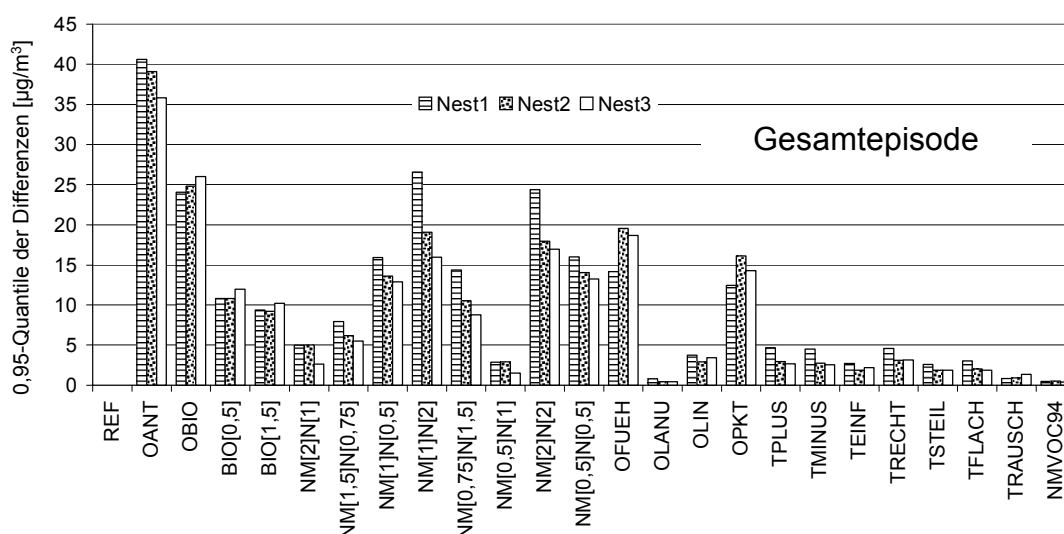


Abb. 6-36: 0,95-Quantile der stündlichen Konzentrationsdifferenzen aller Gitterzellen für die Sensitivitätsfälle in der Gesamtperiode. Fallübersicht: Tabelle 7-1.

($24,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$) liegt. Eine Verminderung oder Erhöhung der biogenen Emissionen um 50 % (BIO[0,5] und BIO[1,5]) bewirkt 0,95-Quantile, die etwas geringer als die Hälfte der Auswirkungen von OBIO sind.

Werden die anthropogenen NO_x - bzw. NMVOC-Emissionen um einen festen Faktor verändert, können die 0,95-Quantile durch lineare Regression in eine direkte Beziehung zu den Emissionen gesetzt werden. Es gilt für die Nestgebiete 1 – 3:

$$q_{0,95} = a \cdot \Delta_{\text{NO}_x} + b \cdot \Delta_{\text{NMVOC}} \quad (6-1)$$

$q_{0,95}$	0,95-Quantil der Differenzen
Δ_{NO_x}	Differenz der NO_x -Emissionen des betrachteten Sensitivitätsfalls vom Referenzfall in [t]
Δ_{NMVOC}	Differenz der NMVOC-Emissionen des betrachteten Sensitivitätsfalls vom Referenzfall (anthropogene und biogene Emissionen) in [t]
a, b	Regressionsparameter (n = 9):

Gebiet	a	b	r^2
Nest1	2,13E-03	2,82E-04	0,95
Nest2	6,99E-03	1,65E-03	0,87
Nest3	2,43E-02	3,87E-03	0,88

An der Größe des NO_x -Regressionsparameters a , der bis zu 7,5 mal höher als der NMVOC-Regressionsparameter b ist, kann der größere Einfluss von Emissionsänderungen von NO_x gegenüber denen von NMVOC auf die Ozonkonzentrationen abgeleitet werden. Daher liegen auch die 0,95-Quantile der beiden Fälle mit den größten Änderungen in den NO_x -Emissionen (NM[1]N[2] und NM[2]N[2]) mit $26,6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $24,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im Vergleich zu den anderen Sensitivitätsfällen mit veränderten NO_x - und NMVOC-Emissionen am höchsten. Dieser Effekt ist auf die für diese Episode sehr hohen biogenen NMVOC-Emissionen zurückzuführen, die eine NO_x -Limitierung zur Folge haben, so dass der Ozonauf- und -abbau wesentlich durch Änderungen der NO_x -Emissionen bestimmt wird.

Besonders interessant ist der Vergleich der Auswirkungen von Änderungen von biogenen bzw. anthropogenen Emissionen, indem die Fälle REF, OBIO, BIO[0,5], BIO[1,5], NM[0,5]N[1] und NM[2]N[1] ebenfalls für eine Regressionsanalyse herangezogen werden.

$$q_{0,95} = c \cdot \Delta_{NMVOC} \quad (6-2)$$

$q_{0,95}$	0,95-Quantil der Differenzen				
Δ_{NMVOC}	Differenz der NMVOC-Emissionen des betrachteten Sensitivitätsfalls vom Referenzfall (anthropogene und biogene Emissionen) in [t]				
c	Regressionsparameter (biogen: n = 4, anthropogen: n = 3):				
	Gebiet	Emission	c	r^2	Quotient bio. / anth.
	Nest1	biogen	1,36E-03	0,98	2,69
		anthropogen	5,05E-04	0,99	
	Nest2	biogen	4,53E-03	0,97	1,69
		anthropogen	2,68E-03	0,99	
	Nest3	biogen	1,40E-02	0,98	2,86
		anthropogen	4,90E-03	0,99	

Der Quotient der Regressionsparameter für biogene und anthropogene Emissionen zeigt, dass auf allen Nest-Gebieten Änderungen der NMVOC-Gesamtemissionen aus biogenen Quellen weit höhere Auswirkungen auf die Qualität der Ozonmodellierung haben als die aus anthropogenen Quellen. Dies gilt unter den Bedingungen der hier betrachteten Episode, wo die Emissionen der sehr reaktiven biogenen NMVOC die der anthropogenen NMVOC weit übersteigen, für relative ebenso wie für absolute Emissionsänderungen.

Die räumliche Auflösung der Flächenquellenemissionen scheint für die Ozonmodellierung keine große Rolle zu spielen. Werden keine Landnutzungsdaten eingesetzt, um Emissionen von Landes- oder Kreisebene auf die Emissionskataster zu verteilen (OLANU), liegen die 0,95-Quantile nur zwischen $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $0,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Einen stärkeren Einfluss hat die zusätzliche gleichmäßige Verteilung von Linienquellenemissionen auf die Kreisfläche (OLIN) mit bis zu $3,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf dem Nest1-Gebiet. Werden schließlich noch die Punktquellenemissionen in die unterste Schicht gelegt und auf Kreisebene gleichmäßig verteilt (OPKT), steigen die 0,95-Quantile der Differenzen von $12,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf dem Nest1-Gebiet bis $16,2 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf dem Nest2-Gebiet an. Wie schon bei den Differenzen der Mittelwerte festgestellt werden konnte, hat diese Vernachlässigung der räumlichen Information geringere Auswirkungen auf die Genauigkeit der Simulation als das alleinige Weglassen der vertikalen Dimension im OFUEH-Fall, wo ebenfalls die Emissionen alle in die unterste Schicht gelegt werden, die horizontale Verteilung der Punktquellen aber beibehalten wird. Auf dem Nest2-Gitter werden dadurch bei einem 0,95-Quantil der Differenzen von $19,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ im OFUEH-Fall sogar alle Fälle übertroffen, in denen die NO_x -Emissionen insgesamt variiert werden (NM[2]N[1] – [NM[0,5]N[0,5]]).

Wird der Zeitverlauf der stündlichen anthropogenen Emissionen um eine Stunde verschoben, was z. B. durch die Zeitumstellung von Winter- auf Sommerzeit auch in der Realität nachvollzogen wird, ergeben sich bei großräumiger Ozonsimulation auf dem Nest1-Gebiet 0,95-Differenzenquantile von $4,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (TPLUS) und $4,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (TMINUS), während die Abweichungen auf dem Nest2- und Nest3-Gebiet mit höchstens $2,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wesentlich geringer

ausfallen. Obwohl die Differenzen der Mittelwerte (Abb. 6-35) beim Zusammenschieben (TSTEIL) oder Auseinanderziehen (TFLACH) des Tagesgangs über denen des TRECHT-Falls liegen, wo nur fünf einfache Rechteckzeitkurven verwendet werden, muss im TRECHT-Fall mit höheren Fehlern gerechnet werden: Im TRECHT-Fall liegen die 0,95-Quantile klar über denen des TSTEIL- bzw. TFLACH-Falls. Eine Vereinfachung der Zeitkurven durch Verwendung durchschnittlicher Zeitkurven für SO_2 , NO_x , CO , NMVOC und NH_3 , wie dies im TEINF-Fall getestet wurde, liegen mit 0,95-Quantilen von $1,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $2,7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in einem ähnlichen Bereich wie TSTEIL und TFLACH ($1,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $3,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

Auch der Fall TRAUSCH scheint zu bestätigen, dass der genaue zeitliche Verlauf der Emissionen weniger relevant ist als z. B. die zeitliche Lage der Emissionen. Mit 0,95-Quantilen von $0,8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $1,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sind die Änderungen im Vergleich zu den anderen Zeitkurvenvariationen sehr gering.

Den geringsten Einfluss auf Änderungen in den bodennahen Ozonkonzentrationen hat die Verwendung des gemittelten VOC-Profiles für das Jahr 1994 (NMVOC94). Hier liegen die 0,95-Quantile mit $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bis $0,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ unter denen des OLANU-Falls.

Aus dem Vergleich der 0,95-Quantile der Differenzen, wie sie für Tages- und Nachtstunden berechnet werden (Abb. 6-37 und Abb. 6-38) wird deutlich, dass für das Zustandekommen

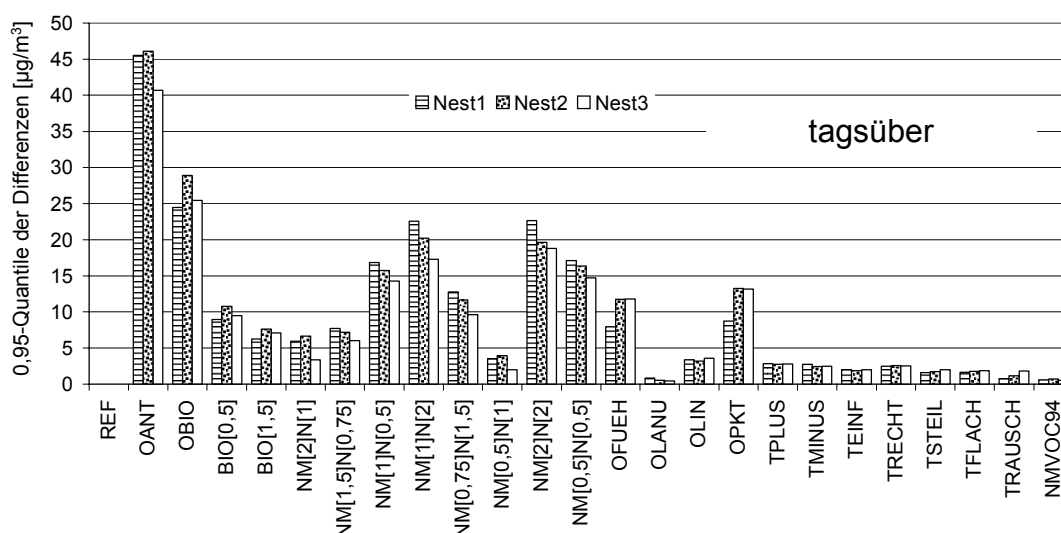


Abb. 6-37: 0,95-Quantile der stündlichen Konzentrationsdifferenzen aller Gitterzellen für die Sensitivitätsfälle tagsüber.

der 0,95-Quantile für die Gesamtperiode die chemischen Mechanismen in unterschiedlicher Gewichtung beitragen. Die 0,95-Quantile auf dem Nest1-Gebiet sind in den Fällen nachts deutlich höher als tagsüber, wo die NO_x -Emissionen in den unteren Schichten erhöht werden (NM[0,75]N[1,5], NM[1]N[2], NM[2]N[2], OFUEH, OPKT) oder die zeitliche Lage des Emissionstagesgangs variiert wird (TPLUS, TMINUS, TEINF, TRECHT, TSTEIL, TFLACH). Dagegen sind die nächtlichen 0,95-Quantile für das Nest2- bzw. das Nest3-Gebiet nur bei Vernachlässigung der geographischen Information von Punktquellen (OFUEH, OPKT) signifikant höher als die Tageswerte.

Schließlich sollen noch die regionalen Unterschiede untersucht werden, indem die 0,95-Quantile der einzelnen Nestgebiete mit denen auf nur städtisch geprägten Gitterzellen vergli-

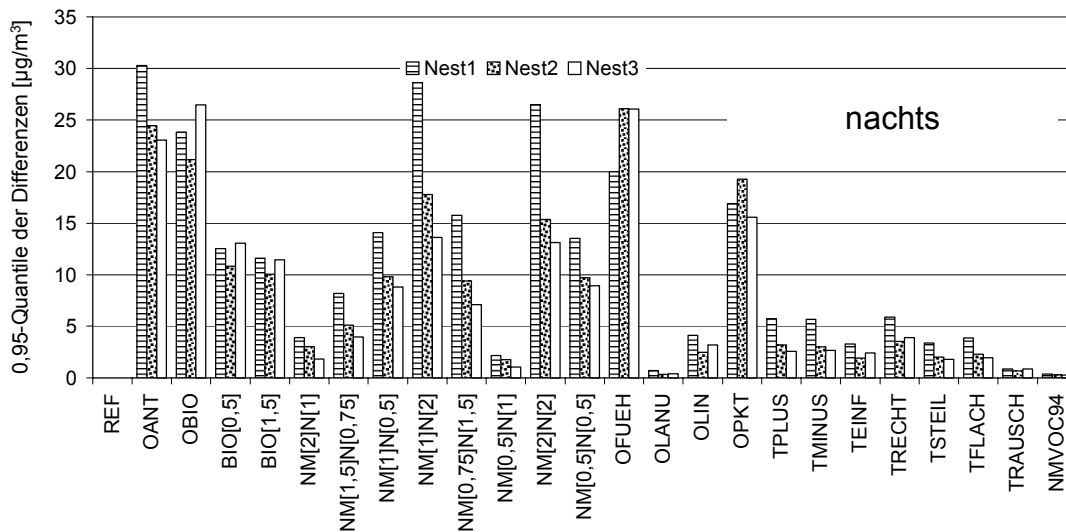


Abb. 6-38: 0,95-Quantile der stündlichen Konzentrationsdifferenzen aller Gitterzellen für die Sensitivitätsfälle in der Nacht.

chen werden (Abb. 6-36 und Abb. 6-39). Auch hier heben sich die Ergebnisse auf dem Nest1-

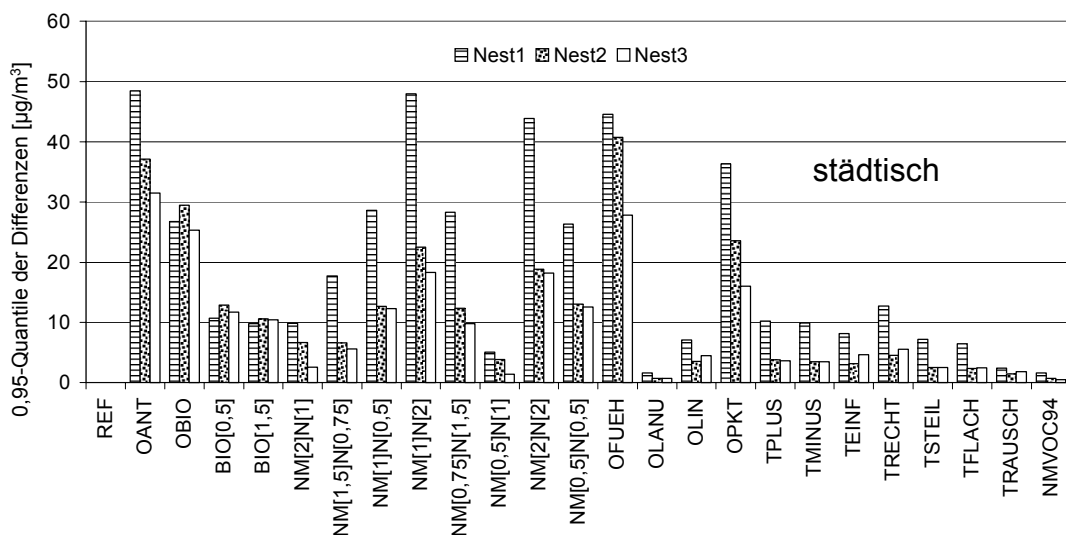


Abb. 6-39: 0,95-Quantile der stündlichen Konzentrationsdifferenzen in städtisch geprägten Gebieten für die Gesamtperiode.

Gebiet deutlich ab: Nur bei der Variation biogener Emissionen (OBIO, BIO[0,5], BIO[1,5]) liegen die 0,95-Quantile niedriger als die eines der anderen beiden Nest-Gebiete. In der Hälfte der Fälle übersteigen sie diese um mehr als das Doppelte. Generell liegen alle 0,95-Quantile auf Stadtgebiet über denen des Gesamtgebiets oder nur knapp darunter. Die größten Unterschiede weisen die Fälle OFUEH und OPKT mit einer Differenz von $30,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bzw. $23,9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ auf dem Nest1-Gebiet auf. Es ist nicht weiter verwunderlich, dass Änderungen der anthropogenen Emissionen in Städten mehr Einfluss auf die Ozonkonzentrationen haben als außerhalb, da dort die meisten Emissionsquellen lokalisiert sind. Deshalb muss bei einer Ozonprognose für städtische Gebiete auch mit größeren Unsicherheiten gerechnet werden.

6.7.3 Abhängigkeit der AOT60-Werte von den Emissionen

Bei Strategien zur Vermeidung von Gesundheitsschäden durch Luftverunreinigungen spielen vor allem die hohen Ozonkonzentrationen über 60 ppb ($\sim 120 \mu\text{g}/\text{m}^3$) eine Rolle. Um diese auch in längeren Zeitreihen erfassen zu können, kann der AOT60-Wert herangezogen werden, der alle positiven Konzentrationsdifferenzen zu 60 ppb summiert. Die in Abb. 6-40 dargestellten

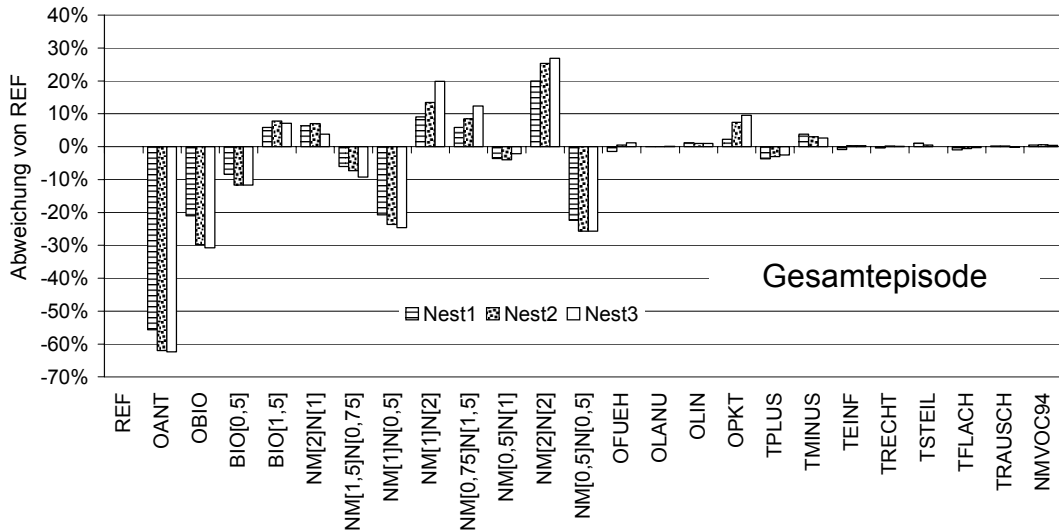


Abb. 6-40: Abweichungen der AOT60-Werte für die Gesamtperiode. Fallübersicht: Tabelle 7-1.

Differenzen zu den AOT60-Werten des Referenzfalls zeigen wegen der impliziten Schwelle von 60 ppb deutlich die Charakteristik der Tageschemie, wie sie anhand der absoluten Konzentrationsdifferenzen in Abb. 6-33 schon besprochen wurde.

Analog zu Gleichung (6-1) kann eine Regressionsanalyse mit den ermittelten AOT60-Werten Aufschluss über deren Abhängigkeit von den NO_x - bzw. NMVOC-Emissionen geben. Hierzu werden wieder die Ergebnisse der Fälle NM[2]N[1] bis NM[0,5]N[0,5] und des Referenzfalls ausgewertet:

$$\text{AOT60} = a \cdot E_{\text{NO}_x} + b \cdot E_{\text{NMVOC}} + c \quad (6-3)$$

AOT60	AOT60-Werte in [ppb h]
E_{NO_x}	anthropogene Emissionen von NO_x in [t]
E_{NMVOC}	anthropogene Emissionen von NMVOC in [t]
a, b, c	Regressionsparameter (n = 9):

Gebiet	a	b	c	r^2
Nest1	4,75E-03	2,34E-03	165,6	0,89
Nest2	2,22E-02	1,10E-02	98,4	0,92
Nest3	1,09E-01	2,37E-02	123,7	0,94

Die Gleichung gibt an, bei welchen Emissionsstärken von NO_x und NMVOC unter Beibehaltung der übrigen Emissionen welche AOT60-Werte innerhalb der betrachteten Episode auf den verschiedenen Gittergebieten auftreten. Wie die 0,95-Quantile reagieren auch die AOT60-Werte stärker auf Änderungen bei den NO_x -Emissionen (Regressionsparameter a) als bei NMVOC-

Emissionen (b). Die Achsenabschnitte (c) repräsentieren die AOT60-Werte, die sich bei völligem Abschalten der NO_x- und NMVOC-Emissionen in Deutschland ergeben. Sie liegen im Bereich der Werte, die durch das Weglassen aller anthropogenen Emissionen im OANT-Fall simuliert werden (siehe Tabelle 7-8 im Anhang). Das bedeutet aber, dass die AOT60-Werte durch keine Maßnahmen zur Minderung anthropogener Emissionen auf den gesundheitlich relevanten Wert von AOT60 = 0 verringert werden können. Diese Aussage bezieht sich natürlich nur auf die Randbedingungen der hier durchgeführten Modellierung und die Annahme eines nationalen Alleingangs, nicht aber auf länderübergreifende Maßnahmen.

7 Schlussfolgerungen

Großräumige Untersuchungen zur Modellierung der Luftqualität sind auf die rechnergestützte Erstellung anthropogener Emissionskataster angewiesen, da flächendeckende Messungen aller emissionsrelevanten Prozesse nicht möglich sind. Mit dem in dieser Arbeit vorgestellten Instrumentarium können räumlich, zeitlich und stofflich hochaufgelöste Emissionen von Deutschland berechnet werden, die als Eingangsdaten für Chemie-Transport-Modelle zur Ermittlung der chemischen und physikalischen Vorgänge in der Troposphäre dienen. Hierfür wurden schon bestehende Ansätze weiterentwickelt und für das Jahr 1994 beispielhaft angewendet. Vor allem in den folgenden Punkten wurden Verbesserungen in den Berechnungsmethoden und der Qualität der Ausgabedaten erzielt:

- Erstmals wird ein konsistentes Modell zur Berechnung hochaufgelöster Emissionen flächendeckend für ganz Deutschland angewendet.
- Größe des Untersuchungsgebiets: Es können Emissionsdaten in hoher räumlicher Auflösung bis zu einer Gitterweite von 2 km für ganz Deutschland berechnet werden.
- Harmonisierte Methoden: Für alle Bundesländer werden – soweit aufgrund der Datenlage möglich – einheitliche Berechnungsmethoden verwendet.
- Räumliche Auflösung: Von elf Bundesländern werden Emissionserklärungen zur Erfassung der Punktquellenemissionen verwendet. Zur räumlichen Verteilung von Flächenquellenemissionen werden Landnutzungsdaten und Straßennetze mit einer Genauigkeit von 250 m eingesetzt.
- Zeitliche Variabilität: Da alle Zeitkurven in stündlicher Auflösung für das Jahr 1994 vorliegen, können stündliche Emissionen für jede beliebige Episode ermittelt werden.
- Verbesserung des Verkehrsmodells: Die Methoden zur Ermittlung der jährlichen Verdunstungsemissionen wurden weiterentwickelt, so dass trotz des hohen Detaillierungsgrads, den die Verwendung stündlicher Temperaturdaten notwendig macht, innerhalb weniger CPU-Stunden berechnet werden können. Die Running Losses werden ebenso berücksichtigt wie die verbesserten Kaltstartfaktoren des TÜV Rheinland, die höhenabhängige Temperaturschichtung und der Wärmeinseleffekt größerer Ortschaften.
- Stoffliche Auflösung: Für die Weiterverarbeitung im etablierten RADM2-Chemie-Mechanismus werden die neuesten Erkenntnisse über VOC-Profile aus der Verwendung von Lösemitteln berücksichtigt.

Die Ergebnisse der Emissionsberechnung für das Jahr 1994 zeigen, dass der Verkehr einer der Hauptverursachersektoren für anthropogene Luftverunreinigungen in Deutschland ist. Nach dem Straßenverkehr ist die Anwendung von Lösemitteln der zweitgrößte Verursacherbereich von NMVOC-Emissionen, während nahezu alle NH_3 -Emissionen aus der Landwirtschaft stammen. Genehmigungsbedürftige Anlagen sind trotz des technischen Fortschritts von Abgasreinigungsanlagen in den letzten drei Jahrzehnten weiterhin für fast die gesamten SO_2 -Emissionen verantwortlich und für etwa ein Drittel der NO_x -Emissionen. Die räumliche Verteilung der NO_x -, CO- und NMVOC-Emissionen in Deutschland spiegelt den Grad der Besiedlung und der industriellen Aktivitäten wieder: Im bevölkerungsreichen Nordrhein-Westfalen mit seiner hohen Anzahl an Industriebetrieben werden die meisten Emissionen verursacht.

Beim zeitlichen Verlauf der NMVOC-Emissionen ist vor allem der stündliche Tagesgang von Bedeutung, da er wesentlich größere Schwankungen aufweist als der tägliche bzw. wö-

chentliche Jahresgang. Je höher der Anteil der Emissionen eines Stoffes aus Anlagen zur Raumwärmebereitstellung an den Gesamtemissionen ist, desto stärker sind auch die jahreszeitlichen Variationen, wie z. B. bei den CO-Emissionen, wo auch Kleinf Feuerungen der Haushalte erheblich zu den Gesamtemissionen beitragen. Den ausgeprägtesten Jahresgang zeigen die NH₃-Emissionen aufgrund der Gülle- und Kunstdüngerabfuhr im Frühjahr.

Ausgehend von den für das Jahr 1994 ermittelten Emissionen wurde ein Trendszenario erstellt, das die Entwicklung der Emissionen bis 2010 unter Einbeziehung der vorhandenen und zu erwartenden rechtlichen Rahmenbedingungen in Deutschland wiedergibt. Trotz erheblicher Emissionsminderungen für die Stoffgruppen NO_x und NMVOC ist zu erwarten, dass die Emissionsgrenzen der vorgeschlagenen EU-NEC-Richtlinie nicht eingehalten werden können. Bei einer einseitigen Abschaltung aller anthropogenen Emissionen in Deutschland kommt es immer noch bei entsprechender Wetterlage zu hohen Überschreitungshäufigkeiten von 120 µg/m³. Aus diesen Gründen sind weiterhin länderübergreifende Anstrengungen der Entscheidungsträger für eine effiziente Luftreinhaltepolitik im europäischen Kontext notwendig.

Durch Regressionsanalysen konnte die Abhängigkeit der AOT60-Werte von der Höhe der NO_x- bzw. NMVOC-Emissionen abgeleitet werden. Diese Auswertung wie auch die Ergebnisse des Sensitivitätsfalls ohne anthropogene Emissionen (OANT) zeigen, dass unter den für diese Untersuchung vorliegenden Randbedingungen durch keine Emissionsminderungsmaßnahme die AOT60-Werte auf die von der WHO als gesundheitlich relevant angesehene Schwelle von AOT60 = 0 verringert werden können.

Neben der detaillierten Beschreibung der Berechnungsalgorithmen wurden im Rahmen dieser Arbeit auch die Grundlagendaten charakterisiert, die für die Emissionsberechnung notwendig sind. Es zeigt sich, dass die Datenbeschaffung und -aufbereitung eine zentrale Rolle bei der Erstellung von Emissionskatastern spielt. Viele Daten unterliegen dem Datenschutz (z. B. Emissionserklärungsdaten), einer besonderen Geheimhaltung (z. B. Militärische Flugbewegungen) oder sind nur mit hohem finanziellen Aufwand zu beschaffen (z. B. detaillierte Innerortsstraßenkarten). Aus diesem Grund mussten die Berechnungsmethoden der Verfügbarkeit von Eingangsdaten angepasst werden, so dass auch weiterhin Spielraum für Verbesserungen bleibt.

Weitergehende Forschungen zur Verbesserung der Grundlagendaten sollten vor allem für den Bereich des Straßenverkehrs erfolgen. Zwar steht mit dem UBA-Handbuch eine umfangreiche Emissionsfaktorendatenbank zur Verfügung, allerdings gibt es bisher keine konkreten Angaben zu den Unsicherheiten, mit denen die den Emissionsfaktoren zugrunde liegenden Emissionsfunktionen behaftet sind. Auch wurden bei den Prüfstandsmessungen zur Messung der Emissionsfunktionen Fahrzeuge mit defektem Katalysator, die einen nicht zu vernachlässigenden Anteil am Fahrzeugbestand haben, ausgeschlossen, so dass die Gesamtemissionen des Straßenverkehrs wahrscheinlich unterschätzt werden.

Für die Ermittlung der Unsicherheiten, die sich mit dem in dieser Arbeit entwickelten Emissionsmodell bei der Verwendung der hochaufgelösten Emissionen in Chemie-Transport-Modellen ergeben, wurden umfangreiche Sensitivitätsrechnungen durchgeführt. Für diese Untersuchungen wurde ein Chemie-Transport-Modell für eine zweitägige Episode des Jahres 1994 auf drei Gittern mit unterschiedlicher räumlicher Auflösung eingesetzt. Sowohl beim Emissionsmodell als auch beim Chemie-Transport-Modell handelt es sich um hochentwickelte Systeme nach dem Stand der Technik, wodurch die hier exemplarisch gewonnenen Ergebnisse wissenschaftliche Schlussfolgerungen zulassen. Aufgrund des Vergleichs der Auswirkungen

von Änderungen im Emissionsmodell auf die Ozonkonzentrationen untereinander können grundlegende Hinweise auf wichtige und weniger wichtige Einflussgrößen innerhalb des Gesamtsystems identifiziert werden:

- Anthropogene und biogene Emissionen müssen für Ozonsimulationen sorgfältig modelliert werden. Bei den hochsommerlichen Wetterverhältnissen der Untersuchungsperiode haben biogene Emissionen, wie sie vom Chemie-Transport-Modell berechnet werden, in Deutschland einen sehr hohen Anteil an den Gesamt-NMVOC-Emissionen. Es resultiert, wie aus der Regressionsanalyse hervorgeht, eine NO_x -Limitierung der bodennahen Ozonkonzentrationen, d. h. Änderungen der Konzentrationen werden hauptsächlich durch Änderungen der NO_x -Emissionen verursacht. Dies lässt sich allerdings nicht auf Jahresmittelwerte verallgemeinern, wo die biogenen Emissionen nur mit etwa einem Viertel zu den Gesamt-NMVOC-Emissionen beitragen (STEINBRECHER, 1999).
- Die Regressionsanalysen zur Abhängigkeit der Konzentrationsänderungen bodennahen Ozons von den Unsicherheiten anthropogener bzw. biogener Emissionen legen den Schluss nahe, dass Fehler (relativ und absolut) bei der Modellierung biogener Emissionen zu größeren Abweichungen der Ozonsimulationen führen als bei den anthropogenen Emissionen. Dies ist ein sehr wichtiger Aspekt, da die Unsicherheiten biogener Emissionen über denen der anthropogenen liegen können (bis zu Faktor 10 nach GUENTHER et al., 2000).
- Unsicherheiten anthropogener NO_x -Emissionen haben größere Auswirkungen auf das Simulationsergebnis als die der anthropogenen NMVOC-Emissionen. Daher ist eine möglichst hohe räumliche und zeitliche Genauigkeit für die Erfassung von anthropogenen NO_x -Quellen anzustreben.
- Wird bei Punktquellen ohne die Fahnenüberhöhung gerechnet, kann das zu größeren Fehlern in den Ergebnissen führen als z. B. die pauschale Halbierung der NO_x -Emissionen. Sie darf daher nicht vernachlässigt werden und es muss gesichert sein, dass alle großen Emissionsquellen als Punktquellen erfasst werden. Ohne diese Voraussetzung ist eine kleinräumige Ozonsimulation nicht sinnvoll.
- Durch die genaue Lokalisierung von Emissionen des Straßenverkehrs unter Einbeziehung von Straßennetzen wird die Emissionsmodellierung erheblich verbessert (Fall OLIN).
- Die Verwendung von Landnutzungsdaten zur Erhöhung der räumlichen Auflösung von Flächenquellenemissionen scheint für sommerliche Ozonwetterlagen in Deutschland nur eine geringfügige Verbesserung der Qualität von Emissionsdaten nach sich zu ziehen. Dies gilt aber nur, wenn eine große Zahl der Emissionsquellen als Punktquellen erfasst ist.
- Die Konsequenzen aus den Variationen in der Zeitkurvenerstellung können in keine eindeutige Rangordnung gebracht werden. Auffallend sind die geringen Unsicherheiten, die mit der Verwendung von mittleren Zeitkurven pro Schadstoff(-klasse) verbunden sind. Die Lage des täglichen Emissionsanstiegs und -abfalls hat offensichtlich größere Auswirkungen auf die Ozonsimulation als kurzzeitige Schwankungen, wenn der Gesamttagesverlauf dabei in etwa gleich bleibt.
- Die räumlichen und zeitlichen Unterschiede der Anteile einzelner VOC-Spezies oder -Klassen an den Gesamt-VOC-Emissionen bringen kaum eine Verbesserung der Emissionsberechnung gegenüber der Verwendung eines gemittelten Einheitsprofils. Diese geringe Sensitivität beruht auch auf dem hohen Anteil biogener NMVOC-Emissionen, wodurch die Variation der anthropogenen VOC-Profile wesentlich weniger Gewicht erhält.

- Die Auswirkungen von Unsicherheiten des Emissionsmodells auf die nächtlichen Ozonkonzentrationen sind, wie anhand der 0,95-Quantile der Differenzen festzustellen ist, in vielen Fällen größer oder genauso groß wie die tagsüber.

Ausblick

Zur Erhöhung der Repräsentativität können weiterführende Untersuchungen beitragen. Besonders geeignet wären dazu Experimente mit einem *anderen* CTM für *dieselben* Fälle sowie Simulationen mit *demselben* CTM für *andere* Gebiete in Deutschland und / oder *andere* Episoden. Neben den in dieser Arbeit vorliegenden Randbedingungen hochsommerlicher Meteorologie und der sich daraus ergebenden NO_x -Limitierung durch die Dominanz der biogenen NMVOC-Emissionen bei hohen Ozonkonzentrationen sollten auch Fälle mit NMVOC-Limitierung bei niedrigeren Temperaturen und geringeren biogenen Emissionen analysiert werden.

Naheliegend sind auch Experimente mit regionalen Emissionsmodellen für andere europäische Gebiete, soweit sie einen genügend hohen Detaillierungsgrad aufweisen. Darüber hinaus sollte mit Szenarienrechnungen die Rolle der einzelnen Emissionsmodellkomponenten für zukünftige zu erwartende Emissionsniveaus getestet werden. Besonders der Einfluss von Landnutzungsdaten bei der räumlichen Verteilung von Flächenquellenemissionen bedarf einer weitergehenden Untersuchung. Zwar wird mit dem in dieser Arbeit entwickelten Emissionsmodell durch die Verwendung von hochaufgelösten Landnutzungsdaten keine wesentliche Verbesserung gegenüber einer gleichmäßigen Verteilung der Emissionen auf die Gitterzellen nach ihrem Flächenanteil erzielt. Andererseits wird ein Großteil der Emissionen von Ozonvorläufersubstanzen, insbesondere von NO_x , in dieser Arbeit als Punktquellen erfasst, wodurch der Beitrag der Flächenquellenemissionen an den Gesamtemissionen geringer wird. Diese relativ gute Ausgangsbasis für Punktquellenemissionen liegt nicht immer bei der Erstellung von Emissionskatastern vor. Ein gestuftes Vorgehen, bei dem ein wachsender Anteil der Punktquellenemissionen auf Flächenquellen übertragen wird, könnte dazu beitragen, auch die Sensitivität des Gesamtsystems hinsichtlich des Anteils der als Punktquellen erfassten Emissionen zu quantifizieren.

Besonderer Aufmerksamkeit bei der Ozonsimulation bedarf in Zukunft die Modellierung biogener Emissionen, da diese gerade in Sommersmog-Episoden die anthropogenen NMVOC-Emissionen um ein Vielfaches übersteigen können. Dies wirkt sich sowohl auf die absoluten Konzentrationen als auch auf die Unsicherheiten des Gesamtsystems aus, insbesondere dann, wenn die anthropogenen NMVOC-Emissionen, wie zu erwarten ist, weiterhin abnehmen.

Für die Politikberatung wird es von wissenschaftlicher Seite weiterhin nötig sein, die Verbesserung der Ozonmodellierung voranzutreiben, um verlässlichere Aussagen über die Entstehung und den Verlauf ozonreicher Sommersmogepisoden liefern zu können. Forschungsbedarf besteht nicht nur hinsichtlich der Emissionsmodelle, sondern im gesamten System aus Emissions-, Meteorologie-, Ausbreitungs-, Umwandlungs- und Depositionsmodell. Vielversprechend sind hierbei Modelle mit variablen Gittern, deren lokale Auflösung sich nach der Dynamik in den einzelnen Modellregionen richtet. Zur Entwicklung internationaler Umweltschutzstrategien sollten verstärkt integrierte Modellansätze, die die Emission, Ausbreitung, Umwandlung, Deposition und Wirkung weiterer relevanter Schadstoffe (z. B. Aerosole, Dioxine, Schwermetalle, Klimagase) in verschiedenen Umweltkompartimenten (Atmosphäre, Boden, aquatische Systeme) berücksichtigen, verfolgt werden.

Literaturverzeichnis

1. Bundesimmissionsschutzverordnung, 2000: Verordnung über Kleinf Feuerungsanlagen vom 15.07.1988 – letzte Änderung durch Artikel 1 des Gesetzes vom 03.05.2000. BGBl. I, S. 1059 Bundesregierung, Bonn.
 4. Bundesimmissionsschutzverordnung, 1999: Verordnung über genehmigungsbedürftige Anlagen vom 24.07.1985 – letzte Änderung durch Verordnung vom 23.02.1999. BGBl. I, S. 1486 Bundesregierung, Bonn.
 13. Bundesimmissionsschutzverordnung, 2000: Verordnung über Großfeuerungsanlagen vom 22.06.1983 – letzte Änderung durch Artikel 6 des Gesetzes vom 03.05.2000. BGBl. I, S. 632 Bundesregierung, Bonn.
 21. Bundesimmissionsschutzverordnung, 1992: Verordnung zur Begrenzung von Kohlenwasserstoffemissionen bei der Betankung von Kraftfahrzeugen vom 7. Oktober 1992. BGBl. I, S. 1730 Bundesregierung, Bonn.
 22. Bundesimmissionsschutzverordnung, 1994: Verordnung über Immissionswerte vom 26.10.1993 – geändert mit Verordnung vom 27.05.1994. BGBl. I, S. 880 Bundesregierung, Bonn.
- Abraham, H.-J., Lenschow, P., Lutz, M., Reichenbacher, W., Reimer, E., Scherer, B. und Stark, B., 1995: Flugzeug- und Bodenmessung von Ozon und Vorläuferstoffen zur Abschätzung der Wirksamkeit von emissionsmindernden Maßnahmen im Großraum Berlin-Brandenburg (FLUMOB-Projekt) – Abschlußbericht, Berlin.
- Amian, K.-H., Dohmen, R., Grosch, N., Hellebrandt, P., Niederau, A. und Schneider, C., 1995: Studie zur Verbesserung der Umweltsituation im Oberen Elbtal, Heusch-Boesefeldt, Aachen.
- Arbeitskreis Energiebilanzen, (Hrsg.), 1997: Auswertungstabellen zur Energiebilanz für Deutschland 1993 – 1995. Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung, Berlin.
- Bartelt, B., Regniet, G., Schmidt, G., Jost, P. und Sonnborn, K.-S., 1994: Untersuchungen des repräsentativen Fahrverhaltens von Pkw auf Stadt- und Landstraßen – FB 94-082. Heusch-Boesefeldt und TÜV Rheinland, Im Auftrag des Umweltbundesamts, Aachen/Köln.
- Baumbach, G., 1990: Luftreinhaltung. Springer-Verlag, Heidelberg.
- Benk, M., 1994: Basiswissen Umwelttechnik: Wasser, Luft, Abfall, Lärm, Umweltrecht. Vogel Buchverlag, Würzburg.
- Berliner Wetterkarte, 1994: Amtsblatt des Instituts für Meteorologie – A 1950 A Institut für Meteorologie der Freien Universität Berlin.
- Blank, P., Wickert, B., Obermeier, A., Friedrich, R., Dreiseidler, A., Pfeiffer, F. und Baumbach, G., 1999: Erstellung eines Emissionskatasters für Feuerungsanlagen in Haushalt und Kleinverbrauch, Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Stuttgart.
- Builtjes, P., 1992: The LOTOS Long Term Ozone Simulation Project. Summary report: IMW-R 92/240, TNO, Appeldoorn.
- BAST, 1997: Ergebnisse der automatischen Zählstellen in Deutschland 1994. Bundesamt für Straßenwesen, Bonn

- Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung, 1998: Digitalisierte Zählstellenabschnitte von Fernstraßen für Deutschland Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung, Bonn.
- Bundesverkehrsministerium, (Hrsg.), 1996: Verkehr in Zahlen 1995. Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung (DIW), Berlin.
- Deutscher Wetterdienst, 1994: Europäischer Wetterbericht – Amtsblatt des Deutschen Wetterdienstes 19/207 Deutscher Wetterdienst.
- Deutscher Wetterdienst, 1996: Stündliche Temperaturdaten für 21 ausgewählte Wetterstationen in Deutschland Deutscher Wetterdienst.
- Deutscher Wetterdienst, 1996a: Mittlere Jahrestemperaturen von 1994 im 1 km x 1 km Raster Deutscher Wetterdienst.
- Deutscher Wetterdienst, 1998: Jahresmitteltemperaturen von Deutschland; Auflösung 1 km x 1 km Deutscher Wetterdienst.
- Deutsches Institut für Wirtschaftsforschung, 1997: Energiebilanz der Bundesrepublik Deutschland 1994, Berlin.
- Ebel, A., Neubauer, F. M. und Speth, P., (Hrsg.), 1993: Air Pollution Studies with the EURAD Model System. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Köln.
- Ebel, A., Neubauer, F. M. und Speth, P., (Hrsg.), 1995: Air Pollution Studies with the EURAD Model System (2). Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Köln.
- Ebel, A., Neubauer, F. M. und Speth, P., (Hrsg.), 1997: Air Pollution Studies with the EURAD Model System (3). Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, Köln.
- Ebel, A., Schaller, E. und Schlünzen, K. H., 1997a: Evaluierungsstrategie für Chemie-Transport-Modellsysteme mit Anwendung im Leitthema 1 des Förderschwerpunktes Troposphärenforschung.
- Edmonds, H., 1978: Stadtklima, Natur- und Umweltschutz in der Bundesrepublik Deutschland. Olschowy (Hrsg.). Verlag Parey.
- Elsner, 1997: Handbuch für Straßen- u. Verkehrswesen. Elsner Verlagsgesellschaft.
- EMEP, 1999: Transboundary Photo-oxidants in Europe – EMEP Summary Report 1999: ISSN 0332-9879.
- Environmental Protection Agency, 1996: Evaluating the Uncertainty of Emission Estimates – Emission Inventory Improvement Program, Radian Corporation.
- Environmental Protection Agency, (Hrsg.), 1998: Compilation of Air Pollutant Emission Factors AP-42, Fifth Edition. Environmental Protection Agency.
- EROS Data Center, 2000: GTOPO30 – Global 30 Arc Second Elevation Data Earth Resources Observation Systems (EROS) Data Center (EDC).
- ESRI, 1993: Digital Chart of the World Environmental Systems Research Institute, Inc., Redlands.

- EU, 1980: Richtlinie des Rates vom 15.07.1980 über Grenzwerte und Leitwerte der Luftqualität für Schwefeldioxid und Schwebstaub Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 229/30 vom 30.08.1980.
- EU, 1982: Richtlinie des Rates vom 03.12.1982 betreffend einen Grenzwert für den Bleigehalt der Luft Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 378/15 vom 31.12.1982.
- EU, 1985: Richtlinie des Rates vom 07.03.1985 über Luftqualitätsnormen für Stickstoffdioxid Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 87/1 vom 27.03.1985.
- EU, 1992: Council Directive 92/72/EC of 21.09.1992 on air pollution by ozone Official Journal of the European Communities No. L 297/1 from 13.10.1992.
- EU, 1996: Richtlinie 96/62/EG des Rates vom 27. September 1996 über die Beurteilung und die Kontrolle der Luftqualität Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften L 296 vom 21.11.1996.
- EU, 1999: Richtlinie 1999/13/EG des Rates vom 11. März 1999 über die Begrenzung von Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen, die bei bestimmten Tätigkeiten und in bestimmten Anlagen bei der Verwendung organischer Lösungsmittel entstehen Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 85/1 vom 29.03.1999.
- EU, 1999a: Richtlinie 1999/30/EG des Rates vom 22. April 1999 über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickstoffdioxid und Stickstoffoxide, Partikel und Blei in der Luft Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften Nr. L 163/41 vom 29.06.1999.
- EU, 2000: Vorschlag für eine Richtlinie des Europäischen Parlaments und des Rates über nationale Emissionshöchstgrenzen für bestimmte Luftschadstoffe, Brüssel.
- EU, 2000a: Geänderter Vorschlag für eine Richtlinie des Europäischen Parlaments und des Rates über den Ozongehalt der Luft, Brüssel.
- European Environment Agency, (Hrsg.), 1999: Joint EMEP/CORINAIR Atmospheric Emission Inventory Guidebook. European Environment Agency, Copenhagen.
- Fabian, P., 1992: Atmosphäre und Umwelt. Springer Verlag, Berlin.
- Finlayson-Pitts, B. J., and Pitts, J. N., 1999: Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere. Academic Press, Canada.
- Flassak, T., 1990: Ein nicht-hydrostatisches mesoskaliges Modell zur Beschreibung der Dynamik der planetaren Grenzschicht. VDI-Verlag GmbH, 74, Düsseldorf.
- Fortak, H., Blümle, K., Hollan, E., Kähler, M. und Peter, R., 1986: Entwicklung von Testreferenzjahren (TRY) für Klimaregionen in der Bundesrepublik Deutschland. Fachinformationszentrum Karlsruhe, Karlsruhe.
- Friedrich, R., Wickert, B. und Laing, R., 1996: Ermittlung von Luftschadstoffemissionen in den neuen Bundesländern, Wissenschaftliches Begleitprogramm zur Sanierung der Atmosphäre über den neuen Bundesländern, Abschlußbericht. Band 1. Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie, Bonn.
- Grell, G. A., Dudhia, J., and Stauffer, D. R., 1994: A description of the fifth-generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5) – Technical Note, NCAR.
- GSF, 2000: Förderschwerpunkt Troposphärenforschung GSF – Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, GmbH, Neuherberg.

- Guenther, A., Geron, C., Pierce, T., Lamb, B., Harley, P., and Fall, R., 2000: Natural emissions of non-methane volatile organic compounds, carbon monoxide, and oxides of nitrogen from North America. *Atm. Env.* 34: 2205 – 2230.
- Hass, H., Memmesheimer, M., Geiss, H., Jacobs, H. J., Laube, M., and Ebel, A., 1990: Simulation of the Chernobyl Radioactive Cloud over Europe using the EURAD Model. *Atmospheric Environment* 24A: 673 – 692.
- Hass, H., 1991: Description of the EURAD Chemistry-Transport-Model Version2 (CTM2), *Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln*. A. Ebel, F. M. Neubauer and P. Speth (Hrsg.). Heft 83, Köln.
- Hassel, D., Jost, P., Weber, F.-J., Dursbeck, F., Sonnborn, K.-S. und Plettau, D., 1993: Abgasemissionen von Fahrzeugen der Baujahre 1986 bis 1990, TÜV Rheinland, Berlin.
- Hassel, D., Jost, P., Weber, F.-J., Dursbeck, F., Sonnborn, K.-S. und Plettau, D., 1995: Abgas-Emissionsfaktoren von Nutzfahrzeugen in der Bundesrepublik Deutschland für das Bezugsjahr 1990, TÜV Rheinland, Köln.
- Hassel, D., Weber, F.-J. und Sonnborn, K.-S., 1997: Ermittlung von Pkw-Emissionsfaktoren von Fahrzeugen der Baujahre 1991 bis 1994 in der Bundesrepublik Deutschland und Fortschreibung des Handbuchs – Teil 1, TÜV Rheinland, Köln.
- Hautzinger, H., Heidemann, D., Krämer, B. und Tassaux-Becker, B., 1994: Fahrleistungen und Unfallrisiko von Kraftfahrzeugen, Institut für angewandte Verkehrs- und Tourismusforschung e. V., Bergisch Gladbach.
- Hautzinger, H., Heidemann, D. und Krämer, B., 1996: Inländerfahrleistung 1993, Institut für angewandte Verkehrs- und Tourismusforschung e. V., Bergisch Gladbach.
- Hautzinger, H., Heidemann, D. und Krämer, B., 1996a: Inlandsfahrleistung und Unfallrisiko 1993, Institut für angewandte Verkehrs- und Tourismusforschung e. V., Bergisch Gladbach.
- Heine, 1993: Verdampfungs- und Verdunstungsemissionen, RWTÜV, Institut für Fahrzeugtechnik, Essen.
- Heine, P. und Baretta, A., 1989: Emissionsfaktoren für die Verdampfungsemissionen von Kraftfahrzeugen mit Ottomotoren: 104 05 149, RWTÜV e. V., Essen.
- Heymann, M., Kasas, Y., and Friedrich, R., 1994: European emission data with high temporal and spatial resolution: a contribution to subproject GENEMIS. *EROTRAC Symposium '94*, Garmisch-Partenkirchen. SPB Academic Publishing.
- Holtmann, T., 1997: Entwicklung eines Instrumentariums zur Emissionsprojektion auf der Basis des Emissionsfaktoransatzes, Frankfurt am Main.
- Holzappel, C., and Memmesheimer, M., 1991: Estimation of Emission Data in Europe as Input for Long Range Transport Calculations, Forschungszentrum Jülich, Jülich.
- IFEU, 1999: Fortschreibung Daten- und Rechenmodell, Teil 1: Daten: 298 45 105, Institut für Energie- und Umweltforschung, Heidelberg.
- IIASA, 1995: *Global Energy Perspectives to 2050 and Beyond*, International Institute for Applied Systems Analysis (IIASA), Laxenburg (A).
- IIASA, 1998: *Cost-effective Control of Acidification and Ground-Level Ozone – 6th Interim Report to the European Commission*, International Institute for Applied Systems Analysis (IIASA), Laxenburg (A).

- John, C., 1999: Emissionen von Luftverunreinigungen in hoher räumlicher und zeitlichen Auflösung – Untersuchung von Emissionsszenarien am Beispiel Baden-Württembergs. Dissertation. IER, Universität Stuttgart, Stuttgart.
- Jacobs, H. J., Ebel, A., and Feldmann, H., 1994: Model experiments with multiple nesting: Comparison with measurements during a SANA Episode. EMEP Workshop on the Accuracy of Measurements 1994, Passau.
- John, C., Friedrich, R., Obermeier, A. und Seier, J., 1995: Emissionen von Ozonvorläufersubstanzen und ihre Minderung im südlichen Oberrheingraben. 11. Statuskolloquium des PEF, Forschungszentrum Karlsruhe.
- Kraftfahrt-Bundesamt, 1994: Statistische Mitteilungen – Reihe 2: Kraftfahrzeuge – Sonderheft 2 1994, Kraftfahrt-Bundesamt, Flensburg.
- Krüger, R., 2001: Systemanalytischer Vergleich alternativer Kraftstoff- und Antriebskonzepte in der Bundesrepublik Deutschland. Dissertation. IER, Universität Stuttgart, Stuttgart.
- Kühlwein, J., Friedrich, R., Obermeier, A. und Theloke, J., 1999: Abschätzung und Bewertung der Unsicherheiten hochaufgelöster NO_x- und NMVOC-Emissionsdaten – Zwischenbericht Statusseminar 1999: FZKA-BWPLUS 30, Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Karlsruhe.
- Kühlwein, J., and Friedrich, R., 2000: Uncertainties of modelling emissions from road transport. *Atmospheric Environment* 24: 4603 – 4610.
- Laing, R., 1996: CAREAIR – ein EDV-gestütztes Instrumentarium zur Untersuchung von Emissionsminderungsstrategien für Dritte-Welt-Länder dargestellt am Beispiel Nigerias. Dissertation. IER, Universität Stuttgart, Stuttgart.
- Lensing, N., 1997: Straßenverkehrszählung 1995 – Jahresfahrleistungen und mittlere DTV-Werte, Aachen.
- LUA-NRW, 1999: Emissionskataster Luft 1996/1997, Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Essen.
- Lübker, B., and Schöpp, W., 1989: A model to calculate natural VOC emissions from forests in Europe, Laxenburg.
- May, H., Hattingen, U. und Kind, W., 1993: Abschätzung der Kohlenwasserstoffemissionen während des Betriebes eines Kraftfahrzeuges mit Ottomotor (Running Losses) in der Bundesrepublik Deutschland, Forschungsstelle für Verbrennungskraftmaschinen und Kraftstoffe, Berlin.
- McArragher, J. S., Betts, W. E., Harrison, A., Morgan, D., Schug, K. P., Snelgrove, D. G., Schmiedel, H. P., Wauquier, X., Zemroch, P. J., and Brandt, J., 1990: The Effects of Temperature and Fuel Volatility on Vehicle evaporative Emissions: report no. 90/51, CONCAVE, Brüssel.
- McArragher, J. S., Betts, W. E., Morgan, D., Schmiedel, H. P., Snelgrove, D. G., and Hutcheson, R. C., 1992: VOC Running Losses from Canister-equipped Vehicles: report no. 92/53, CONCAVE, Brüssel.
- Memmesheimer, M., Ebel, A., Hass, H., and Jakobs, H., 1990: Problems of the development of appropriate emission inventories for long range Eulerian chemical transport models on a European scale. Workshop on Int. Emission Inventories, Regensburg. EMEP.

- Memmesheimer, M., Jakobs, H.-J., Piekorz, G., Ebel, A. und Hass, H., 1995: Großräumige Ozon-Modellrechnungen mit verschiedenen Emissionsminderungsszenarien mit Hilfe des Modellsystems EURAD – Abschlußbericht, F. V. Rheinisches Institut für Umweltforschung an der Universität zu Köln, Köln.
- Memmesheimer, M., Ebel, A., and Roemer, M., 1997: Budget Calculations for Ozone and Its Precursors: Seasonal and Episodic Features Based on Model Simulations. *Journal of Atmospheric Chemistry* 28(1/3): 283 – 317.
- Middleton, P., Stockwell, W. R., and Carter, W. P. L., 1990: Aggregation and Analysis of Volatile Organic Compound Emissions for Regional Modeling. *Atmospheric Environment* 24a(5): 1107 – 1133.
- Ministerium für Umwelt und Naturschutz des Landes Sachsen-Anhalt, 1994: Luftreinhalteplan Untersuchungsgebiet 10 – Sachsen-Anhalt, Ministerium für Umwelt und Naturschutz des Landes Sachsen-Anhalt, Magdeburg.
- Ministerium für Umwelt und Verkehr Baden-Württemberg, 1998: Emissionskataster Baden-Württemberg 1995, Stuttgart.
- Moussiopoulos, N., 1989: Mathematische Modellierung mesoskaliger Ausbreitung in der Atmosphäre. VDI-Verlag GmbH, 64, Düsseldorf.
- Obermeier, A., 1995: Ermittlung und Analyse von Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen in Baden-Württemberg. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Universität Stuttgart, Stuttgart.
- Obermeier, A., Friedrich, R., John, C., Seier, J., Vogel, H., Fiedler, F. und Vogel, B., 1995a: Photosmog – Möglichkeiten und Strategien zur Verminderung des bodennahen Ozons. Ecomed, Landsberg.
- Obermeier, A., Seier, J., John, C., Berner, P. und Friedrich, R., 1996: TRACT – Erstellung einer Emissionsdatenbasis für TRACT. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart, Band 27, Stuttgart.
- Palm, I., Regniet, G. und Schmidt, G., 1994: Ermittlung der Pkw-Jahresfahrleistungen 1990 und 1986 auf allen Straßen der Bundesrepublik Deutschland, Heusch-Boesefeldt, Aachen.
- Pfeiffer, F., Struschka, M., Baumbach, G. und Hein, K. R. G., 1998: Ermittlung der mittleren Emissionsfaktoren zur Darstellung der Emissionsentwicklung aus Feuerungsanlagen im Bereich Haushalte und Kleinverbraucher: FB 295 46 364, Institut für Verfahrenstechnik und Dampfkesselwesen, Stuttgart.
- Piehl, H.-D., Zerche, M. und Lehmann, A., 1980: Klimadaten der deutschen demokratischen Republik, Meteorologischer Dienst, Potsdam.
- Pieper, H., 2000: Zusammenfassende Darstellung der Emissionen aus den Emissionskatastern der Bundesländer. *Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft* 60 1/2: 49 – 63.
- Placet, M., Mann, C. O., Gilbert, R. O., and Niefer, M. J., 2000: Emissions of ozone precursors from stationary sources: a critical review. *Atm. Env.* 34: 2183-2204.
- Pregger, T., Blank, P., Krüger, R., Wickert, B., Theloke, J. und Friedrich, R., 2001: Emissionskataster für Bayern, Endbericht, Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Stuttgart.
- Prognos, 1993: Die Bundesrepublik Deutschland 2000 – 2005 – 2010, Entwicklung von Wirtschaft und Gesellschaft, Prognos AG, Basel.

- Prognos, 1995: Die Energiemärkte Deutschlands im zusammenwachsenden Europa – Perspektiven bis zum Jahr 2020, Prognos AG, Basel.
- Prognos, 1999: Die längerfristige Entwicklung der Energiemärkte im Zeichen von Wettbewerb und Umwelt, Prognos AG, Basel.
- Sächsische Staatskanzlei, 1993: Gemeinsamer Erlaß des Sächsischen Staatsministeriums für Umwelt und Landesentwicklung und des Sächsischen Staatsministeriums für Wirtschaft und Arbeit zur Durchführung der Elften Verordnung zur Durchführung des Bundes-Immissionsschutzgesetzes, Dresden.
- Saeger, M., 1994: Procedures for Verification of Emission Inventories, Science Applications International Corporation, Durham, North Carolina.
- Schaller, E. und Wenzel, A., 1999: Evaluierung regionaler atmosphärischer Chemie-Transport-Modelle, Fall1: TRACT, 16.09.1992, 13 – 17 Uhr MESZ, Lehrstuhl für Umweltmeteorologie – Fakultät 4: Umweltwissenschaften und Verfahrenstechnik, Brandenburgische Technische Universität, Cottbus.
- Schaller, E. und Wenzel, A., 2000: Evaluierung regionaler atmosphärischer Chemie-Transport-Modelle, Fall3: FLUMOB, 22.7.94 bis 27.7.94, Lehrstuhl für Umweltmeteorologie – Fakultät 4: Umweltwissenschaften und Verfahrenstechnik, Brandenburgische Technische Universität, Cottbus.
- Schlünzen, K. H., 1990: Numerical studies on the inland penetration of sea breeze fronts at a coastline with tidally flooded mudflats. Beitr. Phys. Atmosph. 63: 243 – 256.
- Schlünzen, K. H., and Lentz, in prep.: Sensitivity of Simulated Ozone Concentrations on Emission Data and Boundary Values. The Third International Conference on Urban Air Quality and 5th SATURN Workshop, Loutraki, Greece. J. of Water, Air and Soil Pollution.
- Schmitz, S., Haserich, D., Oppermann, F., Otto, I., Pütz, T., Siedhoff, M. und Viktorin, D., 1997: Entwicklung eines planungsrelevanten Emissionskatasters Straßenverkehr, Bundesforschungsanstalt für Landeskunde und Raumordnung.
- Schneider, C., 1994: Emissionskataster zur Berechnung der Ausbreitung von Luftschadstoffen. VDI-Verlag GmbH, 135, Düsseldorf.
- Schoenemeyer, T., Schaller, E. und Emeis, S., 1995: Ozonverteilung über Nordrhein-Westfalen und Einfluß von Emissionsreduktionsszenarien – Abschlußbericht, Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung, Garmisch-Partenkirchen.
- Schwarz, U., in prep.: Methoden und Modelle zur multiskalig hoch aufgelösten Bestimmung von luftverunreinigenden Emissionen in Europa. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Universität Stuttgart, Stuttgart.
- Seier, J., 1996: Luftschadstoffemissionen aus Feuerungsanlagen. Institut für Angewandte Thermo- und Fluidodynamik, Karlsruhe.
- Seinfeld, J., 1998: Atmospheric chemistry and physics. John Wiley & Sons, Canada.
- Sonnborn, K.-S., Hassel, D. und Weber, F.-J., 1998: Einfluß der Kaltstarttemperatur auf das Emissionsverhalten von Pkw, TÜV Rheinland.
- Statistisches Bundesamt, (Hrsg.), 1979: Systematik der Wirtschaftszweige, Ausgabe 1979, Fassung für die Statistik im Produzierenden Gewerbe. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.

- Statistisches Bundesamt, (Hrsg.), 1987: Ergebnisse der Gebäude- und Wohnungszählung 1987. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Statistisches Bundesamt, (Hrsg.), 1995: Produzierendes Gewerbe; Fachserie 4, Reihe 8.2, Düngemittelversorgung. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Statistisches Bundesamt, (Hrsg.), 1996: Klassifikation der Wirtschaftszweige mit Erläuterungen. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Statistisches Bundesamt, (Hrsg.), 1996a: Ergebnisse der Gebäude- und Wohnungszählung 1995 in den neuen Ländern und Berlin-Ost. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Statistisches Bundesamt, (Hrsg.), 1997: Land- und Forstwirtschaft, Fischerei; Fachserie 3, Reihe 4, Viehbestand und tierische Erzeugung. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Statistisches Bundesamt, (Hrsg.), 1997a: Statistik regional: Daten und Informationen der statistischen Ämter der Länder und des Bundes. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Statistisches Bundesamt, 1997b: Daten zur Bodenbedeckung für die Bundesrepublik Deutschland Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Stockwell, W. R., Middleton, P., Chang, J. S., and Tang, X., 1990: The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. *J. Geophys. Res.* 95: 16343 – 16367.
- Straßenbauämter der Länder, 1998: Netzknotendaten von Landes- und Kreisstraßen der Bundesländer Sachsen-Anhalt, Nordrhein-Westfalen, Baden-Württemberg, Hessen, Rheinland-Pfalz und Bayern.
- Theloke, J., Obermeier, A. und Friedrich, R., 2000: Ermittlung der Lösemittlemissionen 1994 in Deutschland und Methoden zur Fortschreibung, Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung, Berlin.
- Theloke, J., Obermeier, A. und Friedrich, R., 2001: Abschätzung der Lösemittlemissionen in Deutschland. *Gefährstoffe – Reinhaltung der Luft* 61(3).
- Theloke, J., Obermeier, A., and Friedrich, R., in prep[1]: Compilation of Emissions from Anthropogenic Volatile Organic Compounds for Atmospheric Modeling. *Atm. Env.*
- Tilmes, S., and Ebel, A., 1998: Verification of Ozone Forecasts: What About "Quite Good Results". 2nd GLOREAM Workshop 1998, Madrid.
- Tilmes, S., Brandt, J., Flaty, F., Langner, J., Bergström, R., Christensen, J. H., Ebel, A., Fleming, J., Friedrich, R., Frohn, L. M., Heidegger, A., Hov, O., Jacobsen, J., Jakobs, H., Reimer, E., Wickert, B., and Zimmermann, J., 2000: Intercomparison of Eulerian ozone prediction systems within GLOREAM for summer 1999 using the German monitoring data. GLOREAM Workshop 20 – 22 September 2000. S. Tilmes, Cottbus.
- Umweltbehörde Hamburg, 1997: Luftreinhaltung in Hamburg 1982 – 2000, Hamburg.
- Umweltbundesamt, 1993: Kommentar zu May et al. (1993).
- Umweltbundesamt, 1995: Handbuch für Emissionsfaktoren 1.1 des Straßenverkehrs – Grundlagenbericht: 105 06 005, Berlin.
- Umweltbundesamt, 1995a: Handbuch für Emissionsfaktoren 1.1 des Straßenverkehrs – Erläuterungen zur CD-ROM: 105 06 005, Berlin.
- Umweltbundesamt, 1997: Stündliche Ozonmessdaten der Stationen des Umweltbundesamts 1994 Umweltbundesamt Berlin, Berlin.

- Umweltbundesamt, 1998: Umweltdaten Deutschland 1998, Berlin.
- Umweltbundesamt, 1999: Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs, Version 1.2 Umweltbundesamt Berlin, Berlin.
- Umweltbundesamt, 1999a: Emissionsfaktoren für Feuerungsanlagen des Verarbeitenden Gewerbes und der Kleinverbraucher Herr Noecker, Berlin.
- Umweltbundesamt, 1999b: Die „Saugrüssel“ an Tankstellen müssen zuverlässiger werden. Pressemitteilung Nr. 19/99 Umweltbundesamt, Berlin.
- Umweltbundesamt, 2000: Ozonsituation 2000 in der Bundesrepublik Deutschland, Umweltbundesamt, Berlin.
- Umweltministerium Baden-Württemberg, 1993: Konzeption zur Minderung der VOC-Emissionen in Baden-Württemberg, Umweltministerium Baden-Württemberg, Stuttgart.
- VDI-Richtlinie 2067, 1988: Blatt 7 – Berechnung der Kosten von Wärmeversorgungsanlagen Verein Deutscher Ingenieure.
- Vogel, B., Fiedler, F., and Vogel, H., 1995: Influence of topography and biogenic volatile organic compounds emission in the state of Baden-Württemberg on ozone concentrations during episodes of high air temperatures. *J. Geophys. Res.* 100: 22907-22928.
- Weissbarth, R., Kuhn, P. und Troger, B., 1992: AUTOMOTIV: Ergänzungserhebung zur Nutzung von Pkw und Krafträdern, Infratest Sozialforschung GmbH, München.
- WHO, 1999: Air quality guidelines, Genf.
- Wickert, B., Friedrich, R. und Merten, D., 1998: Luftschadstoffemissionen in den neuen Bundesländern. *Gefahrstoffe – Reinhaltung der Luft* 58 1/2: 51 – 55.
- Winiwarter, W. und Orthofer, R., 2000: Unsicherheit der Emissionsinventur für Treibhausgase in Österreich, Österreichisches Forschungszentrum Seibersdorf GmbH – Bereich Systemforschung Technik–Wirtschaft–Umwelt, Seibersdorf.
- Zapf, R., Döhler, H. und Grimm, E., 1995: Abschätzung von Emissionsfaktoren und der zeitlichen Variabilität der NH₃-Verluste bei der landwirtschaftlichen Tier- und Pflanzenproduktion, Kuratorium für Technik und Bauwesen in der Landwirtschaft e. V., Darmstadt.
- Zimmermann, J., 1999: Entwicklung von Verfahren zum Vergleich der Ergebnisse dreidimensionaler Modelle mit Messungen sekundärer Spurenstoffe – TFS-Jahresbericht 1998 LT1–C4, Deutscher Wetterdienst, Offenbach.

Anhang: Ergebnisse der Sensitivitätsexperimente

Tabelle 7-1: Kurzerklärung für die einzelnen Sensitivitätsfälle

Sensitivitätsfall	Erklärung
REF	Vergleichsfall mit den detailliertesten Emissionen
OANT	ohne anthropogene Emissionen
OBIO	ohne biogene Emissionen
BIO[0,5]	Verringerung der biogenen Emissionen um 50 %
BIO[1,5]	Erhöhung der biogenen Emissionen um 50 %
NM[2]N[1]	Variation des NMVOC/NO _x -Verhältnisses: Multiplikation der anthropogenen Emissionen mit einem festen Faktor NMVOC-> NM NO _x -> N
NM[1,5]N[0,75]	
NM[1]N[0,5]	
NM[1]N[2]	
NM[0,75]N[1,5]	
NM[0,5]N[1]	
NM[2]N[2]	
NM[0,5]N[0,5]	
OFUEH	ohne Fahnenüberhöhung
OLANU	Flächenquellen ohne Landnutzungsdaten
OLIN	OLANU + Linienquellen ohne Straßennetzkoordinaten
OPKT	OLIN + ohne Punktquellenkoordinaten
TPLUS	Emissionen eine Stunde später
TMINUS	Emissionen eine Stunde früher
TEINF	nur eine Zeitkurve pro Schadstoff
TRECHT	jeweils eine Rechteckzeitkurve pro Schadstoff
TSTEIL	kürzerer, steilerer Tagesgang
TFLACH	längerer, flacherer Tagesgang
TRAUSCH	Zeitkurve mit statistischem Rauschen
NMVOC94	nur ein VOC-Profil für alle Emissionsprozesse

Tabelle 7-2: Mittlere Ozonkonzentrationen: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	111,0	101,8	103,3	104,9	97,2	96,8	117,0	106,4	109,8
OANT	101,3	91,4	93,4	97,8	89,9	90,2	104,8	92,9	96,6
OBIO	106,9	97,7	100,2	100,1	93,8	95,1	113,7	101,6	105,2
BIO[0,5]	109,8	100,7	102,7	103,1	96,1	96,6	116,5	105,3	108,9
BIO[1,5]	111,3	102,1	102,9	105,9	97,7	96,6	116,7	106,4	109,3
NM[2]N[1]	112,1	102,9	103,9	105,9	98,0	97,2	118,4	107,7	110,6
NM[1,5]N[0,75]	110,8	101,2	102,3	104,9	96,8	96,3	116,6	105,5	108,3
NM[1]N[0,5]	108,8	98,9	100,2	103,4	95,3	94,9	114,1	102,5	105,4
NM[1]N[2]	108,2	101,2	104,2	102,4	96,2	96,7	114,1	106,2	111,6
NM[0,75]N[1,5]	109,9	101,9	104,2	103,9	97,0	97,1	116,0	106,7	111,2
NM[0,5]N[1]	110,3	101,2	103,0	104,3	96,7	96,6	116,2	105,7	109,3
NM[2]N[2]	110,3	103,0	105,2	103,9	97,5	97,3	116,7	108,6	113,1
NM[0,5]N[0,5]	108,4	98,6	100,0	103,1	95,0	94,8	113,8	102,2	105,2
OFUEH	109,0	99,5	101,2	103,2	94,8	94,8	114,8	104,2	107,6
OLANU	111,0	101,8	103,3	104,9	97,2	96,9	117,1	106,5	109,8
OLIN	111,3	102,1	103,7	105,1	97,4	97,2	117,5	106,8	110,1
OPKT	110,0	101,1	103,6	104,0	96,4	97,2	116,1	105,8	109,9
TPLUS	110,0	101,2	102,8	104,2	96,5	96,3	115,8	105,8	109,3
TMINUS	111,6	102,3	103,8	105,3	97,7	97,2	118,0	107,0	110,3
TEINF	110,6	101,7	103,3	104,6	97,1	96,7	116,6	106,4	109,8
TRECHT	110,6	101,8	103,3	104,7	97,1	96,6	116,6	106,5	109,9
TSTEIL	111,5	102,0	103,4	105,3	97,4	97,1	117,7	106,7	109,7
TFLACH	110,3	101,5	103,1	104,4	96,9	96,5	116,3	106,2	109,8
TRAUSCH	111,0	101,9	103,3	104,9	97,2	96,9	117,1	106,5	109,7
NMVOC94	111,0	101,9	103,4	104,9	97,2	96,9	117,1	106,5	109,8

Tabelle 7-3: Mittlere Ozonkonzentrationen: Auswertung für die Gesamtperiode sowie die Nacht- und die Tagesstunden [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

	Gesamtperiode			tagsüber			nachts		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	111,0	101,8	103,3	139,1	133,8	137,7	82,9	69,8	68,9
OANT	101,3	91,4	93,4	121,1	115,4	119,6	81,6	67,4	67,3
OBIO	106,9	97,7	100,2	131,5	124,8	128,4	82,4	70,6	71,9
BIO[0,5]	109,8	100,7	102,7	136,3	130,5	134,5	83,3	70,9	71,0
BIO[1,5]	111,3	102,1	102,9	140,8	135,8	139,4	81,8	68,3	66,5
NM[2]N[1]	112,1	102,9	103,9	140,7	135,5	138,6	83,5	70,2	69,1
NM[1,5]N[0,75]	110,8	101,2	102,3	137,6	132,2	135,4	84,0	70,1	69,1
NM[1]N[0,5]	108,8	98,9	100,2	133,5	128,0	131,5	84,0	69,8	68,9
NM[1]N[2]	108,2	101,2	104,2	140,3	135,8	141,7	76,2	66,6	66,7
NM[0,75]N[1,5]	109,9	101,9	104,2	140,2	135,3	140,4	79,7	68,4	68,0
NM[0,5]N[1]	110,3	101,2	103,0	138,1	132,9	137,1	82,5	69,6	68,8
NM[2]N[2]	110,3	103,0	105,2	143,3	138,6	143,4	77,4	67,4	67,1
NM[0,5]N[0,5]	108,4	98,6	100,0	133,0	127,5	131,2	83,8	69,6	68,9
OFUEH	109,0	99,5	101,2	138,4	133,2	137,3	79,6	65,7	65,1
OLANU	111,0	101,8	103,3	139,1	133,9	137,7	82,9	69,8	69,0
OLIN	111,3	102,1	103,7	139,4	134,1	138,1	83,1	70,1	69,3
OPKT	110,0	101,1	103,6	139,7	135,3	140,1	80,4	66,9	67,0
TPLUS	110,0	101,2	102,8	138,2	133,1	137,0	81,9	69,2	68,6
TMINUS	111,6	102,3	103,8	139,9	134,5	138,4	83,3	70,1	69,1
TEINF	110,6	101,7	103,3	138,9	133,9	137,7	82,3	69,6	68,8
TRECHT	110,6	101,8	103,3	139,0	133,9	137,7	82,3	69,6	68,9
TSTEIL	111,5	102,0	103,4	139,3	133,9	137,6	83,7	70,2	69,1
TFLACH	110,3	101,5	103,1	138,9	133,7	137,6	81,8	69,3	68,7
TRAUSCH	111,0	101,9	103,3	139,1	133,9	137,6	82,9	69,8	69,0
NMVOC94	111,0	101,9	103,4	139,2	134,0	137,8	82,9	69,8	68,9

Tabelle 7-4: Abweichungen der mittleren Ozonkonzentrationen vom Referenzfall: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [%]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	-8,7	-10,2	-9,6	-6,7	-7,5	-6,8	-10,4	-12,7	-12,0
OBIO	-3,6	-4,1	-3,0	-4,5	-3,5	-1,8	-2,8	-4,5	-4,2
BIO[0,5]	-1,0	-1,1	-0,5	-1,7	-1,2	-0,3	-0,5	-1,0	-0,8
BIO[1,5]	0,3	0,3	-0,4	1,0	0,5	-0,3	-0,3	0,0	-0,4
NM[2]N[1]	1,0	1,0	0,6	0,9	0,8	0,4	1,1	1,2	0,7
NM[1,5]N[0,75]	-0,2	-0,6	-1,0	0,0	-0,3	-0,6	-0,4	-0,9	-1,3
NM[1]N[0,5]	-2,0	-2,9	-3,0	-1,4	-2,0	-2,0	-2,5	-3,7	-3,9
NM[1]N[2]	-2,5	-0,6	0,9	-2,4	-1,0	-0,1	-2,5	-0,2	1,7
NM[0,75]N[1,5]	-0,9	0,1	0,8	-1,0	-0,2	0,3	-0,9	0,3	1,3
NM[0,5]N[1]	-0,6	-0,6	-0,3	-0,5	-0,5	-0,2	-0,7	-0,7	-0,4
NM[2]N[2]	-0,6	1,2	1,9	-0,9	0,3	0,5	-0,3	2,0	3,1
NM[0,5]N[0,5]	-2,3	-3,2	-3,2	-1,7	-2,3	-2,1	-2,8	-4,0	-4,1
OFUEH	-1,7	-2,3	-2,0	-1,6	-2,5	-2,1	-1,9	-2,1	-2,0
OLANU	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OLIN	0,3	0,3	0,4	0,2	0,3	0,4	0,4	0,3	0,3
OPKT	-0,8	-0,7	0,2	-0,8	-0,8	0,4	-0,8	-0,6	0,1
TPLUS	-0,8	-0,6	-0,5	-0,6	-0,7	-0,6	-1,1	-0,6	-0,4
TMINUS	0,6	0,5	0,4	0,4	0,5	0,4	0,8	0,6	0,5
TEINF	-0,3	-0,1	0,0	-0,2	-0,1	-0,1	-0,4	-0,1	0,0
TRECHT	-0,3	0,0	0,0	-0,2	-0,1	-0,2	-0,4	0,1	0,1
TSTEIL	0,5	0,2	0,1	0,4	0,2	0,2	0,5	0,2	0,0
TFLACH	-0,6	-0,3	-0,2	-0,5	-0,3	-0,3	-0,6	-0,2	0,0
TRAUSCH	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,1	0,0	0,0	-0,1
NMVOC94	0,1	0,1	0,1	0,0	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1

Tabelle 7-5: Abweichungen der mittleren Ozonkonzentrationen vom Referenzfall: Auswertung für die Gesamtepisode sowie die Nacht- und die Tagesstunden [%]

	Gesamtepisode			tagsüber			nachts		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	-8,7	-10,2	-9,6	-13,0	-13,8	-13,1	-1,5	-3,4	-2,4
OBIO	-3,6	-4,1	-3,0	-5,5	-6,8	-6,7	-0,6	1,1	4,3
BIO[0,5]	-1,0	-1,1	-0,5	-2,0	-2,5	-2,3	0,6	1,5	3,0
BIO[1,5]	0,3	0,3	-0,4	1,2	1,5	1,2	-1,2	-2,1	-3,5
NM[2]N[1]	1,0	1,0	0,6	1,2	1,3	0,7	0,8	0,6	0,3
NM[1,5]N[0,75]	-0,2	-0,6	-1,0	-1,1	-1,2	-1,6	1,3	0,5	0,3
NM[1]N[0,5]	-2,0	-2,9	-3,0	-4,0	-4,3	-4,5	1,4	-0,1	0,0
NM[1]N[2]	-2,5	-0,6	0,9	0,9	1,5	2,9	-8,1	-4,5	-3,3
NM[0,75]N[1,5]	-0,9	0,1	0,8	0,8	1,1	2,0	-3,8	-2,0	-1,4
NM[0,5]N[1]	-0,6	-0,6	-0,3	-0,7	-0,7	-0,4	-0,5	-0,4	-0,2
NM[2]N[2]	-0,6	1,2	1,9	3,0	3,6	4,2	-6,6	-3,4	-2,7
NM[0,5]N[0,5]	-2,3	-3,2	-3,2	-4,3	-4,7	-4,7	1,2	-0,2	-0,1
OFUEH	-1,7	-2,3	-2,0	-0,5	-0,4	-0,3	-3,9	-5,9	-5,5
OLANU	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OLIN	0,3	0,3	0,4	0,3	0,2	0,3	0,4	0,4	0,5
OPKT	-0,8	-0,7	0,2	0,5	1,1	1,8	-3,0	-4,1	-2,8
TPLUS	-0,8	-0,6	-0,5	-0,6	-0,6	-0,5	-1,2	-0,8	-0,5
TMINUS	0,6	0,5	0,4	0,6	0,5	0,5	0,6	0,5	0,3
TEINF	-0,3	-0,1	0,0	-0,1	0,1	0,0	-0,7	-0,3	-0,1
TRECHT	-0,3	0,0	0,0	0,0	0,1	0,0	-0,7	-0,2	-0,1
TSTEIL	0,5	0,2	0,1	0,1	0,0	0,0	1,0	0,5	0,3
TFLACH	-0,6	-0,3	-0,2	-0,1	-0,1	0,0	-1,3	-0,7	-0,4
TRAUSCH	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,1	0,1
NMVOC94	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,0	0,0	0,0

Tabelle 7-6: Maximale Ozonkonzentrationen innerhalb einer Stunde in einer Gitterzelle: Auswertung für die Gesamtepisode und die einzelnen Tage [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

	Gesamtepisode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	268,8	247,1	236,4	215,6	205,4	188,5	268,8	247,1	236,4
OANT	203,9	189,1	174,5	193,1	189,1	167,2	203,9	168,2	174,5
OBIO	204,2	192,4	189,5	197,2	192,4	180,4	204,2	182,4	189,5
BIO[0,5]	245,1	224,0	212,6	207,2	197,3	183,5	245,1	224,0	212,6
BIO[1,5]	275,5	256,1	255,5	222,5	217,4	192,2	275,5	256,1	255,5
NM[2]N[1]	271,8	253,6	242,6	223,5	214,6	189,3	271,8	253,6	242,6
NM[1,5]N[0,75]	249,1	234,6	228,3	211,1	204,4	185,1	249,1	234,6	228,3
NM[1]N[0,5]	221,4	211,8	208,4	195,8	192,6	179,0	221,4	211,8	208,4
NM[1]N[2]	301,3	264,4	258,6	217,3	214,5	199,2	301,3	264,4	258,6
NM[0,75]N[1,5]	292,5	258,9	251,3	217,8	207,6	193,8	292,5	258,9	251,3
NM[0,5]N[1]	266,8	242,8	234,2	210,8	200,0	187,8	266,8	242,8	234,2
NM[2]N[2]	313,7	281,9	266,3	232,5	222,6	201,6	313,7	281,9	266,3
NM[0,5]N[0,5]	221,1	210,7	206,7	193,2	190,2	178,7	221,1	210,7	206,7
OFUEH	279,7	241,7	260,7	213,9	207,0	193,8	279,7	241,7	260,7
OLANU	267,1	245,9	238,5	216,2	205,5	188,4	267,1	245,9	238,5
OLIN	270,9	258,7	242,6	217,6	206,0	189,1	270,9	258,7	242,6
OPKT	281,2	271,9	259,5	216,7	209,3	195,5	281,2	271,9	259,5
TPLUS	263,7	247,3	236,5	212,2	202,8	187,1	263,7	247,3	236,5
TMINUS	272,5	246,8	237,9	219,2	207,2	189,6	272,5	246,8	237,9
TEINF	269,5	251,5	241,4	214,6	205,6	187,8	269,5	251,5	241,4
TRECHT	268,0	250,7	242,1	216,5	204,0	186,9	268,0	250,7	242,1
TSTEIL	269,3	250,5	238,9	215,1	204,6	189,6	269,3	250,5	238,9
TFLACH	267,4	244,3	236,8	216,5	205,7	187,0	267,4	244,3	236,8
TRAUSCH	267,4	245,9	234,6	215,4	205,3	188,7	267,4	245,9	234,6
NMVOC94	268,7	248,6	237,5	215,2	205,7	188,4	268,7	248,6	237,5

Tabelle 7-7: Variationskoeffizienten der mittleren Ozonkonzentrationen: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [%]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	36,0	41,0	40,6	38,5	41,4	37,1	32,9	40,1	42,2
OANT	32,5	36,5	34,6	34,5	36,6	30,6	30,3	36,2	37,5
OBIO	35,3	38,4	36,2	38,2	39,4	33,6	31,5	37,0	37,5
BIO[0,5]	35,2	39,4	38,3	38,1	40,3	35,4	31,5	38,1	39,5
BIO[1,5]	37,1	42,7	43,0	39,2	42,5	38,9	34,6	42,4	45,1
NM[2]N[1]	36,2	41,4	40,9	38,8	41,9	37,4	33,1	40,4	42,5
NM[1,5]N[0,75]	34,8	40,1	39,5	37,5	40,7	36,1	31,6	39,1	41,2
NM[1]N[0,5]	33,6	38,7	38,0	36,3	39,4	34,6	30,4	37,8	39,9
NM[1]N[2]	41,5	44,8	44,5	42,7	43,9	40,2	39,8	44,9	46,3
NM[0,75]N[1,5]	38,6	42,8	42,6	40,6	42,6	38,8	36,1	42,4	44,3
NM[0,5]N[1]	35,9	40,8	40,5	38,4	41,1	37,0	32,8	39,9	42,1
NM[2]N[2]	41,7	45,3	44,9	43,0	44,5	40,5	39,8	45,2	46,6
NM[0,5]N[0,5]	33,5	38,6	37,9	36,3	39,2	34,5	30,3	37,6	39,8
OFUEH	38,4	44,8	44,5	40,3	44,1	39,5	35,9	44,8	47,2
OLANU	35,9	41,0	40,6	38,5	41,4	37,1	32,8	40,1	42,2
OLIN	35,9	40,9	40,5	38,4	41,3	37,0	32,7	40,0	42,0
OPKT	37,9	44,0	43,2	40,0	43,6	38,7	35,3	43,9	45,5
TPLUS	36,1	41,0	40,6	38,3	41,2	36,9	33,4	40,4	42,3
TMINUS	36,3	41,1	40,8	39,1	41,7	37,4	32,8	40,1	42,3
TEINF	36,2	41,1	40,8	38,6	41,5	37,2	33,2	40,3	42,4
TRECHT	36,4	41,2	40,9	38,7	41,4	37,1	33,5	40,4	42,6
TSTEIL	35,6	40,8	40,5	38,3	41,3	37,2	32,4	39,9	42,0
TFLACH	36,5	41,2	40,8	38,9	41,5	37,1	33,6	40,4	42,5
TRAUSCH	36,0	41,0	40,6	38,5	41,3	37,1	33,0	40,1	42,2
NMVOC94	36,0	41,0	40,7	38,5	41,4	37,2	32,9	40,1	42,2

Tabelle 7-8: AOT60-Werte, gemittelt über alle Gitterzellen: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [ppbV·h]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	300,6	248,5	268,1	124,8	101,3	79,7	175,8	147,2	188,4
OANT	133,1	94,5	100,7	61,8	46,9	23,9	71,3	47,6	76,8
OBIO	237,4	174,5	185,5	94,6	74,5	55,9	142,9	100,0	129,6
BIO[0,5]	275,6	219,5	236,9	111,9	90,1	70,2	163,8	129,4	166,8
BIO[1,5]	318,2	267,9	287,3	135,3	109,5	86,1	183,0	158,4	201,2
NM[2]N[1]	319,7	266,0	278,5	132,4	108,2	82,6	187,2	157,8	195,9
NM[1,5]N[0,75]	282,4	230,3	243,2	118,8	96,1	71,7	163,5	134,2	171,5
NM[1]N[0,5]	238,3	189,6	202,2	102,5	81,9	58,3	135,8	107,7	143,8
NM[1]N[2]	327,6	281,9	321,3	132,2	108,5	93,6	195,4	173,5	227,7
NM[0,75]N[1,5]	318,3	269,6	301,3	130,3	106,6	89,3	188,0	163,1	212,1
NM[0,5]N[1]	289,7	238,7	262,3	120,6	97,6	78,0	169,1	141,1	184,3
NM[2]N[2]	360,5	311,5	340,0	144,1	119,0	98,5	216,4	192,4	241,4
NM[0,5]N[0,5]	233,2	184,5	199,2	100,2	79,7	57,5	133,0	104,8	141,7
OFUEH	296,1	249,7	271,2	121,5	97,1	75,4	174,5	152,6	195,8
OLANU	300,7	248,7	268,4	124,8	101,4	79,8	175,9	147,2	188,6
OLIN	304,2	250,9	270,8	125,9	102,0	80,4	178,3	148,9	190,4
OPKT	307,5	266,9	293,7	125,5	105,2	86,8	182,0	161,6	206,9
TPLUS	289,3	241,0	261,3	119,9	97,1	76,2	169,4	143,9	185,1
TMINUS	312,2	256,1	275,3	129,6	105,0	82,3	182,6	151,1	193,0
TEINF	297,9	249,3	268,9	123,7	101,8	79,4	174,2	147,5	189,5
TRECHT	299,3	248,8	268,4	123,7	100,4	77,9	175,6	148,4	190,5
TSTEIL	303,8	249,7	268,1	126,0	102,3	81,2	177,8	147,4	186,9
TFLACH	297,6	247,2	267,3	123,5	99,9	77,4	174,1	147,3	189,9
TRAUSCH	301,2	248,8	267,5	124,7	101,4	79,9	176,6	147,5	187,6
NMVOC94	302,0	250,0	269,2	125,2	102,0	80,2	176,8	148,0	189,1

Tabelle 7-9: Abweichungen der AOT60-Werte vom Referenzfall: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [%]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	-55,7	-62,0	-62,4	-50,5	-53,7	-70,0	-59,4	-67,7	-59,3
OBIO	-21,0	-29,8	-30,8	-24,2	-26,5	-29,8	-18,7	-32,0	-31,2
BIO[0,5]	-8,3	-11,7	-11,6	-10,4	-11,1	-12,0	-6,9	-12,1	-11,5
BIO[1,5]	5,9	7,8	7,2	8,4	8,0	8,1	4,1	7,6	6,7
NM[2]N[1]	6,3	7,0	3,9	6,1	6,8	3,7	6,5	7,2	3,9
NM[1,5]N[0,75]	-6,1	-7,3	-9,3	-4,8	-5,2	-10,0	-7,0	-8,8	-9,0
NM[1]N[0,5]	-20,7	-23,7	-24,6	-17,8	-19,2	-26,8	-22,8	-26,8	-23,7
NM[1]N[2]	9,0	13,4	19,8	6,0	7,0	17,5	11,1	17,9	20,8
NM[0,75]N[1,5]	5,9	8,5	12,4	4,4	5,2	12,0	6,9	10,8	12,5
NM[0,5]N[1]	-3,6	-3,9	-2,2	-3,3	-3,7	-2,1	-3,8	-4,1	-2,2
NM[2]N[2]	19,9	25,3	26,8	15,5	17,5	23,7	23,0	30,8	28,1
NM[0,5]N[0,5]	-22,4	-25,7	-25,7	-19,7	-21,4	-27,8	-24,4	-28,8	-24,8
OFUEH	-1,5	0,5	1,1	-2,6	-4,2	-5,3	-0,7	3,7	3,9
OLANU	0,0	0,1	0,1	0,0	0,1	0,1	0,0	0,0	0,1
OLIN	1,2	1,0	1,0	0,9	0,7	0,9	1,4	1,2	1,1
OPKT	2,3	7,4	9,5	0,6	3,8	8,9	3,5	9,8	9,8
TPLUS	-3,8	-3,0	-2,5	-3,9	-4,2	-4,4	-3,6	-2,2	-1,8
TMINUS	3,8	3,0	2,7	3,8	3,6	3,3	3,8	2,7	2,4
TEINF	-0,9	0,3	0,3	-0,9	0,5	-0,4	-0,9	0,2	0,6
TRECHT	-0,4	0,1	0,1	-0,8	-0,9	-2,2	-0,1	0,8	1,1
TSTEIL	1,1	0,5	0,0	1,0	1,0	1,9	1,1	0,1	-0,8
TFLACH	-1,0	-0,5	-0,3	-1,0	-1,4	-2,9	-1,0	0,1	0,8
TRAUSCH	0,2	0,1	-0,2	-0,1	0,0	0,3	0,4	0,2	-0,5
NMVOC94	0,5	0,6	0,4	0,4	0,6	0,6	0,5	0,6	0,3

Tabelle 7-10: Überschreitungshäufigkeiten von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [%]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	45,9	36,1	36,6	40,2	29,5	27,6	51,5	42,8	45,5
OANT	33,6	23,5	25,7	31,0	19,5	16,9	36,3	27,5	34,6
OBIO	42,0	31,5	32,5	36,0	25,5	24,3	48,0	37,4	40,7
BIO[0,5]	44,5	34,8	35,4	38,4	28,2	26,5	50,5	41,3	44,4
BIO[1,5]	46,5	36,8	36,9	41,4	30,4	28,1	51,7	43,3	45,8
NM[2]N[1]	46,8	37,0	37,0	41,1	30,1	27,9	52,4	43,8	46,1
NM[1,5]N[0,75]	45,6	35,1	35,5	40,1	28,5	26,8	51,1	41,7	44,3
NM[1]N[0,5]	43,8	32,6	33,5	38,6	26,4	25,2	49,0	38,7	41,9
NM[1]N[2]	44,0	36,8	38,0	38,8	30,4	28,9	49,2	43,1	47,1
NM[0,75]N[1,5]	45,1	36,9	37,6	39,7	30,5	28,4	50,6	43,4	46,8
NM[0,5]N[1]	45,4	35,7	36,3	39,8	29,2	27,4	50,9	42,2	45,2
NM[2]N[2]	45,3	38,0	38,7	39,9	31,3	29,3	50,8	44,6	48,0
NM[0,5]N[0,5]	43,5	32,3	33,4	38,3	26,2	25,0	48,7	38,3	41,7
OFUEH	45,3	36,0	36,4	39,6	29,0	27,0	50,9	43,0	45,8
OLANU	45,9	36,2	36,6	40,3	29,5	27,6	51,5	42,8	45,6
OLIN	46,2	36,5	37,0	40,5	29,8	28,0	51,8	43,1	45,9
OPKT	45,9	37,0	38,1	40,1	30,2	29,5	51,6	43,8	46,6
TPLUS	44,9	35,6	36,2	39,4	28,8	27,0	50,4	42,3	45,4
TMINUS	46,7	36,7	37,1	41,0	30,1	28,2	52,4	43,2	45,9
TEINF	45,6	36,1	36,5	40,0	29,4	27,4	51,1	42,7	45,6
TRECHT	45,9	36,2	36,6	40,3	29,4	27,4	51,4	43,0	45,8
TSTEIL	46,2	36,3	36,6	40,5	29,7	27,8	52,0	42,9	45,4
TFLACH	45,4	36,0	36,5	39,9	29,3	27,3	51,0	42,7	45,7
TRAUSCH	45,9	36,2	36,6	40,3	29,5	27,7	51,5	42,8	45,5
NMVOC94	45,9	36,2	36,6	40,3	29,6	27,6	51,5	42,9	45,6

Tabelle 7-11: Abweichungen der Überschreitungshäufigkeiten vom Referenzfall: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [%]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	-26,7	-35,0	-29,6	-23,0	-33,9	-38,7	-29,5	-35,8	-24,1
OBIO	-8,4	-12,9	-11,0	-10,5	-13,6	-11,8	-6,8	-12,5	-10,6
BIO[0,5]	-3,0	-3,7	-3,1	-4,4	-4,3	-4,0	-1,9	-3,4	-2,5
BIO[1,5]	1,5	1,9	1,1	2,9	2,9	2,0	0,4	1,3	0,5
NM[2]N[1]	2,0	2,3	1,2	2,1	2,2	1,1	1,9	2,3	1,2
NM[1,5]N[0,75]	-0,5	-2,9	-2,8	-0,4	-3,5	-2,9	-0,7	-2,5	-2,8
NM[1]N[0,5]	-4,5	-9,9	-8,3	-4,1	-10,5	-8,8	-4,8	-9,5	-7,9
NM[1]N[2]	-4,1	1,7	3,9	-3,6	3,1	4,8	-4,5	0,8	3,4
NM[0,75]N[1,5]	-1,6	2,2	2,9	-1,4	3,3	3,1	-1,7	1,3	2,7
NM[0,5]N[1]	-1,1	-1,2	-0,7	-1,1	-1,1	-0,7	-1,1	-1,3	-0,7
NM[2]N[2]	-1,1	5,1	5,8	-0,8	6,1	6,4	-1,3	4,3	5,4
NM[0,5]N[0,5]	-5,1	-10,7	-8,8	-4,9	-11,2	-9,3	-5,3	-10,4	-8,4
OFUEH	-1,3	-0,5	-0,4	-1,5	-1,7	-1,9	-1,1	0,4	0,6
OLANU	0,1	0,1	0,1	0,1	0,2	0,2	0,0	0,0	0,1
OLIN	0,7	0,9	1,1	0,7	1,1	1,5	0,7	0,7	0,8
OPKT	0,1	2,3	4,1	-0,2	2,4	7,0	0,3	2,3	2,4
TPLUS	-2,0	-1,5	-1,0	-2,0	-2,2	-2,0	-2,0	-1,1	-0,4
TMINUS	1,9	1,5	1,4	1,9	2,2	2,3	1,9	1,1	0,8
TEINF	-0,6	-0,1	-0,2	-0,5	-0,1	-0,6	-0,7	-0,2	0,1
TRECHT	0,0	0,1	0,1	0,2	-0,4	-0,8	-0,1	0,5	0,7
TSTEIL	0,9	0,5	0,1	0,7	0,7	0,7	1,0	0,3	-0,3
TFLACH	-1,0	-0,4	-0,2	-0,9	-0,7	-1,0	-1,0	-0,2	0,3
TRAUSCH	0,1	0,1	0,0	0,1	0,2	0,3	0,1	0,0	-0,2
NMVOC94	0,1	0,2	0,1	0,2	0,2	0,2	0,1	0,2	0,1

Tabelle 7-12: 0,95-Quantile der Konzentrationsdifferenzen: Auswertung für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	40,6	39,1	35,8	33,3	32,3	30,9	46,9	46,5	40,2
OBIO	24,1	24,8	26,0	21,8	16,8	15,9	26,9	32,6	34,4
BIO[0,5]	10,8	10,8	12,0	9,9	7,6	7,6	12,0	13,7	15,0
BIO[1,5]	9,3	9,2	10,2	8,4	6,9	7,3	10,1	11,2	12,0
NM[2]N[1]	4,9	5,0	2,6	4,7	4,5	1,6	5,3	5,4	3,1
NM[1,5]N[0,75]	7,9	6,2	5,5	6,2	5,3	4,7	9,0	7,0	6,0
NM[1]N[0,5]	15,9	13,6	12,9	12,8	11,8	11,0	18,1	15,9	14,3
NM[1]N[2]	26,6	19,1	16,0	21,1	16,0	13,8	30,4	20,8	17,3
NM[0,75]N[1,5]	14,4	10,5	8,8	11,3	8,8	7,7	16,4	11,6	9,5
NM[0,5]N[1]	2,9	2,9	1,5	2,6	2,5	0,9	3,2	3,2	1,8
NM[2]N[2]	24,4	18,0	17,0	18,6	14,8	13,8	28,1	20,3	18,9
NM[0,5]N[0,5]	16,0	14,1	13,2	12,9	12,1	11,2	18,2	16,4	14,7
OFUEH	14,2	19,5	18,7	10,5	15,0	13,9	17,8	22,2	22,3
OLANU	0,8	0,4	0,4	0,7	0,4	0,3	0,9	0,4	0,5
OLIN	3,7	2,9	3,4	3,2	2,8	3,0	4,2	2,9	3,9
OPKT	12,4	16,2	14,3	9,6	12,0	11,2	15,1	18,9	16,7
TPLUS	4,7	2,9	2,7	4,3	2,8	2,4	5,0	3,1	3,0
TMINUS	4,5	2,7	2,5	4,3	2,5	2,0	4,6	2,9	3,0
TEINF	2,7	1,9	2,2	2,3	1,6	1,8	3,1	2,1	2,4
TRECHT	4,6	3,1	3,1	3,5	2,4	2,4	5,5	3,6	3,6
TSTEIL	2,6	1,9	1,9	2,3	1,5	1,5	2,9	2,2	2,3
TFLACH	3,0	2,0	1,9	2,5	1,6	1,6	3,4	2,4	2,2
TRAUSCH	0,8	0,9	1,3	0,7	0,9	1,1	0,9	0,9	1,6
NMVOC94	0,5	0,5	0,4	0,4	0,5	0,3	0,5	0,5	0,4

Tabelle 7-13: 0,95-Quantile der Konzentrationsdifferenzen: Auswertung für die Gesamtperiode sowie die Nacht- und die Tagesstunden [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

	Gesamtperiode			tagsüber			nachts		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	40,6	39,1	35,8	45,5	46,1	40,7	30,3	24,5	23,1
OBIO	24,1	24,8	26,0	24,5	28,9	25,5	23,8	21,2	26,5
BIO[0,5]	10,8	10,8	12,0	9,0	10,8	9,4	12,6	10,8	13,1
BIO[1,5]	9,3	9,2	10,2	6,2	7,6	7,1	11,6	10,1	11,5
NM[2]N[1]	4,9	5,0	2,6	5,9	6,6	3,4	3,9	3,0	1,8
NM[1,5]N[0,75]	7,9	6,2	5,5	7,7	7,2	6,0	8,2	5,1	4,0
NM[1]N[0,5]	15,9	13,6	12,9	16,9	15,8	14,3	14,1	9,8	8,8
NM[1]N[2]	26,6	19,1	16,0	22,6	20,2	17,3	29,7	17,8	13,6
NM[0,75]N[1,5]	14,4	10,5	8,8	12,7	11,6	9,6	15,8	9,4	7,1
NM[0,5]N[1]	2,9	2,9	1,5	3,5	3,9	2,0	2,2	1,8	1,0
NM[2]N[2]	24,4	18,0	17,0	22,7	19,7	18,8	26,5	15,4	13,1
NM[0,5]N[0,5]	16,0	14,1	13,2	17,1	16,4	14,7	13,5	9,7	8,9
OFUEH	14,2	19,5	18,7	7,9	11,7	11,8	20,0	26,1	26,1
OLANU	0,8	0,4	0,4	0,8	0,5	0,4	0,7	0,3	0,4
OLIN	3,7	2,9	3,4	3,4	3,2	3,6	4,1	2,5	3,2
OPKT	12,4	16,2	14,3	8,7	13,2	13,2	16,9	19,3	15,6
TPLUS	4,7	2,9	2,7	2,8	2,7	2,8	5,7	3,2	2,6
TMINUS	4,5	2,7	2,5	2,7	2,4	2,5	5,7	3,0	2,7
TEINF	2,7	1,9	2,2	2,0	1,8	2,0	3,3	1,9	2,4
TRECHT	4,6	3,1	3,1	2,4	2,5	2,5	5,9	3,5	3,9
TSTEIL	2,6	1,9	1,9	1,6	1,7	2,0	3,4	2,0	1,8
TFLACH	3,0	2,0	1,9	1,6	1,7	1,8	3,9	2,3	1,9
TRAUSCH	0,8	0,9	1,3	0,7	1,1	1,8	0,9	0,7	0,8
NMVOC94	0,5	0,5	0,4	0,6	0,7	0,5	0,4	0,3	0,3

Tabelle 7-14: Auswertung auf städtischem Gebiet: Abweichungen vom Referenzfall der Konzentrationen, AOT60-Werte und Überschreitungshäufigkeiten [%]

städtische Gebiete	Konzentrationen			AOT60-Werte			Überschreitungshäufigkeiten		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	1,8	-7,3	-7,2	-31,5	-52,6	-54,4	7,4	-22,6	-21,9
OBIO	-4,7	-4,9	-3,2	-23,2	-33,1	-33,2	-8,5	-12,7	-10,3
BIO[0,5]	-1,7	-1,5	-0,5	-9,9	-13,6	-12,0	-3,9	-3,7	-2,9
BIO[1,5]	1,3	0,7	-0,4	8,2	9,9	7,3	2,6	3,1	1,6
NM[2]N[1]	2,6	1,3	0,6	14,3	8,0	3,7	3,4	2,2	1,3
NM[1,5]N[0,75]	4,8	0,4	-0,3	13,6	-2,5	-7,5	8,8	0,4	-1,4
NM[1]N[0,5]	6,1	-1,0	-1,7	8,4	-15,5	-20,6	11,1	-3,9	-5,5
NM[1]N[2]	-17,3	-3,9	-1,4	-37,1	1,1	15,5	-28,1	-4,3	0,6
NM[0,75]N[1,5]	-9,4	-1,8	-0,3	-23,7	1,1	9,8	-14,9	-2,6	1,1
NM[0,5]N[1]	-1,4	-0,7	-0,3	-7,6	-4,3	-2,1	-1,5	-1,2	-0,7
NM[2]N[2]	-14,4	-1,9	-0,3	-24,8	12,2	21,9	-21,9	-0,7	2,2
NM[0,5]N[0,5]	5,2	-1,4	-1,9	3,2	-18,1	-21,7	9,9	-4,7	-6,0
OFUEH	-10,0	-6,9	-3,7	-15,6	-4,7	0,4	-9,1	-6,3	-2,7
OLANU	0,3	0,1	0,1	-0,2	0,2	0,2	0,8	0,2	0,2
OLIN	1,5	0,4	0,5	2,7	0,7	0,2	2,4	0,9	1,0
OPKT	-4,9	-1,9	-0,1	-3,1	7,8	8,0	-1,6	0,5	0,7
TPLUS	-0,5	-0,6	-0,5	-2,4	-2,6	-2,3	-2,0	-1,3	-1,2
TMINUS	0,1	0,5	0,4	3,0	2,9	2,8	3,8	1,4	1,4
TEINF	-1,6	-0,3	-0,6	-3,9	-0,2	-0,9	-2,2	-0,8	-1,3
TRECHT	-1,6	-0,3	-0,5	-1,8	-0,2	-0,8	-1,2	-0,3	-0,2
TSTEIL	-1,5	-0,4	-0,3	-1,0	-0,5	-0,3	-1,4	-0,3	-0,3
TFLACH	1,3	0,4	0,2	1,4	0,6	0,2	1,6	0,4	0,1
TRAUSCH	0,1	0,0	0,0	1,1	0,1	-0,4	0,4	-0,1	0,0
NMVOC94	0,3	0,1	0,1	2,0	0,7	0,5	0,1	0,3	0,2

Tabelle 7-15: Auswertung auf städtischem Gebiet: 0,95-Quantile der Konzentrationsdifferenzen für die Gesamtperiode und die einzelnen Tage [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

städtische Gebiete	Gesamtperiode			25.07.1994			26.07.1994		
	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3	Nest1	Nest2	Nest3
REF	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
OANT	48,4	37,1	31,5	38,9	27,4	23,4	57,1	44,2	36,4
OBIO	26,7	29,5	25,3	19,2	17,1	15,2	31,9	36,8	31,1
BIO[0,5]	10,7	12,9	11,7	9,1	7,9	7,6	12,6	16,4	14,3
BIO[1,5]	9,8	10,6	10,4	8,9	7,4	7,3	11,0	13,5	12,3
NM[2]N[1]	9,8	6,7	2,5	7,0	4,7	1,7	12,9	8,5	3,2
NM[1,5]N[0,75]	17,8	6,6	5,6	14,7	5,6	4,7	20,5	8,0	6,2
NM[1]N[0,5]	28,6	12,6	12,3	23,9	10,7	9,6	31,5	14,5	13,7
NM[1]N[2]	48,0	22,5	18,3	41,3	20,0	15,8	53,4	25,5	20,7
NM[0,75]N[1,5]	28,3	12,3	9,7	23,1	10,5	8,2	31,5	14,4	11,0
NM[0,5]N[1]	5,1	3,8	1,4	3,6	2,6	1,0	7,0	5,0	1,8
NM[2]N[2]	43,9	18,8	18,2	38,3	17,3	15,2	46,2	20,1	20,2
NM[0,5]N[0,5]	26,3	13,0	12,5	22,0	10,4	9,6	29,1	14,5	14,1
OFUEH	44,6	40,7	27,8	33,0	38,4	22,9	59,9	41,9	31,4
OLANU	1,6	0,7	0,7	1,3	0,6	0,5	2,0	0,8	0,8
OLIN	7,0	3,5	4,4	5,6	2,7	3,2	7,6	4,2	5,5
OPKT	36,3	23,6	16,0	26,1	17,2	11,8	47,5	26,2	19,2
TPLUS	10,2	3,8	3,6	10,2	3,3	2,8	10,3	4,2	4,3
TMINUS	9,9	3,5	3,5	9,7	3,1	2,7	10,2	3,8	4,0
TEINF	8,1	3,1	4,6	6,6	2,6	4,1	9,5	3,6	5,2
TRECHT	12,7	4,5	5,5	10,4	3,8	4,8	16,1	5,4	6,4
TSTEIL	7,2	2,5	2,5	6,4	2,0	2,1	8,2	2,9	2,8
TFLACH	6,4	2,4	2,4	6,3	1,9	2,0	6,7	2,9	2,8
TRAUSCH	2,4	1,4	1,8	1,8	1,2	1,4	2,6	1,6	2,0
NMVOC94	1,6	0,7	0,5	1,2	0,6	0,4	2,2	0,8	0,5

