

Methoden und Modelle zur multiskalig hoch aufgelösten Bestimmung von luftverunreinigenden Emissionen in Europa

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

von
Uwe Schwarz
aus Göppingen

Hauptberichter: Prof. Dr.–Ing. A. Voß

Mitberichter: Prof. Dr. A. Ebel

Tag der mündlichen Prüfung: 22. Juni 2001

Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung

Universität Stuttgart

2002

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	11
2	Grundlagen, thematische Eingrenzung und Zielsetzung der Arbeit	13
2.1	Begriffsdefinitionen	13
2.2	Wofür werden Emissionsdaten benötigt ?	16
2.2.1	Beeinträchtigung der Umwelt durch Spurengase in der Atmosphäre	17
2.2.2	Bedarf an Emissionsdaten	20
2.2.3	Messung oder Modell ?	22
2.2.4	Anforderungen an Emissionsdatenbanken	23
2.3	Bisherige Arbeiten	25
2.4	Defizite	29
2.5	Ziel der Arbeit	32
3	Emissionsquellen - Jahresdatenbasis	35
3.1	Welche Emissionsquellen gibt es ?	35
3.2	Erstellung einer gesamteuropäischen Datenbasis	36
3.2.1	Methode Regressionsanalyse	36
3.2.2	Auswahl der Einflußparameter	39
3.2.3	Ergänzung von Quellen	45
3.2.4	VOC-Untergliederung	47
3.3	Aktualisierung der gesamteuropäischen Datenbasis	49
3.4	Qualitätskonzept	50
3.4.1	Genauigkeit	50
3.4.2	Präzision	52
3.4.3	Vollständigkeit	54

3.4.4	Repräsentativität	55
3.4.5	Vergleichbarkeit	56
4	Räumliche Verteilung der Emissionen	57
4.1	Untergliederung von Quellen nach ihrer räumlichen Struktur	57
4.1.1	Punktquellen	58
4.1.2	Linienquellen	58
4.1.3	Flächenquellen	61
5	Zeitliche Verteilung der Emissionen	65
5.1	Methode der zeitlichen Auflösung	65
5.1.1	Sommerzeit – Winterzeit	67
5.1.2	Feiertage	71
5.1.3	Zeitzonen	75
6	Ergebnisse - multiskalig hoch aufgelöste Emissionen	77
6.1	Ergebnis der räumlichen Vervollständigung europäischer Emissionsdaten	77
6.2	Ergebnis der Untergliederung von VOC-Emissionen	81
6.3	Ergebnis der Aktualisierung von Emissionsdaten	84
6.4	Ergebnis des Qualitätskonzeptes	91
6.5	Ergebnis der räumlichen Disaggregation von Emissionen	97
6.6	Ergebnis der zeitlichen Disaggregation von Emissionen	101
7	Exemplarische Anwendung: Photooxidantienbildung durch Kerosinmissionen	105
7.1	Was ist ein Kerosinablaß ?	106
7.2	Modellbeschreibung	108
7.2.1	Chemische und physikalische Eigenschaften von Kerosin	108
7.2.2	Grundschemata der atmosphärischen Photochemie	109
7.2.3	Kerosineintrag in die Mischungsschicht	111
7.2.4	Hintergrundemissionen	119
7.2.5	Chemie-Transport-Modell (CTM)	120
7.3	Ergebnisse	122
7.3.1	Ereignis 1 – Ablaß zur Mittagszeit	124
7.3.2	Ereignis 2 – Ablaß in den Morgenstunden	126

7.3.3	Schlußfolgerungen	127
8	Zusammenfassung und Ausblick	129
9	Abstract	135
	Literaturverzeichnis	139
	Anhang	147

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Bedeutung
APIS	Air Pollution Information System
AOTXX	Accumulated Ozon Threshold above XX ppb
CLRTAP	Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution – UNECE Konvention (1979)
CORINAIR	CORe INventory AIR
CORINE	CoORDination - INformation - Environment, europäisches Programm zur Erhebung von umweltrelevanten Daten
CTM	Chemie-Transport-Modell
ECE	Economic Commission for Europe
EEA	European Environment Agency - Europäische Umweltbehörde (Kopenhagen)
EMEP	European Monitoring and Evaluation Program - Long Range Transmission of Air Pollutants in Europe
EPA	Environmental Protection Agency, US-amerikanische Umweltbehörde
ETC/AE	European Topic Centre on Air Emissions
EU	Europäische Union
EUROSTAT	Statistische Behörde der Europäischen Union
EUROTRAC	Europäisches Forschungsprojekt zum Transport und Transformation von umweltrelevanten Spurengasen in der Troposphäre über Europa: 2. Phase
FCCC	Framework Climate Change Convention
FCKW	Fluor-Chlor-Kohlenwasserstoffe
GEIA	Global Emissions Inventory Activity
GENEMIS	GENERation of EMISsiondata for episodes
GIS	Geographisches Informationssystem

Abkürzung	Bedeutung
GMT	Greenwich Mean Time
IGAC	International Global Atmospheric Chemistry
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
LOOP	Limitation of Oxidant Production, ein EUROTRAC Unterproject
LOTOS	Long Term Ozone Simulation
LTO	Landing- and Taking Off
MAP	Major Air Pollutants, OECD Projekt zur Erhebung von Emissionsdaten
MEZ	Mitteleuropäische Zeit
Mtoe	Millionen Tonnen Öläquivalent
NATO	North Atlantic Treaty Organization
NMVOC	Non-methane volatile organic compounds - flüchtige organische Verbindungen ohne Methan
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
NUTS	[franz.] Nomenclature des Units Territoriales de Statistique
OECD	Organisation for Economic Cooperation and Development
OEZ	Osteuropäische Zeit
OZIPR	Ozone Isopleth Plotting Program for Research
PAN	Peroxyacetylnitrat
POCP	Photochemical Ozone Creation Potential
POP	Persistent Organic Pollutants - chemisch stabile organische Luftbeimengungen
QA/QC	Quality Assurance / Quality Control
RACM	Regional Atmospheric Chemistry Mechanism
RADM	Regional Acid Deposition Mechanism
SAPRC	Statewide Air Pollution Research Center (Universität Californien)
SNAP	Selected Nomenclature for Air Pollution - Untergliederung der CORINAIR-Emissionsdatenbank in Quellgruppen
TNO	Toegepast Natuurwetenschappelijk Onderzoek, holländisches Forschungsinstitut für angewandte Wissenschaft
TRACT	Transport of Air Pollutants over Complex Terrain

Abkürzung	Bedeutung
UN	United Nations
UN/ECE	United Nations Economic Commission for Europe
UTC	Universal Coordinated Time (GMT ohne Sommerzeitumstellung)
VOC	volatile organic compounds - flüchtige organische Verbindungen
WEZ	Westeuropäische Zeit = GMT
WHO	World Health Organisation – Weltgesundheitsorganisation
etc.	et cetera
i.d.R.	in der Regel
kt	Kilotonne
o.g.	oben genannt
ppb	parts per billion - Teilchenkonzentration von eins zu einer Milliarde
ppm	parts per million - Teilchenkonzentration von eins zu einer Million
toe	Tonnen Öläquivalent
u.g.	unten genannt

Indizes

Index	Bedeutung
l	Land
s	Schadstoff
j	Jahr
q	Quellgruppe
p	NMVOG-Stoffgruppe nach (Middleton et al., 1990)
E	Emission
\hat{E}	geschätzte Emission
P	Parameter bzw. Regressor der Regressionsanalyse

1 Einleitung

Spurengase, die durch Menschen oder natürliche Prozesse in die Atmosphäre freigesetzt werden, sind die Ursache für viele Umweltprobleme der Gegenwart. Dabei ist trotz der Freisetzung der Schadstoffe in die Luft nicht nur das Ökosystem Atmosphäre betroffen. Ebenso werden Gewässer und Böden, Vegetationen und Gebäude beeinträchtigt, denn die Atmosphäre ist auch ein umfassendes Transportmedium – über Ländergrenzen hinweg. Selbst der Mensch ist mittelbar wie unmittelbar den Wirkungen erhöhter Schadstoffkonzentrationen in der Luft ausgesetzt. Davon am stärksten berührt sind die Schwachen - Kranke, Kinder, alte Menschen.

Auf nationaler und europäischer Ebene wurden Gesetze und Richtlinien erlassen, die die Reduktion von anthropogenen Emissionen und damit die Entschärfung der schädigenden Wirkungen zum Ziel haben. Für einige Umweltprobleme wurden hiermit erfolgversprechende Maßnahmen eingeleitet (z.B. 'Saurer Regen' – Entschwefelungs- und Entstickungsanlagen, 'Ozonloch' – Verbot von FCKWs). Die Problematik der zu hohen Konzentrationen an bodennahen Ozon (troposphärisches Ozon), dessen Vorläufersubstanzen vor allem Stickoxide, leicht flüchtige organische Komponenten und Kohlenmonoxid sind, ist jedoch nach wie vor aktuell. Dies wird durch die häufigen Ozonwarnungen der letzten Sommerperioden und den in Baden-Württemberg 1998 erstmals ausgelösten Ozonalarm unterstrichen. Die hierfür wirksamen Minderungsmaßnahmen, z.B. Minderungstechniken im Kraftfahrzeugbereich (EURO Abgasnormen), werden durch das steigende Verkehrsaufkommen im Straßen- und Luftverkehr teilweise wieder kompensiert. Damit ist eine Begrenzung des Problems der Photooxidantienbildung ('Sommersmog') trotz Maßnahmen zur Luftreinhaltung auf europäischer Ebene nicht absehbar.

Zum besseren Verständnis der komplexen physikalischen und chemischen Zusammenhänge in der Atmosphäre und der Erarbeitung effizienter Strategien zur Luftreinhaltung bedient man sich daher sog. Chemie-Transport-Modelle (CTM). Sie haben sich als besonders hilfreiches Werkzeug der Atmosphärenforschung erwiesen. Wesentliche Grundlage dieser Modelle ist eine multiskalig hoch aufgelöste Datenbasis über anthropogene Luftverunreinigungen. Diese muß ganz Europa umfassen und für aktuelle Jahre zur Verfügung stehen, denn nur eine gegenwartsbezogene Datenbasis trägt den bereits realisierten Maßnahmen zur Luftreinhaltung vergange-

ner Jahre Rechnung.

Emissionsdaten für diese Zwecke liegen vor, sind aber nur begrenzt geeignet, da sie für weite Teile Europas nicht aktuell sind, häufig nicht vollständig und vor allem nicht in der erforderlichen hohen Auflösung bzgl. Zeit, Ort und Stoffgruppen vorliegen. Bislang konnten nur sehr wenige ausgewählte Regionen untersucht werden.

Daher werden in dieser Arbeit Methoden und Modelle vorgestellt, diese detaillierte Grundlage für Chemie-Transport-Modelle erstmals für ganz Europa, d.h. insbesondere auch für Osteuropa, und für aktuelle Jahre zu schaffen (Kap. 3).

Auf bisherigen Arbeiten aufbauend werden dann mit Hilfe eines erweiterten europäischen Emissionsmodells Freisetzungsort (Kap. 4) und -zeit (Kap. 5) der Spurengase in hoher Auflösung ermittelt. Dies ist durch die starke räumliche und zeitliche Variation der meteorologischen Bedingungen erforderlich.

Insbesondere wird im europäischen Emissionsmodell auf eine hohe Flexibilität bezüglich

- der untersuchbaren Regionen und Länder in Europa,
- der untersuchbaren Zeiträume und Jahre und
- der Aufgliederung der Spurengase nach chemischen Eigenschaften für eine Anpassung an verschiedenste Chemie-Transport-Modelle

geachtet.

Kapitel 6 faßt die wesentlichen Ergebnisse über anthropogene Emissionen in Europa zusammen. Insbesondere wird darin der Anteil mittel- und osteuropäischer Länder an den Gesamtemissionen, die Entwicklung der Emissionen im vergangenen Jahrzehnt, die vor allem durch die wirtschaftliche Entwicklung in Osteuropa stark beeinflußt wurde, und die räumliche Struktur und zeitliche Variation von Emissionen dargestellt.

Um die weitreichende Bedeutung und Anwendbarkeit der verschiedenen Aspekte der Emissionsdatenbasis unter Beweis zu stellen, beschreibt Kapitel 7 eine exemplarische Anwendung der zuvor gewonnenen Ergebnisse in einem Chemie-Transport-Modell. Als Fragestellung wurde die Photooxidantienbildung durch Kerosinablaß von Flugzeugen gewählt, welche umfassende Anforderungen und eine hohe Flexibilität an die Emissionsdatenbasis stellt. Diese Emission flüchtiger organischer Komponenten wurde zudem bisher nur unter dem Aspekt der *Bodenkontamination* diskutiert. Hier wird die *Beeinträchtigung der Luftqualität* durch bodennahes Ozon untersucht.

2 Grundlagen, thematische Eingrenzung und Zielsetzung der Arbeit

2.1 Begriffsdefinitionen

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit werden Prozesse der Freisetzung von Spurengasen in die Atmosphäre untersucht. Dabei steht die Frage im Vordergrund, wann und wo in Europa wieviel eines bestimmten Spurengases emittiert wird. Die Zusammenstellung der Emissionsdaten für ein definiertes, meist orthogonales Gebiet erfolgt in einem Emissionskataster. Die verwendeten Begriffe *Emission* und *Emittent* sind ausschließlich im Zusammenhang mit der Freisetzung von Substanzen in das Medium **Luft** zu verstehen. Die emittierten Substanzen sind in gasförmigem Zustand.

Bei der Betrachtung der sehr vielfältigen Quellen wird grundsätzlich zwischen **anthropogenen**, d.h. von Menschen verursachten, und **natürlichen** Emissionen unterschieden. Die natürlichen Quellen lassen sich nochmals in **biogene** [gr.-lat.: durch Tätigkeit von Lebewesen entstanden] und nicht-biogene gliedern. Zu den nicht-biogenen natürlichen Emissionsquellen gehören beispielsweise Vulkane und Waldbrände. Die bedeutendsten biogenen Emittenten sind in Europa Laub- und Nadelwälder. Um die Höhe der biogenen Emissionen zu bestimmen, müssen Daten über natürliche Rahmenbedingungen wie Vegetation und Meteorologie (Sonneneinstrahlung, Temperatur, Luftfeuchtigkeit) in hoher Orts- und Zeitauflösung bekannt sein. Daher werden sie meist mittels meteorologischer Modelle ermittelt, wie sie auch für Wetterprognosen eingesetzt werden. Anthropogene und nicht-biogene natürliche Quellen hingegen müssen überwiegend aus wirtschaftlichen, gesellschaftlichen und anderen Kenngrößen ermittelt werden, die in Zusammenhang mit menschlichen Aktivitäten stehen. Diese grundsätzlich unterschiedliche Vorgehensweise der Emissionsermittlung legt eine getrennte Betrachtung von anthropogenen und biogenen Emissionen nahe.

In dieser Arbeit werden ausschließlich Methoden und Modelle zur Ermittlung von hoch aufgelösten anthropogenen und nicht-biogenen natürlichen Emissionen vorgestellt. Das vorgestellte Emissionsmodell zur Ermittlung anthropogener Emissionen läßt sich deshalb nicht auf biogene Emissionen anwenden. Biogene Emissionen werden meist später im Zusammenhang mit der Untersuchung der physikalischen und chemischen Prozesse in der Atmosphäre ermittelt, da die entsprechenden Modelle leicht miteinander kombiniert werden können.

Anthropogene Emissionen machen bei den meisten betrachteten Spurengasen auch den dominierenden Anteil aus. Wenn im folgenden gelegentlich biogene Emissionen erwähnt werden, geschieht dies nur der Vollständigkeit halber.

Betrachtete Luftverunreinigungen

Das breite Spektrum an Substanzen, die durch Menschen freigesetzt werden, erfordert eine weitere Eingrenzung der betrachteten Luftbeimengungen. Das Hauptaugenmerk in dieser Arbeit liegt auf Spurengasen, die für **photochemische Prozesse** in der Luft und teils auch für **Depositionsvorgänge** aus der Luft in Böden und Gewässer relevant sind. Diese Gase sind im wesentlichen Stickoxide (NO_x), Kohlenmonoxid (CO), Schwefeldioxid (SO_2), Ammoniak (NH_3) und flüchtige organische Substanzen außer Methan (NMVOC – Non-Methane-Volatile-Organic-Compounds). Die ersten drei Schadstoffe werden fast ausschließlich bei Verbrennung fossiler Brennstoffe (Kohle, Erdöl, Gas) in unterschiedlichen Prozessen freigesetzt. Stickoxide bestehen zu rund 95% aus NO und nur zu 5% aus NO_2 (Bank, 1994, S.536) und entstehen aus Oxidation des vorhandenen Stickstoffs im Brennstoff oder aus dem Stickstoff der Verbrennungsluft (spontanes und thermisches NO_x). CO entsteht bei unvollständiger Verbrennung, falls unter Sauerstoffmangel der Kohlenstoff nicht vollständig zu Kohlendioxid (CO_2) oxidiert. Schwefeldioxid (SO_2) resultiert hauptsächlich aus der Oxidation des Brennstoffschwefels. Nur zu rund 2% tragen natürliche Schwefelquellen - im wesentlichen Vulkane - zur SO_2 -Bilanz der Atmosphäre bei. Ammoniak (NH_3) wird hauptsächlich in der Landwirtschaft, und dort insbesondere in der Tierhaltung, freigesetzt.

Die fünfte Substanzgruppe, NMVOCs, ist ein weites Spektrum verschiedener flüchtiger Kohlenwasserstoffe. Methan wird hierbei aufgrund seiner langen atmosphärischen Lebensdauer und seines großen Masseanteils an den VOCs getrennt betrachtet. Die Kohlenwasserstoffe haben eine sehr heterogene Quellstruktur. Sie werden bei der Produktion, Verarbeitung, Transport und Verwendung u.a. von Lösemitteln, Farben, Lacken und Brennstoffen (Erdöl, -gas, Kraftstoffe, etc.) freigesetzt. Daneben tragen natürliche Quellen zu rund einem Fünftel zu den NMVOCs bei, unter ihnen hauptsächlich Nadel- und Laubwälder während der Vegetationszeit.

Weitere chemische Verbindungen, die insbesondere im Zusammenhang mit dem globalen Wärmehaushalt der Atmosphäre eine Rolle spielen (sog. Treibhausgase), werden gelegentlich mitberücksichtigt, da sie überwiegend aus denselben Quellen wie o.g. Gase stammen. Zu diesen primären Luftverunreinigungen zählen Kohlendioxid (CO_2), Distickstoffoxid (N_2O) und Methan (CH_4). Als reaktionsträge Substanzen haben sie eine lange Verweildauer in der Atmo-

Tabelle 2.1: Betrachtete Schadstoffe und deren Hauptursachen

Schadstoff	Entstehung
SO ₂	Verbrennung schwefelhaltiger fossiler Brennstoffe (Kohle, Erdöl), natürliche Schwefelquellen
NO _x	Verbrennung fossiler Brennstoffe: thermisches, promptes und Brennstoff-NO _x , ca. 95% Stickstoffmonoxid, 5% Stickstoffdioxid
CO	Verbrennung fossiler Brennstoffe
NH ₃	tierische Exkrememente, Düngemittelproduktion, Abwasser-, Abfallentsorgung
NMVOC	Lacke, Farben, Lösemittel, Benzinverdunstung und unvollständige Verbrennung bei Kraftfahrzeugen, Laub- und Nadelwälder
CO ₂	Verbrennung fossiler Brennstoffe, Atmung
N ₂ O	Landwirtschaft, Natur und Produktionsprozesse
CH ₄	Landwirtschaft, Natur, Brennstoffverarbeitung und Abfallbehandlung

sphäre (s. Tabelle 2.2) und spielen daher für die Chemie der unteren Atmosphäre eine untergeordnete Rolle. Sie werden in dieser Arbeit nur gelegentlich miteinbezogen.

Tabelle 2.2: Verweilzeiten von primär emittierten Spurengasen in der Atmosphäre nach (Baumbach, 1994; Bank, 1994)

Spurengas	Verweilzeit
SO ₂	1 - 10 Tage
NO	1 - 10 min
NO ₂	5 - 7 Tage
CO	0,1 - 0,8 Jahre
CO ₂	2 - 4 Jahre
N ₂ O	4 - 10 Jahre
CH ₄	4,2 Jahre
sonst. org. Verb.	<1 Tag - >80 Jahre

Wenn von Luftverunreinigungen oder gar Schadstoffen die Rede ist, dann trifft das nur bei zu hohen Freisetzungsraten zu. Grundsätzlich ist der Begriff *Luftbeimengungen* für anthropo-

gen freigesetzte Substanzen zutreffender, denn CO₂ beispielsweise ist ein überlebenswichtiger Bestandteil der Atmosphäre. Erst dessen übermäßige Emission rechtfertigt die Bezeichnung *Verunreinigung* bzw. *Schadstoff*. Im folgenden wird der Einfachheit halber nicht weiter zwischen Beimengung und Verunreinigung unterschieden, da einzelne Emissionsquellen im Kontext der Gesamtemissionen betrachtet werden.

Europa

Die durchschnittliche Lebensdauer der betrachteten Spurengase gibt deren Reichweite in der Atmosphäre und damit die räumliche Ausdehnung des Untersuchungsgebietes vor.

Nachdem Wissenschaftler in den 70er Jahren den Zusammenhang zwischen der Versauerung skandinavischer Seen und den Emissionen von SO₂ in Mitteleuropa aufgedeckt hatten, wurde der internationale Charakter von Luftverschmutzung offensichtlich. Erstmals wurde daraufhin 1979 ein verbindliches internationales Abkommen zur Luftreinhaltung in Europa beschlossen (CLRTAP – Convention on Long-range Transboundary Air Pollution), das 1985 um das Helsinki Protokoll zur Reduzierung von Schwefelemissionen (UNECE, 1985) ergänzt wurde. Damit wurde die **europäische Dimension** der Umweltbeeinträchtigung erkannt und Schwefelemissionen wirksam durch zwischenstaatliche Zusammenarbeit reduziert.

Vergleichbare Reichweiten wie für SO₂ gelten ebenfalls für Schadstoffe, die maßgeblich für Sommersmog verantwortlich sind - NO₂, CO und NMVOC. Bei einer Lebensdauer von mehreren Tagen bedarf es rechnerisch lediglich einer durchschnittlichen Windgeschwindigkeit von 30 km/h, um an einem Tag von Paris nach Süddeutschland transportiert zu werden, in zwei Tagen von Madrid in die Alpen oder innerhalb von drei Tagen von Mailand zu den baltischen Staaten. Dies macht den internationalen Rahmen der Luftreinhaltung deutlich. Deshalb umfaßt das Untersuchungsgebiet dieser Arbeit mit Schwerpunkt 'Vorläufersubstanzen für Photooxidantien' also ganz Europa.

2.2 Wofür werden Emissionsdaten benötigt ?

Freigesetzte Spurengase, sei es nun durch Menschen oder natürliche Prozesse verursacht, sind die Ursache für viele Umweltprobleme der Gegenwart. Die Atmosphäre als umfassendes Transportmedium bewirkt, daß neben ihr auch Ökosysteme wie Gewässer und Böden, Vegetationen und auch Gebäude beeinträchtigt werden. Selbst der Mensch, und hierbei vor allem die Schwachen (Kranke, Kinder, alte Menschen), spürt mittelbar wie unmittelbar die Wirkungen erhöhter

Schadstoffkonzentrationen in der Luft.

Im folgenden werden die einzelnen Umweltbeeinträchtigungen und deren Zusammenhang mit den emittierten Spurengasen kurz dargestellt.

2.2.1 Beeinträchtigung der Umwelt durch Spurengase in der Atmosphäre

Die Verunreinigung der Luft führt zu verschiedensten Umweltveränderungen und -schädigungen. Weil ein emittierter Stoff für mehrere Beeinträchtigungen verantwortlich sein kann, lassen sich die einzelnen Veränderungen in ihrer Ursache nicht klar voneinander abgrenzen. Die bekanntesten, meist diskutierten Luftreinhalteprobleme sind:

- generelle Abnahme der Luftqualität
- Beeinträchtigung der menschlichen Gesundheit (Atembeschwerden, Reizung der Schleimhäute, Asthma)
- Sommersmog - August 1998 erster Ozonalarm in Baden-Württemberg
- Versauerung von Gewässern und Böden
- Eutrophierung
- Waldschäden
- mögliche Klimaveränderung ('Treibhausgase')
- Zerstörung der stratosphärischen Ozonschicht ('Ozonloch')
- Verschmutzung und Beschädigung von (kulturell bedeutenden) Gebäuden

Die **allgemeine Luftqualität** wird an mehr als 5000 Stationen Europas durch Messung der vorhandenen Konzentration von Luftqualitätsindikatoren - meist den 'klassischen' Spurengasen SO_2 , NO_2 , CO und Stäuben - festgestellt. Der Mensch ist unmittelbar durch Einatmen von Spurengasen deren schädigenden Wirkungen ausgesetzt. Gesundheitsrisiken im Zusammenhang mit verminderter Luftqualität wurden durch Veränderung sowohl der kurz- als auch der langfristigen Krankheitsziffer und Sterblichkeit beobachtet (Berge et al., 1997). Um umfassende Studien dieser Art zu ermöglichen, hat die Europäische Kommission deshalb die Erstellung einer Datenbank aus den gemessenen Luftindikatordaten veranlaßt - Air Pollution Information System (APIS) bzw. Airbase.

Neben der Gesundheitsbeeinträchtigung durch primäre Spurengase entsteht auch eine Gefährdung durch Gase, die durch chemische Reaktion in der Luft erst entstehen. Der bedeutendste dieser Sekundärschadstoffe ist Ozon O_3 . Die wichtigen Vorläufersubstanzen von **photochemischem Smog** sind NO_x und NMVOC. Ozon kann ebenfalls durch Inhalation zu Atembeschwerden und Atemwegserkrankungen bei Menschen führen. Darüberhinaus ist eine Schädigung von Vegetationen und Ökosysteme festgestellt worden, was beispielsweise Ernteauffälle zur Folge hat. Zum Schutze von Wäldern vor neuartigen Schäden durch Photooxidantien hat die Weltgesundheitsorganisation (WHO) Richtlinien für die Überschreitung von Ozonkonzentrationen (AOT40) erstellt (Beck et al., 1999). Ähnliches wurde zum Schutz von natürlichen Vegetationen und von Ernteträgern unternommen. Erhöhte Ozonkonzentrationen werden jeden Sommer in vielen Teilen Europas gemessen. Während Anfang der 90er Jahre Sommersmog nur in den südlichen Regionen Europas festgestellt wurde, taucht diese Erscheinung in den Folgejahren verstärkt in Mitteleuropa und selbst in Skandinavien auf.

Durch Deposition von Schwefel- und Stickstoffverbindungen, ursprünglich als NO_x , SO_2 , NH_3 emittiert, kommt es zu einer **Versauerung von Gewässern, Böden und Wäldern**. Die Folge ist eine massive Beeinträchtigung des Stoffhaushaltes der Ökosysteme. In skandinavischen Binnengewässern wurde die Dezimierung bis hin zu Auslöschung von Fischbeständen registriert, allein in Norwegen in mindestens 6000 Seen (Berge et al., 1997). In Teilen von Mittel- und Osteuropa waren 1995 ein Drittel der Bäume geschädigt. Dabei führte der menschlich verursachte Eingriff zu einer **Schwächung des Waldökosystems**, welches dann anfälliger gegen Dürre, Schädlinge oder Krankheit war (Berge et al., 1997). Mit der starken Reduktion der SO_2 Emissionen vor allem Mitte der 80er Jahre durch Verwendung schwefelarmer Brennstoffe und die Rauchgasentschwefelung in Kraft- und Heizwerken war auch ein Rückgang des Schwefelgehaltes in den Ökosystemen festzustellen. Die Erholung der skandinavischen Fischbestände war bisher jedoch noch gering (Berge et al., 1997, S.42).

Ebenfalls durch Deposition von Stickstoffverbindungen (NO_x , NH_3) (Seinfeld und Pandis, 1998) kommt es zur **Eutrophierung von Küstengewässern und Seen**. In der Ostsee z.B. wurde der Stickstoffeintrag aus der Atmosphäre - durch direkte Deposition und indirekt über Flußzuläufe - auf ein Drittel des gesamten N-Eintrags geschätzt (Berge et al., 1997).

Die Emission mancher stabiler chemischer Verbindungen führt aufgrund ihrer langen atmosphärischen Lebensdauer von mehreren Jahren zu einem kontinuierlichen Anstieg der Konzentrationen. Durch ihre verstärkte Anwesenheit nehmen sie auch in zunehmendem Maße an dem physikalischen Energieaustausch der Atmosphäre teil. Ihre Absorptionsspektren decken Wel-

lenlängenbereiche ab, die von den natürlichen Bestandteilen der Atmosphäre nicht oder nur in geringem Maße abgedeckt werden. Die Strahlung der Erde (reflektiertes Sonnenlicht, Wärmestrahlung), die bei einer unveränderten Zusammensetzung der Atmosphäre die Erde verlassen würde, wird nun durch zusätzliche absorbierende Gase in der Luft teilweise in Wärme umgewandelt. Dies führt zu einer möglichen **globalen Erwärmung**, deren Ausmaß bislang nur grob abgeschätzt werden kann. Als Folge einer globalen Erwärmung sind schwerwiegende Klimaänderungen - Erhöhung des Meeresspiegels, Verschiebung der Klimazonen - denkbar. Die wichtigsten sog. Treibhausgase sind CO_2 , CH_4 , N_2O und FCKWs. Doch auch Photooxidantien wie O_3 absorbieren Licht und wandeln es zu Wärme um.

FCKWs sowie Stickoxide (Baumbach, 1994) werden zudem für den Abbau der schützenden Ozonschicht in der *Stratosphäre* verantwortlich gemacht ('**Ozonloch**'). Die Folge ist eine Zunahme der für Lebewesen gefährlichen UV-B-Strahlung.

Nicht zuletzt führen Emissionen von Säure-Spurengasen zu **Korrosion** und vorzeitiger Abnutzung von Materialien, Gebäuden und kulturellen Monumenten (z.B. Kölner Dom). Manche dieser Schäden lassen sich im Gegensatz zu den vorgenannten leicht beziffern, da die Reparaturkosten aus öffentlichen Geldern finanziert werden.

Belastungsgebiete

Die Qualität der Luft leidet in Ballungsgebieten mit hoher Bevölkerungs- oder Industriedichte in der Regel am meisten, da anthropogene Emissionen überwiegend dort entstehen. Der Umkehrschluß, dünnbesiedelte, ländliche Regionen würden von den Beeinträchtigungen verschont, ist jedoch falsch. Sie sind ebenfalls betroffen, in manchen Fällen sogar stärker als die verursachende Region. Atmosphärisches Ozon z.B. erreicht infolge der Zeitverzögerung der chemischen Reaktionen die höchsten Konzentrationen in Windrichtung außerhalb von Ballungszentren. In den USA wurde Ozon, das aus den Abgasen von Los Angeles entstand, über 160 km nach Palm Springs, einer Wüstenoase, transportiert und erreichte selbst dort noch an mehr als 100 Tagen des Jahres Konzentrationen von 100 ppb (Fabian, 1992, S.83). Als gesundheitsgefährdende Schwelle werden 120 ppb Ozon angesehen (Fabian, 1992, S.79).

Die Eutrophierung von Gewässern u.a. in Südkandinavien, die durch den Transport von Schadstoffen aus Mitteleuropa herrührt (Geernaert, 1999), sowie die Belastung von Gewässern und Wäldern durch säurehaltige Deposition in Nord- und Mitteleuropa, sind weitere Belege der Fernwirkung von Schadstoffemissionen.

2.2.2 Bedarf an Emissionsdaten

Im Zusammenhang mit den genannten Umweltbeeinträchtigungen werden Emissionsdaten auf verschiedenen Ebenen benötigt. Einerseits sind sie zum **Erkennen** und **Verstehen** der teils sehr komplexen Ursachen erforderlich, andererseits lassen sich mit ihnen effektive Minderungsstrategien zur **Vermeidung** weiterer Umweltschäden erarbeiten. Im Anschluß an die Erarbeitung von Minderungsmaßnahmen kann eine **Überprüfung** der Umsetzung auf europäischer Ebene und deren Wirksamkeit durch quantitative Informationen über Emissionen erfolgen.

Da die Beeinträchtigung der Umwelt ein Thema von starkem öffentlichen Interesse ist, dient eine solche Datenbasis auch zur **Information** sowohl der Öffentlichkeit als auch entsprechender Behörden. Und vor dem Hintergrund potentieller zukünftiger Gefahren (z.B. mögliche Klimaänderungen) und deren Folgenabschätzung hilft sie der **Früherkennung** der Auswirkungen.

Als besonders hilfreiches Werkzeug der Atmosphärenforschung haben sich Chemie-Transport-Modelle (CTM) erwiesen. Sie simulieren komplexe Wechselwirkungen der Spurengase mit den Ökosystemen. Durch die räumliche und zeitliche Trennung zwischen verursachendem Ereignis und der resultierenden Schadenswirkung bedarf es zur Nachbildung der Prozesse meteorologischer Modelle, die den Transport der Luftbeimengungen in der Atmosphäre erfassen. Dies geschieht auf einem vordefinierten meist orthogonalen Modellgebiet (NxM-Gitter). Diese Meteorologiemodelle müssen mit Mechanismen ergänzt werden, welche zusätzlich relevante Prozesse beschreiben, z.B. chemische Umwandlung der Spurengase in der Luft, Wechselwirkung der Gase mit Luftfeuchtigkeit oder Ausfilterung durch Deposition. Die wichtigen meteorologischen Parameter für diese zusätzlichen Prozesse (Temperatur, Luftdruck, Feuchtigkeit, Sonneneinstrahlung, etc.) liefert das meteorologische Modell. Die benötigten räumlich, zeitlich und stofflich hoch aufgelösten Emissionsdaten auf europäischer Ebene werden über in dieser Arbeit vorgestellte Emissionsmodelle ermittelt.

CTMs sind insbesondere für das Verständnis komplexer Zusammenhänge der Photooxidantienbildung (Sommersmog) in der Atmosphäre und von Depositionsvorgängen unersetzlich. Vor allem für die genannte Erscheinung der Photooxidantienbildung, welche sich durch Warnungen vor hohen Ozonkonzentrationen an heißen Sommertagen im Bewußtsein der Öffentlichkeit hält, gibt es noch kein wirksames langfristiges Minderungskonzept. Dies unterscheidet die Sommersmogproblematik von den meisten anderen Umweltbeeinträchtigungen.

Die Aussagekraft der Modellierungsergebnisse hängt entscheidend von der Qualität der

verwendeten Emissionsdaten ab (Stern, 1994, S. 501).

Die Ausdehnung der Modellgebiete orientiert sich an der Fragestellung und kann sehr stark variieren:

Skalenbereiche von Ausbreitungsmodellen

Atmosphärische Ausbreitungsmodelle finden auf Gebieten mit sehr unterschiedlicher geographischer Ausdehnung Anwendung. Daher untergliedert man die Modellbereiche nach Gebietsgröße in drei Kategorien: global, mesoskalig und mikroskalig. Die globalen Modelle werden z.B. für die Untersuchung des Einflusses von Treibhausgasen auf die gesamte Erdatmosphäre eingesetzt. Die kleinsten Modelle - mikroskalige - beschränken sich auf eine Fläche von der Grundfläche eines Gebäudes bis hin zu 2 km Durchmesser, und werden für stark lokal begrenzte Untersuchungen eingesetzt. Dazwischen sind die mesoskaligen Modelle angesiedelt. Diese werden nochmals nach Größe in drei Untergruppen gegliedert und mit den drei griechischen Buchstaben α , β und γ bezeichnet. α -mesoskalige Modelle bewegen sich in der Größenordnung von Ländern und Kontinenten, β -mesoskalige bedecken Gebiete in der Größe eines Bundeslandes und γ -mesoskalige Gebiete von der Größe von Städten. Tabelle 2.3 zeigt die Modellkategorien und ihre geographische Ausdehnung nach (Orlanski, 1975) nochmals im Überblick. Hierbei sind die Größenordnungen der Modellgebiete nur als Orientierung zu verstehen. Europäische Ausbreitungsmodelle mit einer größeren Ausdehnung als 2000 km werden trotzdem noch den mesoskaligen Modellen zugeschrieben. Im wesentlichen werden die Modellausdehnungen aus meteorologischen Beschreibungen abgeleitet (Pielke, 1984; Physick, 1988). Für die Untersuchung der Photooxidantienbildung sind globale Modelle zu groß, da sowohl Ursachen als auch die Auswirkung von Sommersmog aufgrund der Lebensdauer der Schadstoffe (s. Tab. 2.2) innerhalb von Europa liegen. Mikroskalige Modelle hingegen sind zu klein bei der Betrachtung photochemischer Prozesse, da der Transmissionsanteil von Spurengasen über das Modellgebiet zu groß wäre. Daher sind im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich mesoskalige Modelle von Bedeutung. Diese reichen jedoch in

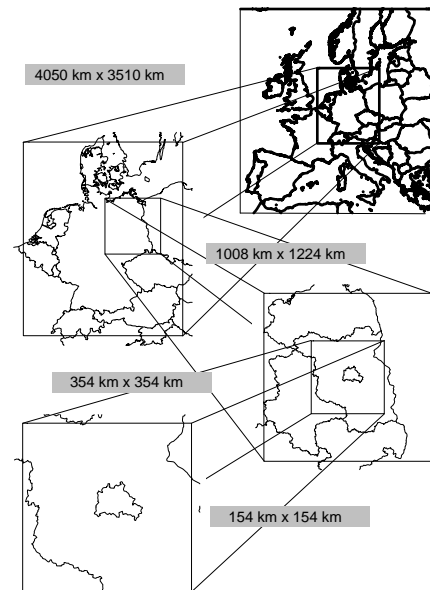


Abbildung 2.1: Grid-Nesting: Vier sukzessiv ineinandergeschachtelte Modellgitter (BMBF, 1996).

Tabelle 2.3: Kategorien von Ausbreitungsmodellen und deren räumliche Größenordnung nach (Orlanski, 1975)

Ausbreitungsmodell	Größe der Modellgebiete (Kantenlänge)
global	über 2000 km
α -mesoskalig	zwischen 200 km und 2000 km
β -mesoskalig	zwischen 20 km und 200 km
γ -mesoskalig	zwischen 2 km und 20 km
mikroskalig	bis zu 2 km

ihrer Ausdehnung von ganz Europa (α -mesoskalig) bis zu einzelnen Städten (β -mesoskalig). Abbildung 2.1 zeigt vier mesoskalige Modellgitter, die im Rahmen eines Forschungsprojektes (BMBF, 1996) verwendet wurden - das größte (oben) im α -Bereich, das kleinste (unten) im β -Bereich. Diese Gitter mit unterschiedlichen Auflösungsstufen sind ineinander geschachtelt ('Grid-nesting'), so daß das umgebende Gitter in Chemie-Transport-Modellen die Randbedingungen für das kleinere Gitter liefert.

2.2.3 Messung oder Modell ?

Diese beiden Möglichkeiten werden häufig als Alternativen zueinander gesehen. Bei der Bestimmung von Emissionen gibt es jedoch kein 'entweder-oder', sondern nur ein 'beides'.

Zum einen ist es unmöglich, für ganz Europa von allen Emissionsquellen die verschiedenen freigesetzten Substanzen zu messen. Dies müßte zudem auch über längere Zeiträume geschehen. Andererseits können keine sinnvollen Modelle erstellt werden, die nicht auf Meßergebnisse aus genau definierten Bedingungen zurückgreifen können.

Tatsächlich beruhen die hier entwickelten Methoden und Modelle auf einer Vielzahl von aktuellen Meßergebnissen aus unterschiedlichsten Bereichen, von Abgasmessungen bei Kraftfahrzeugen und Verbrennungsanlagen über Verkehrszählungen und Temperaturmessungen (Wetterstationen) bis hin zu Emissionsmessungen auf internationaler Schifffahrt.

Messungen werden ebenfalls durchgeführt, um Emissionsmodelle zu verifizieren. In aufwendige Meßkampagnen wie z.B. Autobahnmesungen (Corsmeier und Vogel, 1998) oder Stadtexperimenten (Slemr et al., 1999) werden punktuell d.h. in relativer Nähe zur Emissionsquelle Spurenstoffe in der Luft bestimmt. Die gemessenen Daten können unter Berücksichtigung des

Transportweges und der damit verbundenen Ausdünnung von Spurengaskonzentrationen sowie möglicher kurzfristiger chemischer Umwandlungen mit modellierten Emissionsdaten verglichen werden.

Da es sich in solchen punktuellen Vergleichen um kleinere geographische Gebiete handelt (Städte) bzw. nur bestimmte Emissionquellen untersucht werden (Autobahnverkehr), können auch andere Emissionsmodelle verwendet werden, die genauer sind. Vergleiche hierzu auch (Baumbach et al., 1999), (Klemp et al., 1999), (Möllmann-Coers et al., 1999), (Schwarz et al., 1999).

Das hier beschriebene europäische Emissionsmodell wiederum kann punktuell mit solch einem genaueren aber lokal beschränkten Modell verglichen werden. Ein solcher Vergleich wird in Kapitel 6.5 vorgestellt.

2.2.4 Anforderungen an Emissionsdatenbanken

Da Emissionsdatenbanken als Grundlage für weitere wissenschaftliche Projekte und umweltpolitische Entscheidungen der Luftreinhaltung dienen, müssen sie bestimmte Anforderungen erfüllen. Die Anforderungen ergeben sich aus den verschiedenen Verwendungsmöglichkeiten der Datenbasis, wobei nicht jedes im folgenden aufgelistete Kriterium für jede Anwendung eine gleich hohe Bedeutung hat. Sinn der Erstellung einer umfassenden Emissionsdatenbank auf europäischer Ebene ist es, möglichst vielen unterschiedlichen Anwendungen zu genügen. Durch die Beschränkung auf Europa kann sie jedoch nicht globalen Betrachtungen z.B. von Treibhausgasen genügen. Sie wird den Anforderungen von atmosphärischen Chemie-Transport-Modellen am weitgehendsten gerecht, kann jedoch ohne weiteres auch für die Modellierung von transeuropäischen Depositionsvorgängen oder einfach für den internationalen Vergleich und die Beurteilung der Emissionstrends bestimmter Schadstoffe verwendet werden.

Die im folgenden aufgelisteten Kriterien wurden für die europäische Emissionsdatenbank als wesentlich erachtet:

- a** flächendeckend für Europa (von Portugal bis zum Ural)
- b** in ihrer Datenstruktur konsistent,
- c** mit einer subnationalen räumlichen Struktur,
- d** in einzelne Quellgruppen untergliedert,

- e zeitlich aufgelöst in Stunden,
- f detailliert aufgegliedert in emittierte Substanzen,
- g verfügbar, d.h. datenrechtlich nicht geschützt,
- h aktuell und
- i qualitätsüberprüft.

Punkt a ist offensichtlich. Wenn die Emissionen eines Landes fehlen, verfälscht dies die Modellergebnisse. Die Konsistenz der Datenstruktur (Punkt b) sowie die Aufgliederung der Quellgruppen (Punkt d) sind für die Anwendung der in den nächsten Kapiteln beschriebenen Methoden nötig. Eine subnationale räumliche Struktur (c) sowie die zeitliche Auflösung in Stunden (f) sind zwingend erforderlich, da meteorologische Rahmenbedingungen sowie die stoffliche Zusammensetzung der Emissionen von Ort zu Ort und innerhalb eines Tages stark variieren. Die detaillierte Aufgliederung in emittierten Substanzen (f) ist vor allem aufgrund der sehr unterschiedlichen chemischen Eigenschaften von Substanzen bzgl. der Chemie der Atmosphäre erforderlich. Daß Emissionsdaten der Öffentlichkeit und der Wissenschaft zur Verfügung stehen (Punkt g), ist nicht selbstverständlich, denn aus Daten über die Freisetzung von Spurengasen lassen sich bei z.B. großen Industrieanlagen Rückschlüsse auf Produktionsverfahren, Produktionsvolumina u.ä. ziehen. Daran sind jedoch Unternehmen aus Wettbewerbs-, Image- oder anderen Gründen nicht interessiert und fordern Geheimhaltung oder zumindest Verschlüsselung von meldepflichtigen Daten.

Eine Emissionsdatenbasis mit aktuellem Bezugsjahr (Punkt h) wird benötigt, um

- bereits umgesetzten Reduktionsmaßnahmen Rechnung zu tragen,
- aktuelle Smogepisoden untersuchen zu können,
- auf den heutigen Bedingungen aufbauende Strategien zur Vermeidung von hohen Schadstoffkonzentrationen zu erarbeiten und
- gegebenenfalls Kurzzeitprognosen von Ozonwerten erstellen zu können.

Selbst für retrospektive Untersuchungen z.B. von Sommersmog-Episoden interessieren überwiegend die aktuell zurückliegenden Zeiträume. Die Verfügbarkeit aktueller Emissionen bewährt sich außerdem in Forschungsvorhaben, die Schadstoffkonzentrationen zeitgleich messen

und mit Hilfe atmosphärischer Modelle simulieren. Mit den aktualisierten Daten können Meßkampagnen schon im Vorfeld gezielt vorbereitet werden. Durch Simulation der Schadstoffausbreitung sind zu erwartende Konzentrationen bestimmbar, und die optimale Positionierung der Meßgeräte kann ermittelt werden. Bei der umweltpolitischen Realisierung von Minderungsmaßnahmen schließlich sind Aussagen über die Qualität von Emissionsdaten und der damit verbundenen Modellergebnisse (Punkt i) erforderlich.

2.3 Bisherige Arbeiten

Seit dem Auftreten massiver und vor allem weitreichender Umweltbeeinträchtigungen durch Luftverunreinigungen in Europa zu Beginn der 80er Jahre - anfangs vor allem vom Thema *Saurer Regen* und erst im späteren Verlauf von *Sommersmog* durch Photooxidantien dominiert - wurden mehrere Projekte initiiert, die der europaweiten quantitativen Ermittlung von Luftschadstoffemissionen dienen bzw. noch dienen.

Als erstes nahm 1983 das OECD-Projekt **MAP** (Major Air Pollutants) seine Arbeit auf. Es sah vor, für die 17 OECD Länder (die heutigen 15 EU Länder + Norwegen und die Schweiz) Emissionsdaten für SO₂, NO_x und VOC für jedes Land getrennt zu erheben. Damit sollte zum einen die Wirkungsweise von Reduktionsmaßnahmen festgestellt und zum anderen die Beeinträchtigung der Luftqualität durch Photooxidantienbildung in Westeuropa untersucht werden. 1990 wurde der Abschlußbericht des MAP-Projektes veröffentlicht (OECD, 1990).

Im Jahre 1985, 2 Jahre nach dem MAP-Projekt, finanzierte das Umweltdirektorat der **EG-Kommission (DGXI)** die Erhebung einer Emissionsdatenbasis für SO₂, NO_x, VOC und Stäube, das die damaligen 12 EG-Staaten umfaßte. Mit Hilfe der Datenbasis sollte eine wissenschaftliche Grundlage für die Atmosphärenforschung und für umweltpolitische Entscheidungen geschaffen werden. Emissionen wurden für die Jahre 1980 und 1983 erhoben.

Das **CORINE**-Programm (CoORDination - INformation - Environment/EEA Task Force) kam auf Ratsbeschluß 85/338/EEC der EG 1986 zustande. Es hat zum Ziel, Informationen zum Zustand der Umwelt und natürlicher Ressourcen zusammenzustellen, zu koordinieren und deren Konsistenz zu gewährleisten. Darunter ist auch das Projekt zur Ermittlung von Daten über Luftemissionen (**CORINAIR** - CORE INventory AIR) gefaßt. Für das Jahr 1985 wurde eine Emissionsbasis für SO₂, NO_x und VOC der 12 EG Staaten erstellt (CORINAIR 1985), die 1990 auf 8 Schadstoffe (SO₂, NO_x, NMVOC, CH₄, NH₃, CO, CO₂, N₂O) und 30 Länder erweitert wurde (CORINAIR 1990). Unter ihnen sind neben den damaligen 12 EG Staaten

noch Österreich, Finnland, Norwegen und Schweiz, die baltischen Staaten Estland, Lettland, Litauen, sowie die zentral- und osteuropäischen Länder Bulgarien, Tschechische Republik, Ungarn, Polen, Rumänien, Slovakische Republik und Slowenien. 1994 kamen Kroatien und die Schweiz hinzu.

Da die CORINAIR-Datenbasis für diese Arbeit eine wesentliche Grundlage darstellt, wird deren Struktur näher erläutert.

Die CORINAIR-Jahresemissionen (CORINAIR, 1996) werden im Gegensatz zu bisherigen europäischen Emissionsdatenbanken auf subnationalen Verwaltungseinheiten (NUTS - franz.: Nomenclature des Units Territoriales de Statistique) erhoben, welche nach EUROSTAT klassifiziert sind. Je nach Fläche des Landes wurden eine, zwei oder drei Unterteilungen vorgenommen. In Deutschland entspricht die NUTS1-Ebene Bundesländern, NUTS2 sind Regierungsbezirke und NUTS3 Kreisgebiete. Die Größe der verwaltungspolitischen Gebiete variiert stark von Land zu Land und auch innerhalb der Länder. Französische Départements z.B. haben eine durchschnittliche Fläche von ca. 4.000 km², während die Fläche von deutschen Landkreisen sich im Bereich von mehreren hundert Quadratkilometern bewegt. Die geographische Untergliederung in Verwaltungseinheiten anstelle eines Gitters ist aufgrund der Verfügbarkeit regionaler statistischer Daten sinnvoll. Einzelne Emissionsquellen mit sehr hoher Emissionsrate und relativ geringer räumlicher Ausdehnung, z.B. Kraftwerks- und Industrieanlagen, größere Flughäfen usw., werden als Punktquellen bezeichnet. Aufgrund ihres hohen Beitrages zur Luftbelastung werden Punktquellen in CORINAIR in der Regel nicht auf Verwaltungseinheiten sondern direkt mit Standortkoordinaten ausgewiesen.

Analog zur räumlichen Struktur wird in CORINAIR eine Unterteilung der Quellen in drei Ebenen vorgenommen und mit SNAP (Selected Nomenclature for Air Pollution) bezeichnet. Die erste SNAP-Ebene umfaßt 11 Hauptquellgruppen, die in Tabelle 2.4 dargestellt werden.

Da immer neue relevante Emissionsquellen aufgedeckt werden, wurde die Untergliederung der Quellen in SNAPS bereits mehrmals überarbeitet. Nach SNAP90 (EEA, 1996), für welchen auf der dritten Ebene CORINAIR-Daten zur Verfügung stehen, gibt es nun eine Unterteilung SNAP94 (EMEP/CORINAIR, 1996b) und seit 1998 SNAP97 (EMEP/CORINAIR, 1998). Die weitere Untergliederung in Ebene 2 umfaßt bei SNAP90 57 Quellgruppen und die dritte Ebene 270 Quelltypen. In SNAP97 sind es bereits 76 Untergruppen der Ebene 2 und 414 der Ebene 3. Unter den Emissionsquellen der dritten SNAP-Ebene befinden sich neben offensichtlichen Emittenten wie Benzin- und Diesel-Pkws oder Industrieverbrennungsanlagen auch weniger offensichtliche wie Bäckereien (04 06 05), Brauereien (04 06 07), Feuerlöscher (06 05 05),

Tabelle 2.4: 11 Quellgruppen der ersten Ebene der SNAP-Nomenklatur nach (EMEP/CORINAIR, 1998)

Ebene 1	Bezeichnung der Quellgruppe
1	Kraft- und Heizwerke
2	Kommerzielle u.a. Verbrennungsanlagen
3	Industrielle Verbrennung
4	Produktionsprozesse
5	Gewinnung und Verarbeitung von Brennstoffen
6	Lösemittleinsatz
7	Straßenverkehr
8	Andere mobile Quellen (Landwirtschaft, Schiff-, Flugverkehr, etc.)
9	Abfallbehandlung
10	Landwirtschaft
11	Natur

Narkosegase (06 05 01) oder Krematorien (09 09 01).

Die Zunahme der Quellgruppenanzahl ist hierbei nicht allein auf die Aufnahme neuer Quellen zurückzuführen, sondern auch auf eine genauere Differenzierung der bestehenden Quellsektoren. Dies zeigt die Dynamik von Emissionserhebungen, und daß der Kenntnisstand bei europäischen Emissionen beständig erweitert wird.

CORINAIR besitzt mit der erläuterten SNAP Nomenklatur die detaillierteste Quellstruktur für Emissionen auf europäischer Ebene. Die Daten werden dezentral von Länderbeauftragten erhoben. Der enorme Bedarf an statistischen Daten, die länderspezifischen Unterschiede sowie nationale Restriktionen bei der Beschaffung emissionsrelevanter Daten legen diese Art der Erhebung nahe. Insbesondere kennen die Länderbeauftragte die nationalen Besonderheiten und können bestehende Kontakte nutzen. Andererseits ist damit auch ein erheblicher Aufwand an Bearbeitung und Koordination verbunden. Den Länderexperten steht zur Emissionserhebung ein Handbuch zur Verfügung (EMEP/CORINAIR'98, 1998), welches je nach vorhandenen Grundlagendaten unterschiedlich aufwendige Methoden zur Berechnung vorschlägt. Die Experten können jedoch auch auf eigene Methoden zurückgreifen, falls solche vorhanden sind. Neben dem Handbuch unterstützt sie das ETC/AE (European Topic Center on Air Emissions)

mit speziellen Computerprogrammen zur Datenaufbereitung und -dokumentation.

Für jedes fünfte Bezugsjahr (1990, 1995, ...) ist eine detaillierte Datenbasis mit hoher räumlicher (NUTS3) und sektoraler (SNAP3) Auflösung geplant. In den Jahren dazwischen sollen die Länderbeauftragten nationale Summenwerte auf SNAP1 Ebene an das ETC/AE liefern. Verfügbar sind zur Zeit die detaillierten 90er Emissionen für rund 30 Länder und Emissionen für 1994 auf aggregiertem Niveau (SNAP1, NUTS0). Es fehlen in den verfügbaren Daten bislang einige Länder der früheren Sowjetunion und des ehemaligen Jugoslawiens.

In enger Kooperation mit dem CORINAIR-Programm steht das **EMEP** Programm - 'Kooperatives Programm zur Überwachung und Evaluierung der weitreichenden Transmission von Luftschadstoffen in Europa' (Tarrasón und Schaug, 1999; Jonson et al., 1999), das unter der Konvention über 'Long Range Transboundary Air Pollution (LRTAP)' (UNECE, 1979) ins Leben gerufen wurde. Die EMEP-Emissionen werden auf ein 50km·50km- Gitter für atmosphärische Modelle angepaßt, welches sich von ca. 40° West bis 60° Ost (Länge) und nördlich von 30° Nord (Breite) in polar konischer Projektion erstreckt. Die Emissionen beruhen auf der gleichen Erhebungsgrundlage wie die CORINAIR-Daten. Sie werden jedes Jahr von den Länderbeauftragten neu berechnet, unterscheiden jedoch nur 11 Hauptquellgruppen. Damit sind sie in ihrer Quellenstruktur weniger detailliert als CORINAIR-Daten. Punktquellen werden wie in CORINAIR getrennt mit Koordinatenangabe der Quelle angegeben. In EMEP sind nur die Länder der UN-ECE enthalten.

Innerhalb des **LOTOS**-Projekts (Bultjes, 1992) des holländischen Forschungsinstitutes TNO werden Emissionsdaten flächendeckend für ganz Europa ermittelt. Die räumliche Verteilung basiert auf einem 1° · 1°-Gitter (geographische Koordinaten), das sich von Portugal bis zum Ural und von Nordskandinavien bis Nordafrika erstreckt, jedoch nicht die Emissionen eines jeden Landes beinhaltet, das von dem Modellgebiet bedeckt wird. Die Gitterelemente besitzen eine Flächen von durchschnittlich ca. 10000 km².

Das **IPCC/OECD** Programm (IPCC - Intergovernmental Panel on Climate Change) befaßt sich hauptsächlich mit den Treibhausgasen CO₂, CH₄, N₂O und nur nebenbei mit NO_x, CO, NMVOC. Es erarbeitet Richtlinien für die Erstellung nationaler Emissionsdatenbanken der genannten Stoffe. Die Richtlinien wurden anfang 1995 veröffentlicht. SO₂ und NH₃ spielen im Zusammenhang mit Treibhausgasen insofern eine Rolle, da sie zur Bildung von sekundären Aerosolen und zur Wolkenbildung beitragen und deshalb einen negativen Treibhauseffekt bewirken können. Um Doppelarbeit zu vermeiden, wird auch dieses Projekt mit den vorgenannten, CORINAIR und EMEP, abgestimmt, so daß eine Harmonisierung der Systeme möglich

ist.

GEIA (Global Emissions Inventory Activity) existiert seit 1990 und befaßt sich mit der weltweiten Emission von Gasen und Aerosolen aus natürlichen und anthropogenen Quellen. Es ist ein Baustein des IGAC (International Global Atmospheric Chemistry) Projektes, welches Prozesse in der globalen Atmosphärenchemie des nächsten Jahrhunderts verstehen und vorher-sagen will. Der Schwerpunkt liegt in der Untersuchungen von Änderungen, die das Klima, die Oxidationskapazität der Atmosphäre und die chemischen Interaktion von atmosphärischen Spurengasen mit der Biosphäre beeinflussen. Darin eingeschlossen sind die Problematik des stratosphärischen Ozonlochs, der sauren Niederschläge, des anthropogenem Treibhauseffektes und der biologischen Schäden durch Oxidationsprozesse. Das Ziel von GEIA ist die Erstellung einer Datenbank aus allen Spurenstoffen, die für die globale Atmosphärenchemie relevant sind.

2.4 Defizite

Die genannten bisherigen Arbeiten zur Ermittlung von Emissionsdaten auf europäischer Ebene können als wichtige Grundlage für die Ermittlung hoch aufgelöster Emissionskataster für atmosphärische Modelle genutzt werden. In folgenden Punkten erweisen sie sich jedoch als unzureichend.

Verfügbarkeit

Häufig beschränken sich Arbeiten zur Luftreinhaltung in Europa auf die Mitgliedsländer der Europäischen Union (EU), da in diesem Rahmen eine einfachere Koordination der Maßnahmen möglich ist und die Zusammenarbeit der Mitgliedsländer durch rechtliche Grundlagen gefordert und gefördert wird. Zusätzlich verfügt die statistische Behörde der EU, EUROSTAT, i.d.R. über Datengrundlagen, die für die Luftreinhaltung von Nutzen sind. Daher umfassen die europäischen Emissionsdatenbanken stets die EU-Länder, weitere Länder jedoch nur unvollständig. Die Begrenzung auf EU-Europa ist aber für eine Emissionsdatenbasis unzureichend.

Desweiteren sind europäische Emissionen i.d.R. nur für wenige Jahre verfügbar, da der Aufwand der nationalen Erhebung entsprechend groß ist. Je detaillierter die Emissionsdatenbank in ihrer räumlichen und quellbezogenen Struktur ist, desto weniger Jahre umfaßt die Datenbasis. Emissionsdatenbanken, die jedes Jahr beinhalten, haben dafür einen zu geringen Detaillierungsgrad. Hinzu kommt eine Geheimhaltungspflicht insbesondere bei Punktquellen (Kraftwerke, große Industrieanlagen), die den Zugang zu diesen sensiblen Daten erschwert.

Dies stellt eine wesentliche Einschränkung hinsichtlich der untersuchbaren Zeiträume mittels atmosphärische Modelle dar.

Aktualität

Da ein umfassende Inventur der freigesetzten Luftschadstoffe aufgrund der Vielzahl an Quellen und Quelltypen insbesondere auf europäischer Ebene sehr arbeitsintensiv ist, können diese bisher nur mit mehreren Jahren Verzögerung fertiggestellt werden. Deren Bezugsjahr ist damit bei Fertigstellung nicht mehr aktuell.

So dauerte z.B. die dezentrale Erstellung und Zusammenfassung der Jahresemissionen der CORINAIR Datenbank (CORINAIR, 1996) für 1990 bis zum Jahre 1996. Das Bezugsjahr lag damit schon sechs Jahre zurück! Anfang 1999 standen aktuellere Jahreswerte der CORINAIR-Emissionen zur Verfügung, für das Bezugsjahr 1994 jedoch nur von 22 Ländern, für 1995 von 15 Ländern und für 1996 lediglich von 8 europäischen Ländern. D.h. eine detaillierte, gesamt-europäische Emissionsdatenbasis für aktuelle Jahre liegt nicht vor. Emissionswerte können sich über einen Zeitraum von mehreren Jahren aber erheblich ändern. Diese Änderungen dürfen nicht vernachlässigt werden.

VOC-Untergliederung

Eine Untergliederung der flüchtigen organischen Substanzen (VOCs) in Substanzgruppen, was insbesondere im Hinblick auf deren unterschiedliches chemisches Verhalten von Bedeutung ist, liegt in den europäischen Datenbanken nicht oder nur in der sehr groben Unterscheidung zwischen Methan und Nicht-Methan-VOCs vor.

In weiterführenden Arbeiten (Friedrich, 1997) wurde eine europäische Emissionsdatenbank erstellt, die VOCs differenzierte. Dadurch konnte den stark unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der NMVOC-Anteile (Middleton et al., 1990) für die Atmosphärenchemie Rechnung getragen werden. Hierbei standen jedoch nur wenige VOC-Splits für sehr unterschiedliche Quellsektoren zur Verfügung. Auch wurden nur europäeinheitliche Splits verwendet, d.h. nicht nach Ländern unterschieden. Dies ist jedoch zu ungenau. Denn z.B. variiert die Zusammensetzung der Kraftfahrzeugflotten in Europa von Land zu Land stark, was den VOC-Split des Straßenverkehrs entsprechend beeinflusst. Im Hinblick auf den Beitrag des Straßenverkehrs von 31% (CORINAIR, 1996) zu den VOC-Gesamtemissionen ist eine Differenzierung der VOC-Splits nach Ländern daher wichtig.

Räumliche Struktur

Die CORINAIR Emissionsdatenbank besitzt mit ihrer geographischen Untergliederung in Verwaltungseinheiten die feinste räumliche Auflösung unter den genannten Datenbanken. Die durchschnittliche Fläche beträgt ca. 4000 km². Das entspräche auf einem quadratischen Modellgitter einer Gitterzelle mit 63 km Kantenlänge. Damit sind die vorhandenen Emissionsdaten nur für α -mesoskalige atmosphärische Modelle (s. S. 22) verwendbar. Für Gesamteuropa finden jedoch Modellgitter bereits Anwendung, die diese Auflösung weit unterschreiten (BMBF, 1996; Tulet et al., 1998). Insbesondere für einzelne Regionen und Städte in Europa läßt sich aus den genannten europäischen Datenbanken kein Emissionskataster mit sinnvoller räumlicher Auflösung erstellen. Dies schließt auch die auf Seite 21 erwähnte Schachtelung von Modellgittern (Grid-Nesting) aus.

Die Notwendigkeit der hohen räumlichen Auflösung von Emissionen wurde in (Broche-ton et al., 1999) im Zusammenhang der Ozonbildung herausgestellt. Die Aufteilung und damit Ausdünnung hoher Emissionsraten (z.B. aus Städten) auf grobe, d.h. großflächige, Modellgitter hat erheblichen Einfluß auf die Modellergebnisse. Die Gesamtkonzentrationen von Sekundärschadstoffen weichen in der genannten Arbeit um bis zu 34 Prozent gegenüber den entsprechenden Konzentrationen in einem feinmaschigeren Modellgitter ab.

Zeitliche Variation

In bisherigen Arbeiten wurden aufgrund der Komplexität und Vielfalt der Prozesse nur einfachste Modelle verwendet. LOTOS (Bultjes, 1992), EMEP (Tarrasón und Schaug, 1999) und PHOXA (Axenfeld et al., 1987) schätzten bisher das zeitliche Verhalten von Emissionen meist nur mit 2 Niveaus ab, d.h. bei Tagesläufen mit einem Tages- und einem Nachtwert, bei Jahresläufen mit einem Winter- und einem Sommerwert, etc. Nationale und regionale Unterschiede wurden dabei vernachlässigt.

In GENEMIS I (Lenhart und Friedrich, 1995) wurden die Werte aus einfachen Annahmen teils durch statistische Daten wie z.B. Brennstoffverbräuche, Verkehrszählungen, Produktionsindizes, etc. ersetzt. Dies bedeutete bereits eine wesentlich realistischere Abschätzung der Emissionen. Insbesondere wurden - soweit statistische Daten zur Verfügung standen - nationale Unterschiede durch Daten über das jeweilige Land realisiert. Auch die Miteinbeziehung von Temperaturdaten in andere als biogene Emissionen (z.B. für Benzinverdunstung, Heizwerke) bewirkte eine verbesserte Darstellung der zeitlichen Variation von Emissionswerten. Diese

Zeitläufe wurden speziell für das Jahr 1990 erstellt.

Grundsätzlich nicht berücksichtigt wurden jedoch in allen vorausgegangenen Arbeiten die verschiedenen Zeitzonen der Länder, nationale gesetzliche und religiöse Feiertage und die Auswirkungen der Umstellung von Winter- auf Sommerzeit. Des weiteren gibt es maßgebliche kulturelle Unterschiede zwischen den europäischen Ländern und ein Nord-Süd-Gefälle bei klimatischen Bedingungen. Bei den berücksichtigten Emissionsquellen wurden häufig dieselben Zeitkurven für verschiedene Prozesse und auch für teils sehr unterschiedliche Länder verwendet. Länderspezifische Zeitgänge z.B. für den Straßenverkehr gingen nur in geringem Umfang in die Modelle ein. Die Zeitverläufe für die folgenden Jahre nach 1990 wurden nicht ermittelt. Insbesondere standen keine meteorologischen Daten für diese Jahre zur Verfügung.

Qualität der Emissionsdaten

Die Emissionserhebung auf europäischer Ebene an sich ist schon sehr aufwendig, die Bestimmung von Unsicherheiten bei der Emissionsberechnung um so mehr. Würde man z.B. mittels Methoden der Fehlerfortpflanzung Unsicherheiten bei Emissionswerten berechnen wollen, so müßte ein Vielfaches an Berechnungen von den einzelnen Länderbeauftragten durchgeführt werden.

Als zusätzliche Schwierigkeit für die Bestimmung der Unsicherheiten erweist sich die Tatsache, daß die den Emissionsberechnungen zugrunde liegenden Statistiken (Produktionskennzahlen, Energieverbräuche, Kraftfahrzeugbestandszahlen, etc.) praktisch nie mit quantitativen Angaben über deren Verlässlichkeit ausgegeben werden. Somit sind Unsicherheiten von Emissionsdaten grundsätzlich schwer zu ermitteln.

In keiner der erwähnten bisherigen Arbeiten wurden daher quantitative Angaben über Unsicherheiten in Emissionsdatenbanken getroffen, obwohl die Notwendigkeit der Qualitätssicherung schon lange betont wird (Mohnen, 1996; Mobley und Saeger, 1996).

2.5 Ziel der Arbeit

Ziel der Arbeit ist es daher, die genannten Lücken zu schliessen, d.h. Methoden und Modelle zu entwickeln, mit denen Emissionsdatenbasen erstellt werden können, die

- sich neben bereits zurückliegenden Jahren auch auf aktuelle Jahre beziehen,
- auch Länder in Mittel- und Osteuropa beinhaltet, d.h. für Gesamteuropa gelten,

- VOCs aufgrund ihrer chemisch sehr unterschiedlichen Eigenschaften nach Quellgruppen *und* Ländern detailliert untergliedert angeben,
- eine verbesserte räumliche Auflösung aufweisen, so daß auf europäischer Ebene auch β - und γ -skalige Modelle zur Untersuchung beliebiger europäischer Ballungsgebiete eingesetzt werden können,
- bei der zeitlichen Auflösung insbesondere länderspezifische Besonderheiten (Feiertage, Zeitzonen, etc.) mit berücksichtigen, beliebige Untersuchungsperioden ermöglichen und vor allem auch für Jahre nach 1990 eine stündliche Auflösung gewährleisten,
- ein erstes Konzept über die Datenqualität beinhalten,
- leicht verfügbar sind und durch die Anpassung an beliebige Modellgitter keiner Daten- geheimhaltung z.B. von Industrieanlagen unterliegen,
- in Datenstruktur und -format flexibel sind, um für unterschiedlichste Chemie-Transport- Modelle verwendbar zu sein, und
- ihre Bedeutung sowie ihre flexible Verwendbarkeit in CTMs für beliebige Vorhaben der Troposphärenforschung in Europa (Depositionsvorgänge, Photooxidantienbildung, etc.) unter Beweis stellen.

Dazu wird im folgenden Kapitel (3) eine Jahresdatenbasis aus bereits bestehenden Arbeiten (CORINAIR, EMEP) erstellt, die um fehlende Länder vor allem in Mittel- und Osteuropa ergänzt werden muß (S. 36). Zusätzlich zur Ergänzung fehlender Länder werden bislang fehlende und bedeutende Emissionsquellen hinzugefügt (S. 45), für die eine Berechnungsgrundlage zur Verfügung steht. Die Substanzgruppe NMVOC wird in der gesamteuropäischen Emissionsdatenbank länder- und quellspezifisch detailliert untergliedert (S. 47), sowie die gesamte Datenbasis um die fehlenden Jahre ergänzt und aktualisiert (S. 49). Schließlich wird erstmalig für europäische Emissionsdaten ein Qualitätskonzept erarbeitet (S. 50), das sich an internationalen Kriterien orientiert (Mohnen, 1996).

Diese Jahreswerte werden dann in Kapitel 4 räumlich (S. 57) und in Kapitel 5 zeitlich (S. 65) mit den dort beschriebenen Methoden hoch aufgelöst, wie dies für die Verwendung in Chemie-Transport-Modellen erforderlich ist.

Kap. 6 (S. 77) faßt die Ergebnisse der multiskalig hoch aufgelösten europäischen Emissionsdatenbank für die einzelnen o.g. Aspekte abschnittsweise zusammen.

Um deren Bedeutung und Verwendbarkeit unter Beweis zu stellen, werden die gewonnenen Ergebnisse in Kap. 7 (S. 105) in einer Untersuchung angewendet, die hohe Ansprüche an die Emissionsdatenbank stellt. Exemplarisch wurde hierfür die bislang ungeklärte Frage der Photooxidantienbildung aus tatsächlich stattgefundenen Kerosinablässen ausgesucht. Die Beantwortung dieser Frage (S. 105) erfordert folgende erarbeitete Eigenschaften der Emissionsdatenbank:

- lückenloser Umfang der Bezugsjahre
- beliebige Episoden im Jahr
- stündliche Emissionswerte
- beliebige Regionen in Europa
- kleinskalige räumliche Auflösung
- flexible Datenstruktur (z.B. Anpassung der NMVOC-Unterteilung an verfügbare Chemie-mechanismen).

3 Emissionsquellen - Jahresdatenbasis

Allgemein werden Emissionen erst auf einer Jahresbasis erstellt, da die den Berechnungsmethoden zugrundeliegenden Statistiken ebenfalls fast ausschließlich nur auf Jahresbasis vorliegen. Bei der Erstellung einer Jahresdatenbasis, wie sie in diesem Kapitel durchgeführt wird, stellt sich das grundsätzliche Problem, daß alle relevanten Emissionsquellen erfaßt werden müssen, also zunächst die vorhandenen Emissionsquellen identifiziert werden müssen.

3.1 Welche Emissionsquellen gibt es ?

Das Spektrum der Emissionsquellen erstreckt sich über vielfältigste Bereiche des Lebens. Luftbeimengungen werden bei der Arbeit, in der Freizeit, im Haushalt, in der Natur, der Land- und Forstwirtschaft und in öffentlichen Einrichtungen freigesetzt. In den vergangenen Jahren wurden immer wieder neue Quellen 'entdeckt', obwohl an der Erstellung von Emissionsdatenbanken auf europäischer Ebene schon seit 1983 gearbeitet wird (MAP-Projekt (OECD, 1990)). Prinzipiell werden Luftschadstoffe bei chemischen, physikalischen, biologischen und geologischen Prozessen freigesetzt.

Zu den Emissionen durch **chemische** Reaktion gehören Abgase aus technischen Einrichtungen zur Verbrennung fossiler Brennstoffe, also Kraft- und Heizwerke, Straßen-, Schienen-, Schiffs- und Luftverkehr, Müllverbrennungs- und Industrieanlagen, etc. Auch andere Verbrennungsvorgänge wie Waldbrände vor allem im Süden Europas, Strohverbrennung sowie chemische Reaktionen in Produktionsprozessen der Petroleumindustrie, der Metallindustrie, der organischen und anorganischen Industrie und der Nahrungsmittelindustrie gehören in die Liste der Emittenten.

Emissionsrelevante **physikalische** Vorgänge sind beispielsweise die Verdunstung und Freisetzung von flüchtigen Stoffen durch Transport, Lagerung und Einsatz von Lösemitteln, Kraftstoffen, Holzschutzmitteln, chemischen Reaktanten, Farben, usw. Hierzu gehören z.B auch die Tankatmung bei abgestellten Kraftfahrzeugen des Straßenverkehrs oder der Kerosinablaß bei außerplanmäßigen frühzeitigen Landungen von Langstreckenflugzeugen.

Doch auch in der Natur gibt es eine ganze Reihe bedeutender Emissionsquellen. Während **geologische** Emittenten (Vulkane, Geysire, Schwefelquellen) vor allem beim Schwefelgehalt

in der Atmosphäre über Europa eine Rolle spielen, tragen **biologische** Prozesse (Tierhaltung, Ackerbau, etc.) mit über 90% zu NH_3 und über der Hälfte zu N_2O und CH_4 bei. 20% der Substanzgruppe NMVOC - Vorläufersubstanzen für photochemische Reaktionen in der unteren Atmosphäre - werden von der natürlichen oder durch Menschen beeinflussten Vegetation, vor allem Laub- und Nadelwälder, verursacht. Doch auch Feuchtgebiete und Gewässer sind Emissionsquellen.

Den besten Überblick über die Vielfalt an Emissionsquellen gibt die vorher schon erwähnte SNAP97-Einteilung von CORINAIR mit insgesamt 414 verschiedenen Quellgruppen.

3.2 Erstellung einer gesamteuropäischen Datenbasis

Zur Erstellung einer gesamteuropäischen Datenbasis wird die detaillierteste der verfügbaren europäischen Emissionsdatenbanken als Grundlage verwendet – CORINAIR. Sie umfaßt die feinste Quellstruktur und hat durch die Verteilung auf Verwaltungseinheiten die höchste räumliche Auflösung. Da sie jedoch wie bereits erwähnt nicht alle europäischen Länder beinhaltet (s. S. 26), muß sie um die fehlenden Länder ergänzt werden, um flächendeckend für ganz Europa zu gelten. Eine wesentliche Methode zur konsistenten Vervollständigung der Datenbasis ist die Regressionsanalyse.

3.2.1 Methode Regressionsanalyse

Der Ausgangspunkt für die Regressionsanalyse ist eine bestmögliche aber unvollständige Emissionsdatenbank. Das Ziel dieses Ansatzes ist, funktionale Zusammenhänge zwischen statistischen Größen und Emissionen zu erkennen, die Koeffizienten der funktionalen Zusammenhänge zu schätzen und den bestehenden Datenbestand konsistent und detailliert zu vervollständigen.

Der vorhandene Bestand wird auf seine Einflußgrößen hin analysiert. Emissionswerte werden hier mit E bezeichnet, und Einflußgrößen oder -parameter mit P . Es besteht also ein genereller, meist linearer Zusammenhang zwischen einem Emissionswert und dessen Parametern P_1, \dots, P_N , welcher mit einer Funktion f beschrieben wird.

$$E = f(P_1, \dots, P_N) = M_0 + M_1 \cdot P_1 + M_2 \cdot P_2 + \dots + M_N \cdot P_N. \quad (3.1)$$

Die Annahme eines linearen Zusammenhangs für anthropogene Emissionen ist aus der grundlegenden Gleichung $Emission = Emissionsfaktor \cdot Aktivität$ zur Emissionsberechnung

gerechtfertigt. Besteht im einzelnen trotzdem ein nichtlinearer Zusammenhang, z.B. beim Einfluß der Temperatur auf die Kraftstoffverdunstung ($E \sim \exp(T)$), kann dieser durch einen zusätzlichen Parameter P^* in das lineare Modell integriert werden, welcher bereits den nichtlinearen Zusammenhang beinhaltet ($P^* = \exp(T)$). Die Linearität des Regressionsmodells mit dem neuen Parameter bleibt damit erhalten, da $E \sim P^*$.

Im Gegensatz zu Emissionsfaktoren, die durch Messung technischer oder anderer Einrichtungen ermittelt werden, ist für den Quotienten $\frac{E}{P_i}$ der Begriff *relative Emission* anschaulicher. Emissionen verschiedener Länder können so über eine plausible Bezugsgröße direkt miteinander verglichen werden, z.B. Emissionen pro Einwohner oder Emissionen pro Fläche.

Zu der Emission E gibt es im Datenbestand einen Wert E_l für jedes verfügbare Land l . Die entsprechenden Parameter des Landes sind $P_{1l}, P_{2l}, \dots, P_{Nl}$. Der dazugehörige Schätzwert \hat{E}_l wird bestimmt durch

$$\hat{E}_l = M_0 + M_1 \cdot P_{1l} + M_2 \cdot P_{2l} + \dots + M_N \cdot P_{Nl} \quad l = 1, \dots, L \quad (3.2)$$

bzw. in Vektorschreibweise

$$\vec{\hat{E}} = M_0 + M_1 \cdot \vec{P}_1 + M_2 \cdot \vec{P}_2 + \dots + M_N \cdot \vec{P}_N \quad (3.3)$$

mit $\vec{\hat{E}} = \begin{pmatrix} \hat{E}_1 \\ \vdots \\ \hat{E}_L \end{pmatrix}$, L - Anzahl der Länder.

Die Koeffizienten M_0, \dots, M_N werden nun durch ein geeignetes Verfahren abgeschätzt, um die Emissionswerte \vec{E} bestmöglich zu beschreiben. Ein häufig verwendetes Verfahren ist die Methode der kleinsten Fehlerquadrate, auch Minimierung der Residuen genannt, also

$$\|\vec{E} - \vec{\hat{E}}\|^2 = \sum_{i=1}^L (E_i - \hat{E}_i)^2 = \text{minimal} \quad (3.4)$$

mit

\vec{E} - Emissionswerte aus dem Datenbestand

$\vec{\hat{E}}$ - aus Schätzung von M_0, \dots, M_N berechnete Emissionswerte.

Durch Minimieren der Fehlerquadrate (Gl. 3.4) bezüglich der Einflußgrößen $P_i, i = 1 \dots N$ erhält man N Ableitungen, welche jeweils dem Wert Null gleichgesetzt werden. Dies ergibt ein lineares Gleichungssystem mit N Gleichungen, aus dem sich M_1, \dots, M_N bestimmen lassen (Hartung, 1998). M_0 folgt dann aus den Mittelwerten

$$M_0 = \bar{E} - M_1 \cdot \bar{P}_1 - \dots - M_N \cdot \bar{P}_N \quad (3.5)$$

Um ein Maß anzugeben, wie gut nun die Parameter P_i die Emission E tatsächlich beschreiben, kann die Korrelationsanalyse zu Hilfe genommen werden (Hartung, 1998).

Für die Korrelation zweier kardinaler Größen P und E gilt (**Pearsonischer Korrelationskoeffizient**):

$$r_{PE} = \frac{\sum_{i=1}^N (p_i - \bar{p})(e_i - \bar{e})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (p_i - \bar{p})^2 \cdot \sum_{i=1}^N (e_i - \bar{e})^2}} = \frac{Cov(P, E)}{\sqrt{VarP \cdot VarE}} \quad (3.6)$$

r_{PE} liegt im Wertebereich [-1,1].

Das Bestimmtheitsmaß

$$B = r_{PE}^2, \quad B \in [0, 1] \quad (3.7)$$

ist der Anteil der Varianz, der durch die Regression erklärt wird (Bamberg/Baur, 1985). Ist $B=1$, kann E vollständig durch P erklärt werden. Bei $B=0$ korrelieren P und E nicht, P trägt also nicht zur Beschreibung von E bei.

Für die **multiple** Regression, wie sie in unserem Fall angewendet wird, ergibt sich der Regressionskoeffizient über die beidseitige Multiplikation der inversen Matrix von R_{PP} mit dem Vektor der Korrelationskoeffizienten \vec{r}_{EP} (Hartung, 1998, S. 565)

$$r_{E,(P_1, \dots, P_N)} = \sqrt{\vec{r}_{EP}^T R_{PP}^{-1} \vec{r}_{EP}} \quad (3.8)$$

$$\text{mit } \vec{r}_{EP} = \begin{pmatrix} r_{EP_1} \\ \vdots \\ r_{EP_N} \end{pmatrix} \text{ und } R_{PP} = \begin{pmatrix} 1 & r_{P_1 P_2} & \dots & r_{P_1 P_N} \\ r_{P_2 P_1} & 1 & \dots & r_{P_2 P_N} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ r_{P_N P_1} & r_{P_N P_2} & \dots & 1 \end{pmatrix}$$

und analog das Bestimmtheitsmaß als Quadrat des Regressionskoeffizienten

$$B = B_{E,(P_1, \dots, P_N)} = r_{E,(P_1, \dots, P_N)}^2 \quad (3.9)$$

B stellt den Anteil der durch die multiple Regression erklärten Varianz dar.

Wurden die Regressionskoeffizienten M_0, \dots, M_N bestimmt, und hat das multiple Bestimmtheitsmaß B eine akzeptable Korrelation ergeben, können die fehlenden Emissionswerte eines weiteren Landes (L+1) mit

$$\hat{E}_{L+1} = M_0 + M_1 \cdot P_{1,L+1} + M_2 \cdot P_{2,L+1} + \dots + M_N \cdot P_{N,L+1} \quad (3.10)$$

geschätzt werden.

Um einen höheren Detaillierungsgrad zu erreichen, ist es sinnvoll, die Emissionen nach Quellgruppen getrennt in der Regressionsanalyse zu untersuchen. Daher wird zur Bezeichnung von Emissionen aus verschiedenen Quellsektoren ein zusätzlicher Index i eingeführt. Für

unterschiedliche Quellsektoren i erhält man damit unterschiedliche Regressionskoeffizienten M_{ni} :

$$\hat{E}_{il} = M_{0i} + \sum_{n=1}^N M_{ni} \cdot P_{nl}, \quad (3.11)$$

in Matrixschreibweise

$$\vec{\hat{E}}_l = \vec{M}_0 + \vec{M} \cdot \vec{P}_l \quad (3.12)$$

Man beachte, daß die länderspezifischen Parameter P nicht mit i indiziert werden, da sie für alle Quellsektoren gleichermaßen gelten.

Natürlich gelten die funktionalen Zusammenhänge jeweils nur für einen Schadstoff. Um die europäische Emissionsdatenbank zu vervollständigen, muß daher für jeden Schadstoff s getrennt die Analyse durchgeführt werden. Gl. 3.12 erweitert sich um den Index des Schadstoffes s zu

$$\vec{\hat{E}}_{ls} = \vec{M}_{0s} + \vec{M}_s \cdot \vec{P}_l \quad (3.13)$$

Die Regressionskoeffizienten \vec{M}_{0s} und \vec{M}_s sind lediglich schadstoffspezifisch, während die Emissionen $\vec{\hat{E}}_{ls}$ und die Einflußgrößen \vec{P}_l länderspezifisch sind. Die Emissionen sind zudem natürlich auch schadstoffspezifisch, d.h. mit einem Index s versehen. \vec{M} ist unabhängig vom betrachteten Land und kann deshalb zur räumlichen Extrapolation verwendet werden.

3.2.2 Auswahl der Einflußparameter

Die Auswahl der Einflußparameter \vec{P}_{lj} ist entscheidend für die Aussagekraft des Regressionsmodells. Stehen einerseits nicht genügend oder nur unbedeutende Parameter zur Verfügung, wird die Regression keinen befriedigend hohen Wert für das Bestimmtheitsmaß B ergeben ($B \in [0, 1]$). Stehen andererseits zu viele oder ungeeignete Parameter zur Verfügung, erreicht B wohl einen hohen Wert ($B \gg 0$), der jedoch auf einer Überbestimmtheit des Gleichungssystems oder auf sog. Scheinkorrelationen beruhen kann. Auch in diesem Fall würden die Ergebnisse dem tatsächlichen funktionalen Zusammenhang nicht gerecht werden.

Um den zweiten Fall zu vermeiden, werden die Emissionen nach der SNAP-Nomenklatur von CORINAIR (s. S. 27) in elf Quellgruppen untergliedert und für jede Gruppe getrennt analysiert. Die vielen emissionsrelevanten Einflußgrößen können so auf die entsprechenden Quellgruppen aufgeteilt werden und reduzieren damit die abhängigen Größen für jede Regressionsanalyse auf die wesentlichen.

Generell kann man zwei Kriterien für die Auswahl der Einflußparameter \vec{P}_l aufstellen:

1. Ihre Gesamtheit soll möglichst gut mittels Gl. 3.13 die Emissionen beschreiben.
2. Sie müssen sowohl für möglichst viele Länder Europas als auch für möglichst aktuelle Jahre verfügbar sein.

Diese beiden Kriterien konkurrieren miteinander. Denn detaillierte emissionsrelevante Größen (z.B. Brennstoffeinsatz nach Industriezweig und Brennstofftyp getrennt) würden wohl die Emissionen der entsprechenden Quellgruppe gut beschreiben können, sind jedoch wenn überhaupt nur für wenige Länder Europas verfügbar. Innerhalb der Europäischen Union sind Daten dank der europäischen statistischen Behörde EUROSTAT recht gut verfügbar. Über die Hälfte der europäischen Länder, Großteile Mittel- und Osteuropas, sind jedoch nicht in der EU. Daher gibt es für diese Länder statistische Daten in sehr viel geringerem Umfang. Für sie kann auf Quellen internationaler Behörden (IRF, UN, IEA) zurückgegriffen werden.

Doch auch innerhalb der EU fehlen häufig wichtige Kenngrößen oder sind nicht verfügbar. Z.B. sind Produktionsindizes der chemischen Industrie, die für die Ermittlung von VOC-Emissionen sehr hilfreich wären, bei EUROSTAT ausdrücklich vorhanden, jedoch aus Datenschutzgründen nicht verfügbar. Die erwerbbaeren Daten der Behörde sind daher unvollständig oder auf eine grobe Struktur aggregiert.

Daher muß zwischen diesen beiden miteinander konkurrierenden Kriterien ein sinnvoller Ausgleich gefunden werden. Als mögliche Parameter ergeben sich u.a.

- Einwohnerzahl
- Bruttoinlandsprodukt (BIP)
- Kraftfahrzeugbestände (gegliedert nach Emissionsminderungstechnik)
- Fahrleistungen verschiedener Kraftfahrzeugtypen
- Stromerzeugung durch fossil befeuerte Kraftwerke
- Anteile einzelner fossiler Brennstoffe am gesamten Brennstoffeinsatz in Kraftwerken
- Jahresdurchschnittstemperatur
- Waldfläche
- landwirtschaftliche Nutzfläche

- Energieverbräuche der Industrie, des Transportbereiches, von Haushalten etc.

Die genannten Größen können die Aktivitäten der wichtigsten Emissionsquellen beschreiben, vom Stromerzeugungsbereich und Wärmebereitstellung über den Industrie- und Transportsektor bis hin zu Quellen aus der Landwirtschaft und Natur. Sie spiegeln jedoch nicht den Einfluß der im Einsatz befindlichen Emissionsminderungstechnik wider (z.B. Kfz-Katalysatoren). Dieser muß jedoch ebenfalls berücksichtigt werden.

Nun gibt es keine direkten statistischen Größen, die Technikeinsatz in Europa unter dem Aspekt der Luftverunreinigung beschreiben. Das Statistische Jahrbuch z.B. enthält nur *Investitionen für Umweltschutz im Produzierenden Gewerbe* in Deutschland (Statistisches Bundesamt, 1996, S. 687). Daher wurden aus verfügbaren Statistiken Größen berechnet, die der Auswirkung eingesetzter Technik auf Emissionen Rechnung tragen. Vorteilhaft ist hierbei, daß mit unterschiedlich aggregierten Statistiken der Länder ein einheitlicher Index erstellt werden kann. Im Kraftfahrzeugbereich beispielsweise liegen für Länder der EU Kraftfahrzeugstatistiken nach Minderungsklasse und nach Verkehrssituation (Autobahn-, Überland, Stadtverkehr) vor (Samaras et al., 1998). Für Osteuropa hingegen wird weniger detailliert unterschieden (IRF, 1998).

So wurde in dieser Arbeit der *Index der Implementierung von Minderungstechnik im Kraftfahrzeugbereich* für EU-Europa nach

$$Index(s, l, j) = \frac{\sum^{FZtyp} \sum^{SIT} FL(l, FZtyp, SIT, j) \cdot EF(FZtyp, s)}{\sum^{FZtyp} \sum^{SIT} FL(l, FZtyp, SIT, j)} \quad (3.14)$$

berechnet, mit

FZtyp	Fahrzeugtyp	SIT	Verkehrssituation (Autobahn-, Überland, Stadtverkehr)
FL	Fahrleistung	EF	Emissionsfaktor aus (Keller et al., 1999)
l	Land	j	Jahr
s	Schadstoff		

Für Osteuropa konnte er anders als in Gl. 3.14 nicht aus verschiedenen Verkehrssituationen und nur mit weniger detaillierten Fahrzeugtypen ermittelt werden:

$$Index(s, l, j) = \frac{\sum^{FZtyp} FL(l, FZtyp, j) \cdot EF(FZtyp, s)}{\sum^{FZtyp} FL(l, FZtyp, j)} \quad (3.15)$$

Der Index kann als durchschnittlicher Emissionsfaktor der Fahrzeugflotte eines Landes interpretiert werden und hat auch dieselbe Einheit g/km. Er wird in Abhängigkeit des emittierten Schadstoffes definiert, da Minderungstechniken nicht alle Schadstoffe gleichermaßen reduzieren. Somit gibt es zu jedem betrachteten Schadstoff einen entsprechenden Index.

Für Kraftwerke wurde sowohl der Einsatz unterschiedlicher Brennstoffe als auch mögliche Emissionsminderungstechniken berücksichtigt. Der Einsatz von fossilen Brennstoffen ist u.a. durch (ESAP, 1999) gut belegt. Schwieriger erweist sich der Nachweis von Minderungstechniken in Kraftwerken in Europa. Denn entsprechende internationale Richtlinien der EU oder der UN/ECE lassen bei der Umsetzung von Minderungszielen Gestaltungsfreiheit, in welchem Quellsektor ein Land Maßnahmen realisieren kann. In Deutschland gibt es z.B. die *Großfeuerungsanlagenverordnung* als nationale Bestimmung. Ähnliches existiert auch in Österreich. Eine Berechnungsgrundlage zur Quantifizierung dieser spezifischen Emissionsminderungen in Großfeuerungsanlagen für alle europäischen Länder konnte daher nicht ermittelt werden.

Um die Minderung von Stickoxiden und Schwefeldioxid in Kraftwerken trotzdem in der Regressionsanalyse berücksichtigen zu können, wurden die verfügbaren emissionsrelevanten Informationen (nationale und europäische Umweltberichte, etc.) verwendet und in den Parametern *Denox* und *Desox* quantifiziert. Danach haben Deutschland und Österreich hohe Werte für diese Minderungsparameter. Ebenso wurden den übrigen EU-Länder noch vergleichsweise hohe Werte zugeschrieben, während für die osteuropäischen Länder geringe oder keine Minderung durch entsprechende Anlagen angenommen wurde. Die graphische Darstellung von Kraftwerksemissionen über den Brennstoffeinsatz bestätigte den großen Einfluß von Minderungstechniken in europäischen Kraftwerken und die Quantifizierung der o.g. Parameterwerte.

Der Brennstoffeinsatz in Kraftwerken wurde mit typischen Emissionsfaktoren für die betrachteten Schadstoffe gewichtet (EMEP/CORINAIR, 1996a). Damit ergeben sich schadstoffspezifische Kenngrößen des Brennstoffeinsatzes bei Kraftwerken - *Brenn_{NO_x}*, *Brenn_{SO₂}*, etc.

Eine Auswahl der Einflußgrößen ist in Abbildung 3.1 dargestellt.

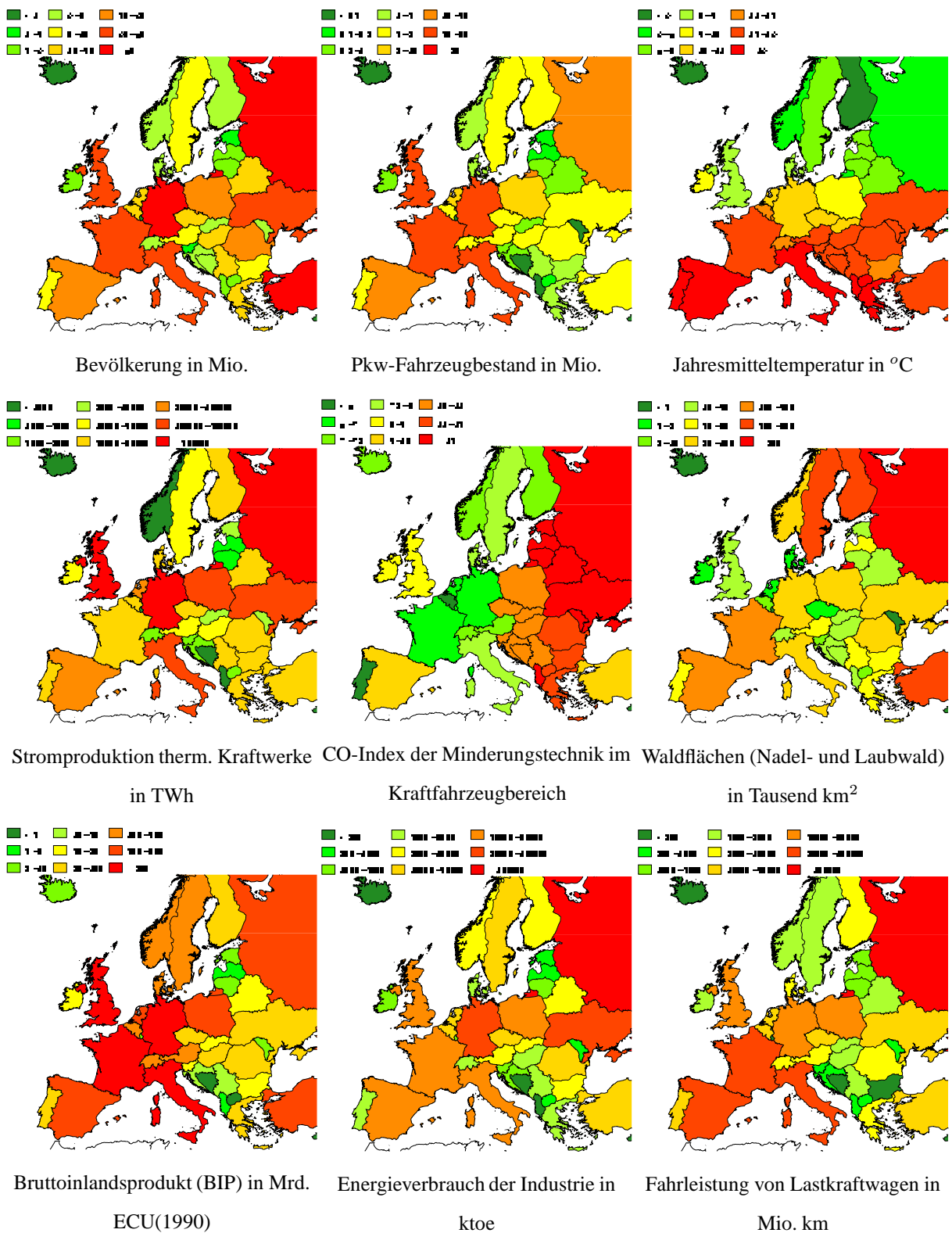


Abbildung 3.1: Eingangsgrößen für die Regressionsanalyse (Auswahl) für das Jahr 1994

Vorgehensweise

Die Regressionsanalyse erfolgt nach einem definierten Algorithmus:

Zuerst wird paarweise die Korrelation der Parameter mit der Emission ermittelt. Übersteigt der Korrelationskoeffizient des am stärksten korrelierenden Parameters einen zu definierenden Schwellwert, wird er in das Modell aufgenommen. Anschließend wird die partielle Korrelation eines jeden (noch) nicht aufgenommenen Parameters mit den Emissionswerten ermittelt. Übersteigt eine dieser Größen wiederum den Schwellwert, wird sie aufgenommen. Bei mehr als zwei aufgenommenen Parametern wird vor der erneuten Ermittlung partieller Korrelationen von nicht aufgenommenen Größen zuerst das Modell auf redundante Größen überprüft und diese gegebenenfalls wieder aus dem Modell extrahiert. Wird keine Verbesserung durch eine weitere Aufnahme oder Herausnahme einer Größe erreicht, werden die Korrelationskoeffizienten der im Modell befindlichen Parameter und das Bestimmtheitsmaß B der multiplen Regression ermittelt.

Zusammenfassung - Methode der Regressionsanalyse

Europäische Emissionsdatenbanken besitzen eine sehr heterogene, je nach Land unterschiedliche Quellstruktur. Bei der Analyse und Bearbeitung der Daten ist es daher leicht möglich, Wesentliches von Unwesentlichem nicht genügend zu unterscheiden. Einerseits können nicht alle der mehreren hunderttausend Werte einzeln überprüft werden. Auf der anderen Seite kann aber schon ein einzelner Emissionswert einen sehr hohen Anteil haben, und muß deshalb verifiziert werden. Der umfassende Ansatz der Regressionsanalyse gewährleistet, daß die Gesamtsumme aller über Europa freigesetzten Schadstoffe stets berücksichtigt wird. Mit der Methode der Regressionsanalyse fallen 'Ausreißer' leicht auf, die dann überprüft werden können.

In die Analyse fließen nur wesentliche emissionsrelevanten Kenngrößen ein. Manche dieser Größen sind auch bedeutende volkswirtschaftliche Kenngrößen eines Landes, z.B. Einwohnerzahl, BIP, Energieverbräuche, ... und gehören somit zu den gesichertsten statistischen Angaben, die auch für aktuelle Jahre in großem Umfang verfügbar sind. Zudem sind diese Kenngrößen von allgemeiner Bedeutung, so daß für andere Zwecke Prognosen und verschiedene Szenarien für die Zukunft erarbeitet wurden, die grundsätzlich auch eine Projektion im Bereich der Emissionen ermöglichen.

Eine der Regressionsanalyse sich anschließende Residualanalyse, d.h. eine Analyse der durch das Regressionsmodell nicht erklärten Anteile (Residuen) $\hat{e}_i = E_i - (M_{i0} + M_{i1} \cdot P_{i1} +$

... + $M_{iN} \cdot P_{iN}$), ermöglicht zusätzlichen Erkenntnisgewinn über eventuelle Fehler in der Ausgangsdatenbasis, die dann korrigiert werden können, oder über emissionspezifische Besonderheiten einzelner Länder oder Ländergruppen (z.B. die Großfeuerungsanlagenverordnung in Deutschland). Eventuelle nicht-lineare funktionale Abhängigkeiten der Emissionen von den Parametern P_i werden in der Residualanalyse ebenfalls deutlich (vgl. (Hartung, 1998, S. 585)), so daß auch bei unvermuteten Zusammenhängen der lineare Ansatz durch entsprechend neue Parameter beibehalten werden kann.

Die Ergebnisse der Regressionsanalyse werden in Kap. 6 auf Seite 77 vorgestellt.

3.2.3 Ergänzung von Quellen

Nachdem fehlende Länder in der Jahresdatenbasis nun anhand der Regressionsanalyse ergänzt werden können, stellt sich hier noch die Frage nach fehlenden *Emissionsquellen*.

Wie bereits erwähnt, werden immer wieder neue Emissionsquellen aufgedeckt, die nicht immer offensichtlich sind. In der Regel machen sie einen geringen Anteil an den Gesamtemissionen aus, sie können jedoch lokal oder zeitlich begrenzt durchaus relevant sein. Die stetige Aktualisierung und Erweiterung der SNAP-Nomenklatur (s. S. 26) trägt dieser Entwicklung des *Stand des Wissens* Rechnung.

Soweit möglich, d.h. soweit Berechnungsgrundlagen vorhanden sind, werden die Emissionen neuer Quellen in die europäischen Datenbanken einbezogen. Das bedeutet jedoch, daß die Datenbasis nach Stand des Wissens nicht vollständig ist, da möglicherweise die Berechnungsgrundlagen fehlen, d.h. Emissionsfaktoren mit hohem Meßaufwand erst ermittelt werden müssen, bevor die Emissionen der Quellen berechnet werden können.

Desweiteren fehlen in der CORINAIR Datenbasis, welche hauptsächlich als Grundlage dieser Arbeit dient, Quellen, die nicht explizit einem Land zugewiesen werden können. Dazu gehören beispielsweise Schiffsemissionen auf internationalen Gewässern. Da CORINAIR von Länderbeauftragten erstellt wird, wurden bislang diese Emissionen nicht in die verfügbare Datenbasis aufgenommen.

In diesem Kapitel wird die europäische Datenbasis nun um Emissionen von Quellen ergänzt, soweit ein Berechnungsgrundlage dafür vorhanden ist. Insbesondere sind dies Emissionen von Schiffen in der Ost- und Nordsee und von Flugzeugen, die durch einen Notfall bedingt Kerosin ablassen müssen.

Maritime Schiffsemissionen: Ost- und Nordsee

Die Ostsee gehört zu den am stärksten verschmutzten internationalen Gewässern. Doch auch die Luft über der See wird vor allem durch den Schiffsverkehr stark belastet. Lloyds verfügt zur Ermittlung von Emissionen über Daten zu Transportleistungen zwischen den einzelnen Seehäfen und über Informationen der im Einsatz befindlichen Schiffe. Nach (Lavender, 1999) werden in der Ostsee pro Jahr rund 180 kt NO_x , 130 kt SO_2 , 26 kt CO und 8 kt NMVOC freigesetzt. Vergleicht man diese Mengen mit den landbasierten Quellen, so kommt dies in etwa den Emissionen aller Quellen eines Landes der Größe von Ungarn gleich. Auffallend sind die im Vergleich zu NO_x und SO_2 geringen freigesetzten Mengen an CO und NMVOC. Dieser Unterschied erklärt sich direkt aus den unterschiedlichen Emissionsfaktoren von Schiffmotoren gegenüber z.B. Dieselmotoren von Lastkraftwagen. Bei Schiffen wird in der Regel mehr NO_x als CO emittiert (Kilde, 1996), während Lkws (und auch Pkws) mehr CO als NO_x freisetzen (Samaras, 1996).

Tabelle 3.1: Maritime Schiffsemissionen in t/a (Lavender, 1999)

	NO_x	SO_2	CO	NMVOC
Ostsee	181.500	128.093	26.286	8.029
Nordsee	647.615	453.507	59.362	15.000

In der Nordsee ist die Luftbelastung nochmals um das zwei- bis dreifache höher als in der Ostsee, also vergleichbar mit den Emissionen aller Quellen der sehr dicht besiedelten Niederlande. Dies ist vor allem bedingt durch die atlantischen Verbindungswege zwischen europäischen Häfen und durch die transatlantischen Transportwege. Daher tritt auch die stärkste Belastung im Kanal zwischen England und Frankreich auf. Die Werte sind im einzelnen in Tabelle 3.1 aufgeführt.

Kerosinablaß von Langstreckenflugzeugen

Für den Kerosinablaß von Langstreckenflugzeugen – obwohl lange bekannt und häufig untersucht – gibt es keine Angaben über die Mengen, die in Europa pro Jahr freigesetzt werden. Von Flughäfen und Fluggesellschaften werden die Informationen darüber auch selten bekanntgegeben, da es bei diesem Thema häufig zu Mißverständnissen in der Öffentlichkeit und Politik

kam.

In manchen Ländern, z.B. in Deutschland, sind diese Ereignisse jedoch meldepflichtig und werden daher zentral gesammelt. Über diese Datenbestände kann auf andere Länder in erster Näherung geschlossen werden. Die Häufigkeit der Ereignisse ist dafür groß genug. Insbesondere lassen sich nationale Daten auf die europäische Ebene übertragen, da

- der Flugverkehr international stark verflochten ist,
- verschiedene Fluggesellschaften häufig Flugzeuge desselben Herstellers betreiben,
- dasselbe Flugzeug in verschiedenen Ländern startet,
- nur Langstreckenflugzeuge im Notfall Kerosin ablassen müssen und daher in Europa nur internationale Flüge in Frage kommen,
- die Bedingungen eines Notfalls – medizinisch oder technisch – nicht an nationale Besonderheiten geknüpft sind.

Unter der Annahme, daß die Anzahl der Flugbewegungen (LTO-Zyklen) mit der Häufigkeit der Ablaßereignisse korrelieren, ergibt sich folgendes Bild:

In Deutschland werden bei durchschnittlich 42 Ereignissen pro Jahr insgesamt ca. 830 t Kerosin (NMVOC) freigesetzt, mit steigender Tendenz. Aus den Flugbewegungen (EUROSTAT, 1999) auf ganz Europa übertragen können ca. 5500 t abgelassenes Kerosin pro Jahr abgeschätzt werden, wobei der größte Anteil mit 1050 t auf Großbritannien entfällt. Aus Frankreich startende Langstreckenflugzeuge lassen durchschnittlich ca. 520 t Kerosin pro Jahr ab, vor allem in Lufträumen um Paris (Charles-De-Gaulle Flughafen). Im Vergleich zu den NMVOC-Emissionen des Straßenverkehrs macht die Gesamtmenge von 5500 t Kerosin in Europa anteilig weniger als 0,1% (CORINAIR, 1996) aus.

3.2.4 VOC–Untergliederung

Die gesamteuropäische Jahresdatenbasis enthält nun alle Länder und alle Quellen, für die eine Berechnungsgrundlage zur Verfügung steht. Bezüglich der verschiedenen Spurengase ist sie vollständig, differenziert jedoch die flüchtigen organischen Komponenten VOCs nicht weiter. Da Bestandteile der VOCs jedoch sehr unterschiedliche chemische Eigenschaften aufweisen können, müssen die VOC-Emissionen auf ihre Zusammensetzung hin unterschieden werden:

(Middleton et al., 1990) klassifizierte die Vielzahl der Substanzen dazu in 32 chemisch ähnliche Stoffgruppen. Die Verwendung dieser Unterteilung innerhalb des europäischen Emissionsmodells ist deshalb sehr sinnvoll, weil sie für verschiedenste Chemie-Transport-Modelle verwendbar ist. Die 32 Gruppen können zu den Stoffgruppen zusammengefaßt werden, welche für den jeweiligen Chemiemechanismus des Modells erforderlich sind.

Die Aufteilung der VOC-Emissionen muß für jede Quellgruppe getrennt durchgeführt werden. Nach Stand des Wissens konnte für alle Quellen mindestens auf der zweiten Snap-Ebene die Aufteilung der VOCs vorgenommen werden. Hierzu wurden Split-Tabellen von (Obermeier, 1998) und (Engewald et al., 1998) verwendet. Für den Straßenverkehr standen durch Messungen von (Hassel, 1998) an Kraftfahrzeugen Splittabellen auf der detaillierteren dritten Snap-Ebene zur Verfügung.

Aktuell verfügbare europäische Emissionsdatenbanken differenzieren Quellgruppen im Straßenverkehr bisher nicht nach Antriebsart und Minderungstechnik, sondern höchstens nach Fahrzeugtyp (Pkw, Lkw < 3,5 t, Lkw > 3,5 t, Mopeds und Motorräder) und Stadt-, Überland- und Autobahnverkehr. In CORINAIR wird bereits ab Snap94 die Unterscheidung in Antriebsart und Minderungstechnik vorgenommen, die verfügbaren Emissionsdaten sind jedoch auf Snap1- oder Snap2-Ebene zusammengefaßt.

Die Meßergebnisse von (Hassel, 1998) zeigen jedoch, daß Antriebsart und Minderungstechnik einen hohen Einfluß auf die VOC-Splittabellen haben. Auf europäischer Ebene wirken sich diese Unterschiede stark aus, da die Zusammensetzung der Kraftfahrzeugflotten innerhalb Europas, vor allem zwischen West- und Osteuropa, sehr unterschiedlich ist. Selbst innerhalb der EU treten nach (Samaras et al., 1998) noch deutliche Unterschiede auf. Beispielsweise besitzen die Niederlande einen Anteil von über 10% an mit Flüssiggas betriebenen Pkws und Italien noch knapp 5%, während in den anderen Ländern der EU deren Anteil vernachlässigbar ist.

Daher wurden auf Grundlage der Ergebnisse von (Hassel, 1998) unter Berücksichtigung der Zusammensetzung von Kraftfahrzeugflotten nach (Samaras et al., 1998; IRF, 1998) länderspezifische VOC-Splittabellen im Bereich *Straßenverkehr* berechnet und in das europäische Emissionsmodell integriert.

Die Gesamtemission einer Stoffgruppe erhält man nach Summation über alle Quellen gemäß Gl. 3.16:

$$E(p, l, j) = \sum_{q=1}^{\text{Anzahl der Quellgruppen}} E_q(\text{VOC}, l, j) \cdot s_q(p, l, j) \quad p = 1, \dots, 32 \quad (3.16)$$

mit p = Stoffgruppe nach (Middleton et al., 1990)

q = Quellgruppe

l = Emissionsland

j = Jahr der Emission

$E_q(VOC, l, j)$ = VOC-Emissionen des Landes l im Jahr j aus Quellgruppe q

$s_q(p, l, j)$ = Anteil der Stoffgruppe p an den VOC-Emissionen des Landes l im Jahr j aus Quellgruppe q .

Die Ergebnisse der VOC-Unterteilung sind in Kap. 6.2 (S. 81) dargestellt und erläutert.

3.3 Aktualisierung der gesamteuropäischen Datenbasis

Die erstellte gesamteuropäische Jahresdatenbasis bezieht sich nun immer noch auf das Jahr der Ausgangsdatenbasis. Das ist bei CORINAIR das Jahr 1990 bzw. 1994. Erforderlich ist jedoch eine Emissionsdatenbasis mit aktuellem Bezugsjahr.

Methoden

Bei der Aktualisierung der gesamteuropäischen Emissionsdatenbank bietet sich auch die im vorigen Unterkapitel beschriebene Methode der Regressionsanalyse an: nach der Analyse des zeitlichen Verhaltens von Jahresemissionen und der Aufstellung eines funktionalen Zusammenhangs zwischen Emissionen und jahresabhängigen Einflußparametern, werden die Emissionen nun zeitlich extrapoliert, d.h. aktualisiert.

Dieser Ansatz der multiplen Regression ist einer klassischen Fortschreibung (Trendanalyse der Inputparameter des Emissionsmodells) vorzuziehen, da die Menge an freigesetzten Luftschadstoffen stets von mehreren Faktoren abhängt. Die Regressionsanalyse identifiziert die bedeutendsten Einflußgrößen. Diese bestimmen den Verlauf der Jahreswerte. Insbesondere liefert die Regressionsanalyse eine unterschiedliche Gewichtung der verschiedenen Größen nach deren Bedeutung. Durch die der Aktualisierung vorausgehende Analyse ist zudem gewährleistet, daß die zur Fortschreibung verwendeten Parameter auch tatsächlich den Emissionsverlauf beschreiben, und nicht nur aufgrund von Plausibilitätsannahmen ihn beschreiben könnten.

In Gleichung 3.13 werden die nun jahresabhängigen Emissionen und Parameter zusätzlich mit dem Index j des Jahres versehen. Daraus ergibt sich

$$\vec{E}_{ljs} = \vec{M}_{0s} + \vec{M}_s \cdot \vec{P}_{lj} \quad (3.17)$$

j - Index des Jahres j

Da in die Regressionsanalyse nur wenige wichtige Kenngrößen eines jeden Landes einfließen, sind diese im Gegensatz zu speziellen Statistiken vollständiger und aktueller verfügbar. Zum Vergleich: Produktionsstatistiken von speziellen Industrieprozessen in Europa sind im Jahrbuch des Statistischen Bundesamtes in Wiesbaden mit 3 bis 4 Jahren Zeitverzug verfügbar, also kaum aktueller als die vollständig verfügbaren Emissionsdatenbanken. Zudem sind solche speziellen Statistiken für Europa häufig lückenhaft.

Andererseits gibt es Energieverbrauchsdaten, Kraftfahrzeugstatistiken, Bevölkerungsdaten, etc. auf europäischer Ebene schon nach 1 bis 2 Jahren und für (fast) alle Länder.

3.4 Qualitätskonzept

Emissionsdaten sind die Grundlage für Entscheidungsprozesse bei allen umweltpolitischen Maßnahmen der Luftreinhaltung. Da diese Maßnahmen international abgestimmt werden müssen und u.U. mit erheblichem Kostenaufwand verbunden sind, muß die Emissionsdatenbank Aspekten der Qualitätssicherung genügen. Sie muß 'mit bekannter Qualität und ihrem beabsichtigten Gebrauch entsprechend' (Mohnen, 1996) zur Verfügung stehen. Die hier betrachteten Aspekte der Qualitätssicherung orientieren sich an der QA/QC-Struktur des europäischen Atmosphärenforschungsprojektes EUROTRAC (Mohnen, 1996). Danach lassen sich die Ziele der Datenqualität in fünf Punkten formulieren – Genauigkeit, Präzision, Vollständigkeit, Repräsentativität und Vergleichbarkeit. Sie entsprechen damit einem Gesamtkonzept der Qualitätssicherung für europäische Atmosphärenforschung, wie sie auch in der Arbeit der UN-ECE Task Force on Emission Inventories (Mobley und Saeger, 1996) in Grundzügen zu finden ist. Diese fünf Kriterien müssen auf die ganze Emissionsdatenbank angewandt werden, um der Qualitätssicherung zu genügen.

3.4.1 Genauigkeit

Definition: Genauigkeit gilt als Maß für die Nähe eines Wertes zum wahren (unbekannten) Wert. Ungenauigkeit besteht dabei einerseits aus zufälligen Unsicherheiten (Präzision) und andererseits aus systematischen Unsicherheiten.

Das Handbuch zur Emissionserhebung von CORINAIR dient als methodische Grundlage für die dezentrale nationale Erhebung der CORINAIR Emissionen, soweit keine bessere nationale Grundlage verfügbar ist. Daher können trotz einer individuellen Berechnung je Land

systematische Ungenauigkeiten durch die Verwendung von vereinfachenden Emissionfaktoren und Methoden aus dem Handbuch auftreten.

Eine Einstufung der systematischen Unsicherheiten getrennt nach Schadstoffen und Hauptquellgruppen (SNAP1-Ebene) gibt das Handbuch selbst in Form von 5 Klassen - A bis E. Mit A werden die gesichertsten Angaben über Schadstoffe bezeichnet, mit E die unsichersten. Diese qualitative Bewertung der Unsicherheiten beruht auf 'subjektiven' Einschätzungen der Expertenkommission der EMEP/CORINAIR Task Force. Sie habe jedoch den größten Konsensus gefunden, wenn sie auch nicht bis ins Detail von jedem Mitglied der Expertenrunde die uneingeschränkte Zustimmung finde (Mobley und Saeger, 1996, S. 24).

Die Einstufung der Unsicherheiten sollte nur unter Beachtung der Bedeutung der einzelnen Quellgruppen diskutiert werden. Deshalb ist in Tabelle 3.2 diese Einstufung zusammen mit den prozentualen Anteilen der Quellgruppen an den Gesamtemissionen (CORINAIR 1990) aufgelistet. Schadstoffquellen der CORINAIR-Emissionsdatenbasis werden

mit A bewertet, wenn ihre Quellstärke 'basierend auf einer großen Anzahl von Messungen an einer Vielzahl von Einrichtungen, welche den Quellsektor vollständig repräsentiert, geschätzt wurde',

mit B, wenn ihre Quellstärke 'basierend auf einer großen Anzahl von Messungen an einer Vielzahl von Einrichtungen, welche den Quellsektor größtenteils repräsentiert, geschätzt wurde',

mit C, wenn ihre Quellstärke 'basierend auf einigen Messungen an wenigen repräsentativen Einrichtungen oder aufgrund einer faktenbasierten Expertenberechnung geschätzt wurde',

mit D, wenn ihre Quellstärke 'aufgrund einer einzelnen Messungen oder aufgrund einer teils fakten-, teils annahmenbasierten Expertenberechnung geschätzt wurde',

mit E, wenn ihre Quellstärke 'aufgrund einer rein annahmenbasierten Expertenberechnung geschätzt wurde'.

Zufällige Unsicherheiten als weiterer Teil der *Genauigkeit* werden im nächsten Unterpunkt diskutiert.

Tabelle 3.2: Einstufung der Unsicherheiten von Emissionen nach (Mobley und Saeger, 1996, S. 25) und prozentualer Anteil an den Gesamtemissionen der Schadstoffe in Klammern

SNAP ¹	SO ₂	NO _x	VOC	CO	NH ₃	CH ₄	N ₂ O
1	A (53.6)	B (21.0)	C (0.3)	B (1.2)	(0.0)	C (0.1)	E (5.2)
2	B (10.9)	C (4.2)	C (4.5)	C (14.3)	(0.0)	C (1.4)	E (2.4)
3	A (25.0)	B (13.6)	C (0.7)	B (11.8)	(0.0)	C (0.2)	E (2.9)
4	B (3.3)	C (2.2)	C (5.6)	C (4.6)	E (3.0)	D (0.2)	D (18.9)
5 ²	C (0.2)	C (0.5)	C (6.3)	C (0.1)		D (22.9)	
6		(0.0)	B (22.6)				
7	C (2.6)	C (43.8)	C (31.1)	C (55.8)	E (0.2)	C (0.4)	E (1.6)
8	C (2.0)	D (12.9)	D (3.1)	D (3.2)		D (0.1)	D (0.3)
9 ³	B (0.2)	B (1.0)	B (1.3)	C (4.4)		C (1.3)	E (0.3)
9 ⁴	C (0.1)	C (0.4)	C (1.0)	C (2.0)	E (2.2)	D (18.0)	E (0.4)
10	(0.0)	D (0.3)	D (3.5)	D (0.8)	D (92)	D (32.6)	E (38.6)
11	D (2.1)	D (0.3)	D (20.0)	E (2.0)	E (2.0)	E (22.9)	E (29.4)

¹ - Quellgruppen nach SNAP1-Ebene (EMEP/CORINAIR, 1998), s. S. 27

² - leere Felder: keine Emissionen; 0.0: Emission zwischen 0 und 0.05 Prozent

³ - Abfallbehandlung

⁴ - Deponien

3.4.2 Präzision

Definition: Präzision gilt als Maß für die Abweichung zwischen Datenwerten, die - individuell ermittelt - denselben Sachverhalt wiedergeben sollen. Als Ausdruck für *Präzision* kann die Standardabweichung angegeben werden.

Bei der Berechnung von Emissionen können 'zufällige' Abweichungen verschiedene Ursachen haben:

- unterschiedliche Statistikquellen
- Verwendung unterschiedlicher Methoden des Handbuches
- menschliche Fehler (in Rechenprogrammen, bei Eingabe von Daten, zu grobes Runden, etc.)

- Rechenungenauigkeiten
- Fehler bei der Datenübertragung, Datenweitergabe

Diese Fehler können statistisch als rein zufällig betrachtet werden, da keine bevorzugte Abweichtendenz vorherrscht.

Da in der Regel Emissionen eines Landes durch den hohen Aufwand nicht mehrmals von unabhängigen Personen auf unterschiedlichem Wege ermittelt werden, können hier nicht wie z.B. bei einer Messung n Stichproben genommen und aus ihnen die Standardabweichung als Maß der Präzision ermittelt werden. Daher wird der Weg über Konfidenzintervalle beschritten:

Aussagen über die Präzision der europäischen Emissionsjahreswerte können über die Ergebnisse der Regressionsanalyse getroffen werden. Zu jedem Schätzwert (Prognosewert) \hat{E} kann ein Konfidenzintervall I um \hat{E} bestimmt werden, das mit einer Wahrscheinlichkeit von $1 - \gamma$, der Vertrauenswahrscheinlichkeit, den Schätzwert bedeckt. Wird γ klein gewählt, ist das Intervall I entsprechend groß. I wird wie folgt berechnet (Hartung, 1998):

$$I = [\hat{E} - d, \hat{E} + d] \quad (3.18)$$

$$\hat{E} = M_0 + \sum_{j=1}^N M_j \cdot P_j \quad , \quad d = \sqrt{s^2 \vec{x}^T C \vec{x}} \cdot t_{n-N-1; 1-\gamma/2} \quad (3.19)$$

I Konfidenzintervall

\hat{E} Schätzwert

d Abstand zum Schätzwert

mit

$$C = (X^T X)^{-1} \quad \text{und} \quad X = \begin{pmatrix} 1 & P_{11} & P_{21} & \dots & P_{N1} \\ 1 & P_{12} & P_{22} & \dots & P_{N2} \\ 1 & P_{13} & P_{23} & \dots & \cdot \\ \vdots & \vdots & \vdots & \dots & \vdots \\ 1 & P_{1n} & P_{2n} & \dots & P_{Nn} \end{pmatrix} \quad , \quad \vec{x} = \begin{pmatrix} 1 \\ P_1 \\ P_2 \\ \cdot \\ P_N \end{pmatrix} \quad ,$$

wobei \vec{x} die Realisation der Parameter P ist, aus der der Schätzwert \hat{E} ermittelt wird, und P_{ij} die Werte der Einflußparameter für diese Regression sind.

$t_{n-N-1; 1-\gamma/2}$ ist die t-Verteilung, deren Werte in verschiedenen Statistikbüchern nachgeschlagen werden können (Hartung, 1998; Bamberg/Baur, 1985; Heil, 1991), N die Anzahl der abhängigen Größen, s^2 der Schätzwert des Streuungsparameters σ^2 mit

$$s^2 = \frac{1}{n - N - 1} \cdot \sum_{i=1}^n \left(E_i - M_0 - \sum_{j=1}^N M_j \cdot P_{ji} \right)^2 \quad (3.20)$$

Das Konfidenzintervall I kann zu jedem Schätzwert \hat{E} bestimmt werden. Da die Regression für jeden Schadstoff s und jede Quellgruppe q getrennt durchgeführt wird, ergibt sich ein

Intervall I mit Vertrauenswahrscheinlichkeit $1 - \gamma$ zu \hat{E} in Abhängigkeit der Regressionskoeffizienten \vec{M}_{0s} und \vec{M}_s (s. Gl. 3.13).

3.4.3 Vollständigkeit

Definition: Vollständigkeit gilt als Maß für die Menge an gültigen bzw. das Fehlen von erforderlichen Werten.

Vollständigkeit muß bezüglich einzelner Merkmale festgestellt werden. Eine Datenbasis gilt dann als vollständig bzgl. eines Merkmals, wenn *nach aktuellem Stand des Wissens* alle erforderlichen Ausprägungen dieses Merkmals in ihr enthalten sind. Auf europäischer Ebene ergeben sich vier Kriterien der Vollständigkeit.

- A Vollständigkeit bzgl. Länder
- B Vollständigkeit bzgl. Bezugsjahr
- C Vollständigkeit bzgl. emittierten Stoffen
- D Vollständigkeit bzgl. Quellen

Der aktuelle Stand des Wissens spielt eigentlich nur in Punkt D – Vollständigkeit bzgl. Quellen – eine Rolle, da immer wieder neue Quellen 'entdeckt' werden. Zwischen dem Auffinden einer Quelle und der tatsächlichen Bestimmung von Emissionen dieser Quelle mittels geeigneter Berechnungsgrundlagen liegen oft Jahre. Daher ist die gesamteuropäische Emissionsdatenbasis keineswegs vollständig bzgl. Quellen.

Bzgl. Länder läßt sich Vollständigkeit leicht überprüfen. Als erforderlich gelten alle europäischen Länder ('flächendeckend' – s. S. 23). Vollständigkeit bzgl. des Bezugsjahres ist vor allem durch die Aktualität der Emissionsdatenbank in Frage gestellt. In der Regel werden Emissionsdaten für atmosphärische Modelle benötigt, deren Bezugsjahr nicht länger als 5 Jahre zurückliegt, da auch meteorologische Daten nicht unbegrenzt lange verfügbar und kompatibel sind. Wenn die Emissionsdatenbank die vergangenen zehn Jahre abdeckt, kann also Vollständigkeit bzgl. des Bezugsjahres postuliert werden.

Das Kriterium der *Vollständigkeit bezüglich der emittierten Stoffe* wird im wesentlichen durch Chemie-Transport-Modelle (CTM) festgelegt. Die erforderlichen Substanzen sind CO, NH₃, NO_x, SO₂ und NMVOC, wobei letzteres in Substanzgruppen unterteilt sein muß, die eine Anpassung an den Chemie-Mechanismus des CTMs ermöglichen.

3.4.4 Repräsentativität

Definition: Repräsentativität gilt als Maß dafür, inwieweit ein Datenwert einem Emissionsereignis entspricht. Ein Emissionsereignis in diesem Sinne wird festgelegt durch Ort und Zeit der Emission, die emittierte Substanz und die emittierende Quelle.

Repräsentativität von Emissionsdaten wird wie Vollständigkeit auf die genannten vier Kriterien hin untersucht.

A Repräsentativität bzgl. Länder

B Repräsentativität bzgl. Bezugsjahr

C Repräsentativität bzgl. emittierten Stoffen

D Repräsentativität bzgl. Quellen

Da es in Europa im vergangenen Jahrzehnt mehrere Länder gab, deren geographische Grenzen sich änderten, ist die Repräsentativität des Ländernamens nicht ohne weiteres gegeben. Die zu beachtenden Länder sind:

- Deutschland ehemals BRD und DDR (1990)
- Tschechien und Slowakien (1993)
- ehemaliges Jugoslawien, heute Slovenien, Kroatien, Bosnien-Herzegovina, Mazedonien und Serbien/Montenegro (1991/92)
- früherer europäische Teil der Sowjetunion, heute Rußland, Weißrußland, Ukraine, Estland, Lettland, Litauen, Moldavien (1993)

Das sind bereits sechzehn der rund vierzig Länder Europas, für die eine Definition erforderlich ist.

Um eine Vereinheitlichung und konsistente Bezeichnung vorzunehmen, werden die Emissionen den territorialen Einheiten, wie sie 1999 bestehen, zugeordnet, selbst wenn zum Zeitpunkt der Emission das Land noch nicht in seinen heutigen Grenzen existierte. D.h. Emissionen aus Tschechien von 1990 sind tatsächlich Emissionen aus dem Gebiet der damaligen Tschechoslowakei, das heute Tschechien entspricht. Bis auf Deutschland bedeutet dies in allen o.g. Fällen auch eine detailliertere räumliche Aufgliederung, so daß Zusammenfassungen in ehemalige größere Ländergebiete leicht möglich sind.

Für Rußland ergibt sich ein weiterer Definitionsbedarf, um die Repräsentativität zu gewährleisten. Für die europäische Emissionsdatenbasis umgrenzt 'Rußland' den europäischen Teil des Landes - westlich des Urals.

Neben der Beachtung von territorialen Änderungen ist die Repräsentativität bzgl. Länder bei Emissionsquellen in Frage gestellt, die Ländergrenzen überschreiten. Hierzu gehören verschiedenste Transportsysteme, beispielsweise Flugzeuge, Straßenverkehr, Züge, Schiffe und Transportnetze (Pipelines) für Erdgas, Erdöl, etc. Da es sich aber überwiegend um wechselseitige Verschiebungen handelt (Flugzeuge, Straßenverkehr, Schiffe und Züge), gleichen sich diese Grenzeffekte größtenteils aus oder sind anteilig an den Gesamtemissionen vernachlässigbar (Pipelines).

Bei Bezugsjahr und emittierten Stoffen läßt sich Repräsentativität verhältnismäßig einfach angeben. In der Untergliederung der Quellen wurde in den SNAPs (EMEP/CORINAIR, 1998) und im CORINAIR Handbuch (EMEP/CORINAIR'98, 1998) per detaillierten Definitionen eine größtmögliche Abgrenzung der Quellen zueinander angestrebt, um Repräsentativität diesbezüglich zu gewährleisten.

3.4.5 Vergleichbarkeit

Definition: Vergleichbarkeit gilt als Maß dafür, inwieweit ein Datenwert oder Datensatz in Bezug zu einem anderen gestellt werden kann.

Die Notwendigkeit, *Vergleichbarkeit* als fünften Punkt in die Qualitätssicherung aufzunehmen, ergibt sich aus der interdisziplinären und über viele Arbeitsgruppen vernetzten Struktur von Forschungsprojekten im Bereich Luftreinhaltung. Das Kriterium *Vergleichbarkeit* soll eine definierte Schnittstelle bei Datenaustausch und -vergleich gewährleisten und die Integration verschiedener Datensätze ermöglichen.

Direkte *Vergleichbarkeit* kann grundsätzlich nicht zwischen Emissionen und Immissionen hergestellt werden. Denn durch Transportvorgänge (Ausdünnung, Deposition, etc.) und chemische Transformation (Photooxidantienbildung, u.a.) können die Spurengase einer einzelnen Emissionsquelle nicht mehr in direkten Bezug zu den gemessenen Konzentrationen am Receptor gebracht werden.

4 Räumliche Verteilung der Emissionen

Die im vorigen Kapitel erstellte Jahresdatenbasis besitzt eine räumliche Struktur, die sich auf ganze Länder oder auf subnationale Verwaltungseinheiten (Landkreise, Départements, Counties, etc.) bezieht. Die meteorologischen Rahmenbedingungen, die den physikalischen Transport und die chemische Umwandlung der Spurengase nach ihrer Freisetzung bestimmen, sowie die stoffliche Zusammensetzung der Emissionen selbst variieren jedoch auch innerhalb der Verwaltungseinheiten noch sehr stark von Ort zu Ort. Daher muß die Emissionsdatenbasis eine höhere als die gegebene räumliche Auflösung aufweisen, d.h. die Emissionen müssen genauer ihrem Ursprungsort zugeordnet werden können als großflächig auf Verwaltungseinheiten (s. S. 23). Dies wird mit den im folgenden vorgestellten Methoden erreicht.

4.1 Untergliederung von Quellen nach ihrer räumlichen Struktur

Um Emissionen räumlich genauer zuordnen zu können, werden mit Hilfe eines geographischen Informationssystems (GIS) zusätzliche georeferenzierte Daten in das europäische Emissionsmodell integriert. Diese zusätzlichen Daten ermöglichen eine genauere Allokation von Emissionsquellen und damit eine Verbesserung der räumlichen Auflösung. Speziell für CORINAIR müssen zusätzlich noch digitale Karten der Verwaltungseinheiten in Europa mit integriert werden, die EUROSTAT, die statistische Behörde der EU, zur Verfügung stellt.

Grundsätzlich lassen sich Emissionsquellen nach ihrer geographischen Struktur in drei Gruppen gliedern:

- a Punktquellen sind Emissionsquellen mit sehr hoher Emissionsrate und relativ geringer räumlicher Ausdehnung.
- b Linienquellen sind Emissionsquellen mit linienförmigem Verlauf und vernachlässigbarer Breite.
- c Mit Flächenquellen werden Emissionsquellen bezeichnet, welche tatsächlich eine flächenhafte Struktur aufweisen (z.B. landwirtschaftliche Flächen), oder kleine Emissionsquellen in hoher Dichte, die aufgrund ihrer großen Zahl wie eine gleichmäßig emittierende Fläche behandelt werden können (z.B. Feuerungsanlagen von Wohnhäusern).

Gemäß ihrer unterschiedlichen räumlichen Struktur werden diese Quellgruppen auch mit unterschiedlichen Methoden genauer allokiert.

4.1.1 Punktquellen

Nach (EMEP/CORINAIR, 1996a) umfassen Punktquellen konkret folgende Emittenten:

- Kraftwerke mit einer thermischen Kapazität von mindestens 300 MW
- Raffinerien
- Produktionsanlagen von Salpeter- und Schwefelsäure
- Stahl/Eisen-Anlagen mit Produktionskapazitäten von mindestens 3Mt pro Jahr
- Papierindustrie mit Produktionskapazitäten von mindestens 100kt pro Jahr
- Autolackierstraßen mit Kapazitäten von mindestens 100 000 Fahrzeugen pro Jahr
- Flughäfen mit mindestens 100 000 LTO Zyklen pro Jahr
- alle Quellen, die pro Jahr mehr als 1000 t SO₂, NO_x oder VOC oder mehr als 300 000 t CO₂ emittieren

Im letzten Punkt sind beispielsweise auch Heizwerke, Müllverbrennungsanlagen, eine Vielzahl an Produktions- und Verbrennungsanlagen der Industrie und die italienischen Vulkane Vesuv und Ätna enthalten.

Für alle Punktquellen werden die geographischen Koordinaten in das europäische Emissionsmodell integriert. Diese sind größtenteils bereits in den Ausgangsdatenbasen enthalten und können von dort übernommen werden. Fehlende Punktquellenkoordinaten konnten durch Befragung von Länderexperten ermittelt und in das Modell integriert werden.

Damit können diese Großemittenten, die vor allem bei Schwefeldioxidemissionen einen erheblichen Anteil haben, am genauesten lokalisiert werden.

4.1.2 Linienquellen

Zu den Linienquellen zählen ausschließlich Transportwege für Personen und Güter, d.h. Straßenverkehr, Eisenbahnen, Schiffe und von untergeordneter Bedeutung auch Pipelines.

Der **Straßenverkehr** wird unterschieden in Stadt-, Überland- und Autobahnverkehr. Der Stadtverkehr wird aufgrund der hohen Straßendichte als flächenhafte Quelle behandelt. Eine Unterscheidung einzelner innerstädtischer Straßen ist bei mesoskaligen Chemie-Transport-Modellen nicht erforderlich. Als Linienquellen verbleiben noch der Überland- und Autobahnverkehr. Um deren Emissionen genauer lokalisieren zu können, wird ein digitales europäisches Straßennetz (ESRI, 1993) in das GIS-basierte Emissionsmodell implementiert. Dieses Straßennetz ist in Abbildung 4.1 graphisch dargestellt.

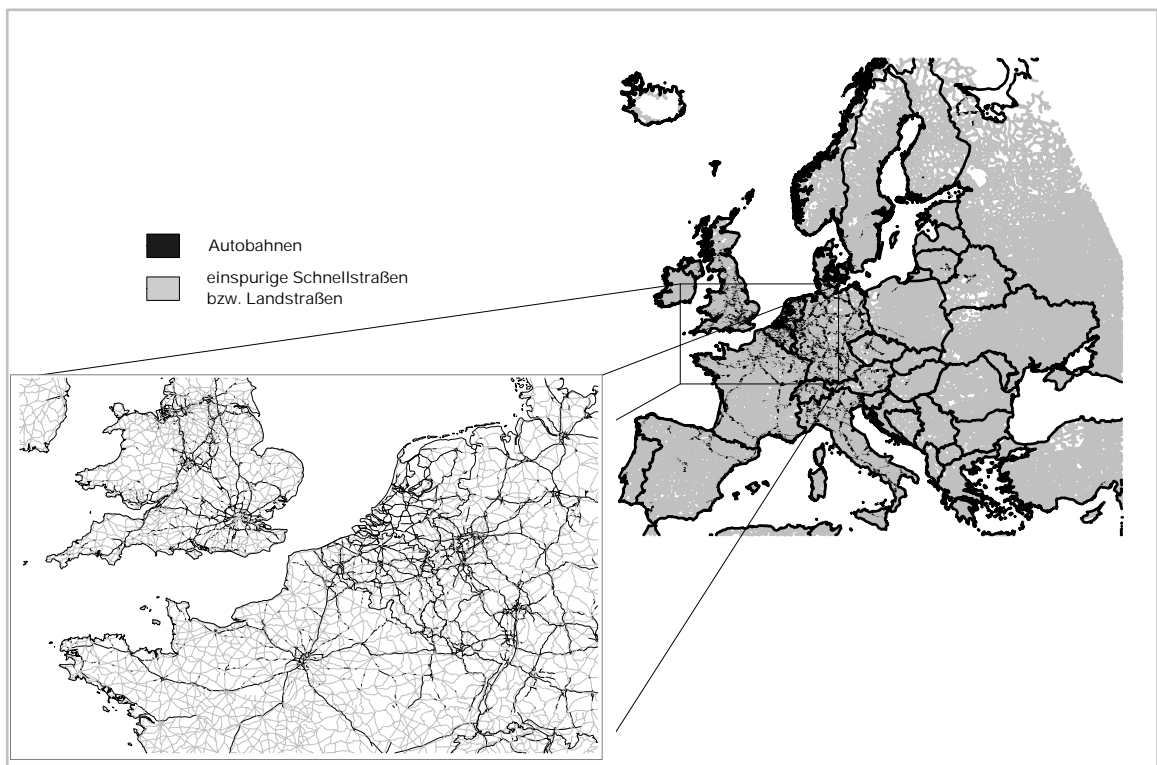


Abbildung 4.1: Europäisches Netz für Straßenverkehrswege: Überlandstraßen und Autobahnen

Die Auflösung des Straßennetzes entscheidet über die Genauigkeit, mit der Straßenverkehrsemissionen räumlich zugeordnet werden können. Die durchschnittliche Streckenlänge zwischen zwei Punkten des digitalen DCW-Straßennetzes beträgt 1,5 km. Damit ist eine räumliche Auflösung von Emissionen auf ein Modellgitter von wenigen Kilometern Kantenlänge noch sinnvoll.

Ebenfalls wie die Linienquellen des Straßenverkehrs werden Emissionen des **Eisenbahnverkehrs** (Lokomotiven) mit dem Wegenetz für Eisenbahnen aus (ESRI, 1993) lokalisiert.

Bei **Schiffsemissionen** spielen vor allem die Transporte auf internationalem Gewässer (Nordsee, Ostsee, Mittelmeer) eine wichtige Rolle. Die Binnenschifffahrt hingegen trägt nur wenig zur Luftbelastung bei ($< 0,5\%$ nach (EMEP/CORINAIR, 1996a)). Binnenschiffsverkehr wird von internationalem Schiffsverkehr per Definition durch die Küstenlinie abgegrenzt. Schiffe, die also von einem Binnenhafen in internationales Gewässer fahren, werden bis zur Küste des Landes als Binnenverkehr gerechnet und ab Küste als internationaler Schiffsverkehr.

Die Emissionen auf internationalem Gewässer sind nicht in der CORINAIR-Datenbasis enthalten, da diese nur nationale Emissionen zusammenfaßt. Daher wurden für die Nord- und Ostsee Emissionswerte gesondert ermittelt (Lavender, 1999).

In verfügbaren digitalen Geodatenbasen sind keine Schiffsrouten auf internationalem Gewässer vorhanden, um die vorhandenen Schiffsemissionen zu lokalisieren. Deshalb wurden die Verkehrswege eigens berechnet. Für die Ostsee mußte dies auf Basis der Ablege- und Ankunftshafen erfolgen, da die Emissionen für jede einzelne Verbindung zwischen den 225 relevanten Häfen der Ostsee (Lavender, 1999) vorlagen. Als Grundregel für die Bestimmung der Seewege wurde die kürzeste Verbindung auf Wasser zwischen Ablege- und Ankunftshafen angenommen. Für die Nordsee lagen die Emissionen bereits in der räumlichen Struktur des EMEP-Gitters (s. Kap. 2.3) vor, so daß diese Auflösung übernommen wurde.

Die Schiffsemissionen auf internationalen Gewässern konnten somit im Emissionsmodell über die Seerouten bzw. die Verteilung auf dem EMEP-Gitter ihrem Entstehungsort zugewiesen werden.

Der **Flugverkehr** wird aus Sicht der Emissionsermittlung grundsätzlich unterschieden in Start- und Landezyklus (LTO - Landing-and-Taking-Off) und den Reiseflug. Zu den LTO-Zyklen zählen die Transportvorgänge ziviler nationaler und internationaler Luftfahrt, welche in offiziellen Flugplänen erscheinen. Darin sind enthalten Start (TAKE-OFF) und Landung (APPROACH) von Personen- und Frachtflugzeugen (Privatflugzeuge eingeschlossen) bis Flughöhen unter 1000 m und die Fortbewegung der Maschinen von und zu den Rollfeldern auf dem Flughafenareal (TAXI-IN und TAXI-OUT).

LTO-Emissionen sind bereits als Punktquellen in Kap. 4.1.1 berücksichtigt. Der Reiseflug andererseits findet in Höhen von mehreren Tausend Meter statt, also weit oberhalb der atmosphärischen Mischungsschichtgrenze. Die dabei emittierten Gase tragen somit unwesentlich zu den chemischen Prozessen in der atmosphärischen Grenzschicht bei und werden deshalb bei der räumlichen Zuordnung nicht weiter berücksichtigt.

4.1.3 Flächenquellen

Zu den Flächenquellen gehören alle übrigen Emissionsquellen, die weder Punkt- noch Linienquellen sind. Mit eingeschlossen sind hier z.B. Stadtstraßenverkehr, Hausfeuerungen, Industrieanlagen sofern sie nicht Großemittenten (Punktquellen) sind, landwirtschaftliche Nutzflächen und natürliche Flächen (Wälder, Seen, etc.).

Flächenquellen lassen sich durch georeferenzierte Landnutzungs- und Landbedeckungsdaten genauer lokalisieren. Hierfür stehen mehrere Datenquellen zu Verfügung. Abbildung 4.2 zeigt eine Landbedeckungskarte von Europa, die verschiedene Datenquellen beinhaltet (Smiatek, 1999).

CORINE

Die CORINE-Landbedeckungsdaten - CoORDination, INformation, Environment - sind auf Initiative der damaligen EG entstanden (EEA, 1997), um Informationen zum Zustand der Umwelt und natürlicher Ressourcen zusammenzustellen und deren Konsistenz zu gewährleisten. Im Rahmen des CORINE-Programms wurde auch die CORINAIR Emissionsdatenbank initiiert.

Die CORINE-Geodaten sind in einem Gitter von $250m \cdot 250m$ Auflösung verfügbar, das weite Teile Westeuropas bedeckt. Sie wurden von den einzelnen Ländern durch Digitalisierung von Landkarten und automatische Bilderkennung von Satellitenaufnahmen erstellt und einer Qualitätsüberprüfung unterworfen. Die Landbedeckung ist in 44 Typen unterschieden, darunter die bereits oben erwähnten Typen Siedlungsgebiete, Waldflächen und landwirtschaftliche Nutzflächen.

Digital Chart of the World

Die geographische Datenbank von (ESRI, 1993) umfaßt die ganze Erde. Sie ist im Gegensatz zu den anderen Geodaten jedoch nicht flächendeckend, d.h. nicht alle Flächen sind kategorisiert. Sie beinhaltet ausgewählte geographische Strukturen wie Städte, Binnenseen, Gletscher, Flüsse und Verkehrsnetze als Polygone bzw. Linien, deren räumliche Auflösung in etwa vergleichbar mit den CORINE-Daten ist. Die geographische Datenbank DCW ist damit für Emissionsmodelle im β - und γ -mesoskaligen Bereich (s. S. 22) verwendbar.

Ausgehend von den vorhandenen Landnutzungstypen können Emissionen ihrem Entstehungsort zugeordnet werden. Dabei ist zu beachten, daß manche Landnutzungstypen nicht zwingend alle tatsächlichen Flächen beinhalten, wie sie als Emissionsquellgruppe zusammengefaßt sind. Beispielsweise beinhaltet der Landnutzungstyp *Industrieflächen* oftmals nicht Industriegebiete in der Nähe von Wohngebieten. Diese werden meist als *Siedlungsgebiet* gekennzeichnet. Im Zweifelsfall wurden zur Lokalisierung von Flächenquellen die entsprechenden Gebiete zusammengefaßt. Tabelle 4.1 listet die verwendeten Landnutzungstypen und die ihnen zugeordneten Emissionsquellen auf. Wo detaillierte Angaben zur Lokalisierung von Quellen unzureichend sind, kann zumindest das **Ausschlußprinzip** angewendet werden:

Wenn man Quellen nicht lokalisieren kann, so weiß man zumindest, wo sie sich mit Sicherheit nicht befinden können.

Dies trifft vor allem für Hochgebirge und Binnengewässer zu, wo keine oder nur sehr spezifische anthropogene Emissionsquellen zu finden sind (s. Tabelle 4.1).

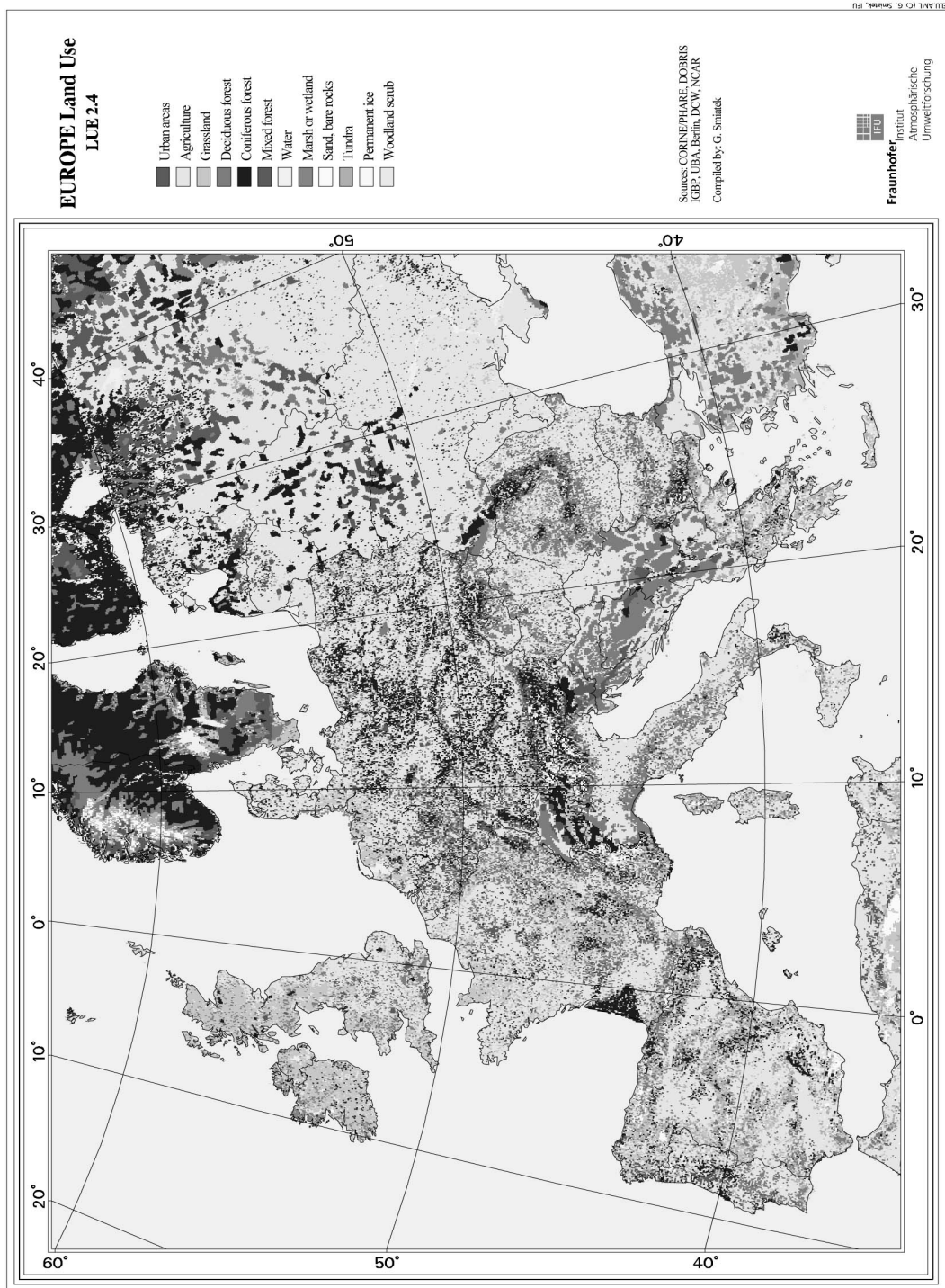


Abbildung 4.2: Landbedeckungsdaten Europa nach (Smiatek, 1999)

Tabelle 4.1: Landbedeckungstypen - Zuordnung von Emissionen

Landbedeckung	zugeordnete Emissionsquellen
bebautes Gebiet (Siedlungsgebiete, Industrieanlagen)	Heizwerke Kleinverbraucher (Krankenhäuser, Schulen, etc.) Stadtverkehr (Pkw, Lkw, Busse, Krafträder) Verdunstungen aus abgestellten Kraftfahrzeugen Verdunstungen aus Betankungsvorgängen an Tankstellen mobile Quellen im Haushalt und Garten (Rasenmäher, Holzspalter, Kettensägen, Ackerfräsen, Schneemobile, etc.) industrielle Kraftwerksanlagen industrielle Produktionsprozesse Müllbehandlung (Verbrennungsanlagen, Deponien, Kompostierung, Kläranlagen, Latrinen) Kohlehalden, Untertagebau Lösemittelverbrauch in Industrie, Gewerbe und Haushalten (Farben, Trockenreinigung, chemische Produktion, Druckindustrie, Holzschutzanwendung, Klebstoffanwendung, Fahrzeugentwachsung, Unterbodenschutz bei Kraftfahrzeugen) Menschen (Organismus)
landwirtschaftliche Nutzfläche (Acker, Wiese, etc.)	Tierexkreme mobile Quellen (Traktoren, Mähdrescher, etc.) Stoppelfeldverbrennung Verbrennung von sonstigen landwirtschaftlichen Abfällen Pflanzenanbau mit und ohne Dünger
Wald	(biogene Emissionen) Waldbrände mobile Quellen (Forstarbeit)
Tagebaugruben	Kohlentagebau
Binnengewässer	Freizeitboote Verkehrsschiffe, Fähren
Gletscher, Fels, Ödland, etc.	-

5 Zeitliche Verteilung der Emissionen

Photochemische Prozesse in der Atmosphäre hängen von vielen Parametern ab, die sich schnell ändern können: Sonneneinstrahlung, Luftfeuchtigkeit, Windstärke und -richtung, etc. Von entscheidender Bedeutung ist daher die Kenntnis über die zeitliche Variabilität der Freisetzung von Luftschadstoffen. Am stärksten fallen die Schadstoffe ins Gewicht, die zur Zeit der höchsten Sonneneinstrahlung bereits in der Luft vorhanden sind und noch nicht durch Luftbewegungen oder Diffusion verdünnt wurden, also die Emissionen, die am Vormittag desselben Tages emittiert wurden. Die Bestimmung des Emissionszeitraumes zur Modellierung von photochemischen Prozessen muß daher mindestens eine Unterteilung in Vormittag und Nachmittag beinhalten; besser ist jedoch eine Angabe des zeitlichen Emissionsverlaufs auf Stunden genau.

In diesem Kapitel werden Methoden vorgestellt, die eine stündliche Auflösung der Gesamtemissionen in Europa ermöglichen.

5.1 Methode der zeitlichen Auflösung

Emissionsrelevante Prozesse weisen sehr unterschiedliche Zeitprofile auf. Man kann prinzipiell zwischen zeitabhängigen und zeitunabhängigen Prozessen unterscheiden. Unter den zeitabhängigen Prozessen ist eine weitere Untergliederung in periodisch und aperiodisch sinnvoll, so daß insgesamt drei charakteristische Prozeßgruppen betrachtet werden:

- A zeitunabhängige Prozesse
- B periodische Prozesse
- C aperiodische Prozesse

Zu den **zeitunabhängigen** Prozessen zählt z.B. die Verbrennung von Kohle in einem Grundlastkraftwerk - abgesehen von Wartungszuständen ist der Zustand des Kraftwerks stationär und die Emissionen sind im zeitlichen Verlauf konstant - sowie verschiedene Industrieprozesse (Hochöfen, Stahlwerke, Raffinerien, ...). Ausgeprägte **periodische** Prozesse, bei denen Luftschadstoffe freigesetzt werden, sind z.B. der Straßenverkehr, Spitzenlastkraftwerke oder verschiedene Produktionsprozesse. **Aperiodisch** verlaufen nur wenige Prozesse, die für den

Schadstoffgehalt in der Atmosphäre von Bedeutung sind. Zu ihnen gehören etwa die Belieferung von Tankstellen, die Eruptionen von Vulkanen und Waldbrände.

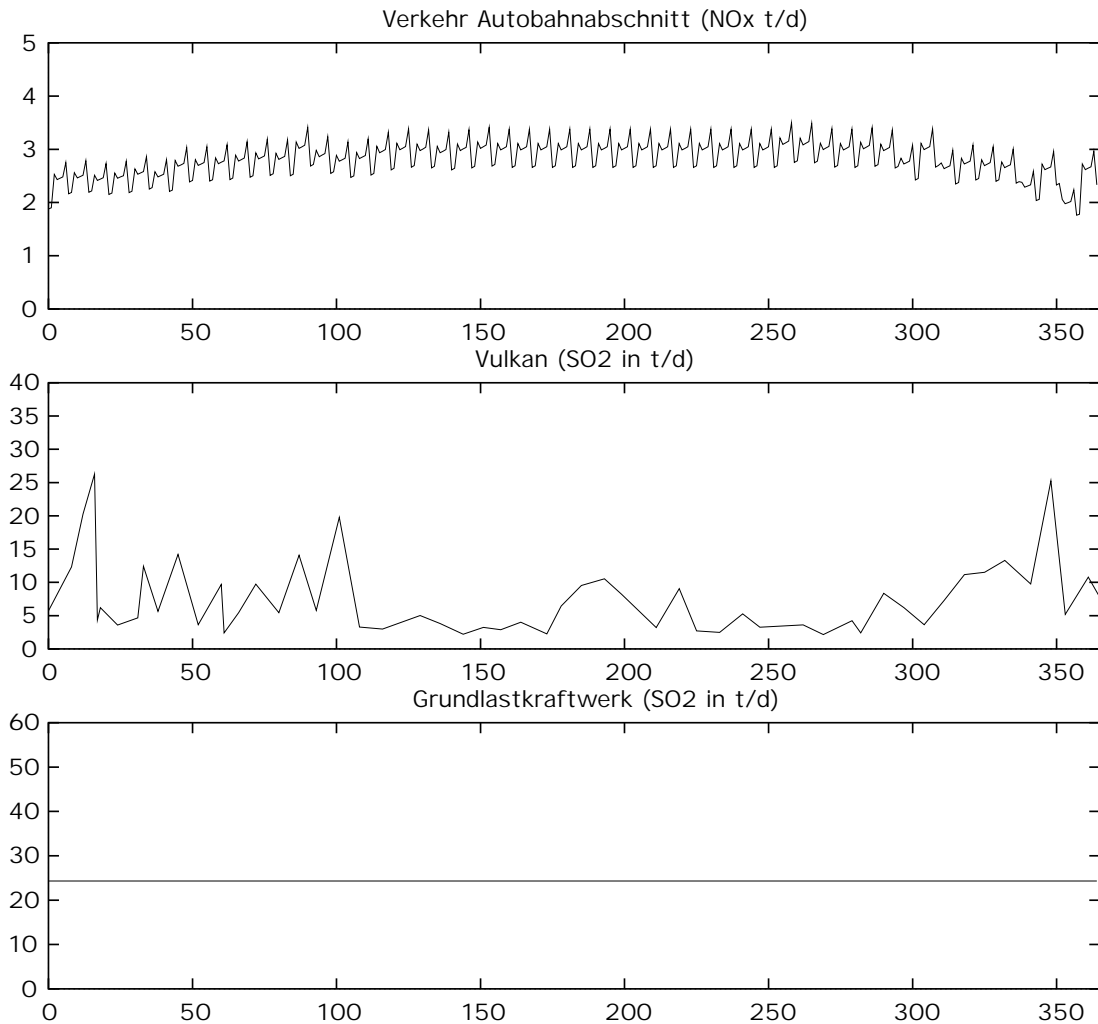


Abbildung 5.1: Beispiele für periodische (Straßenverkehr), aperiodische (Vulkan) und zeitunabhängige (Grundlastkraftwerk) Prozesse

Zeitunabhängige Prozesse sind bei der Untersuchung des zeitlichen Emissionsverlaufs keineswegs zu vernachlässigen, stellen aber für die hoch aufgelöste Emissionsmodellierung kein Problem dar. Es wird einfach ein konstanter Wert für jede Stunde nach Gl. 5.1 angenommen:

$$E_{Stunde} = \frac{1}{8784} E_{Jahr} \quad \text{bzw.} \quad E_{Stunde} = \frac{1}{8760} E_{Jahr} \quad (5.1)$$

für Schaltjahre bzw. Nicht-Schaltjahre.

Aperiodische Prozesse können im Grunde nur mit groben Annahmen und Wahrscheinlichkeiten modelliert werden, da eine Ableitung späterer Zeitverläufe aus einem vorausgegangenen Zeitausschnitt kaum möglich ist. Die Prozesse müssen in das Emissionsmodell als kontinuierliche Meßreihe/berechnete Werte integriert werden, sofern (Meß-) Daten vorhanden sind, ansonsten als konstante Werte nach Gl. 5.1. Glücklicherweise ist der Anteil der aperiodischen Emissionen der geringste unter den drei Gruppen:

$$E_{Stunde}(h) = F_{h/a}(h) \cdot E_{Jahr} \quad (5.2)$$

mit $F_{h/a}(h)$ normierter Stundenwert h des Jahres, also $\sum_1^{8760} F_{h/a}(h) = 1$.

Der Hauptanteil fällt den periodischen Prozessen zu. Sie bilden daher auch den Schwerpunkt der Untersuchung des zeitlichen Emissionsverlaufs und werden nach der folgenden Formel berechnet:

$$E_{Stunde}(h) = E_{Jahr} \cdot F_{h/d}(h) \cdot \begin{cases} F_{d/w}(d) \cdot F_{w/a}(w) \\ F_{d/m}(d) \cdot F_{m/a}(m) \\ F_{d/a}(d) \end{cases} \quad (5.3)$$

$F_{h/d}(h)$ ist der normierte Stundenwert h des Tages d , also $\sum_1^{24} F_{h/d}(h) = 1$,

$F_{d/w}(d)$ entsprechend der normierte Wochentagwert d einer Woche w mit $\sum_1^7 F_{d/w}(d) = 1$, etc.

Zu den periodischen Prozessen werden auch Prozesse mit **quasiperiodischen** Verlauf gerechnet. Diese besitzen eine deutliche periodische Komponente, die von einer mehr oder weniger deutlichen aperiodischen Komponente überlagert wird. Abbildung 5.1 (oben) z.B. zeigt streng genommen einen quasiperiodischen Prozeßverlauf, da die aperiodisch verlaufende Temperatur ebenfalls Emissionen des Straßenverkehrs beeinflusst. Quasiperiodische Prozeßverläufe werden durch eine Linearkombination der Terme aus Gl. 5.3 im europäischen Emissionsmodell simuliert.

In Abbildung 5.2 sind Beispiele für Zeitgänge, wie sie in Gl. 5.3 verwendet werden, dargestellt.

5.1.1 Sommerzeit – Winterzeit

Bei der Untersuchung von kurzzeitigen Sommersmogepisoden spielen die Tage der Zeitumstellung keine Rolle, da im März und Oktober keine hohen Ozonkonzentrationen zu erwarten sind. Die Sommerzeit selbst jedoch, d.h. die dauerhafte Verschiebung der lokalen Zeit während der

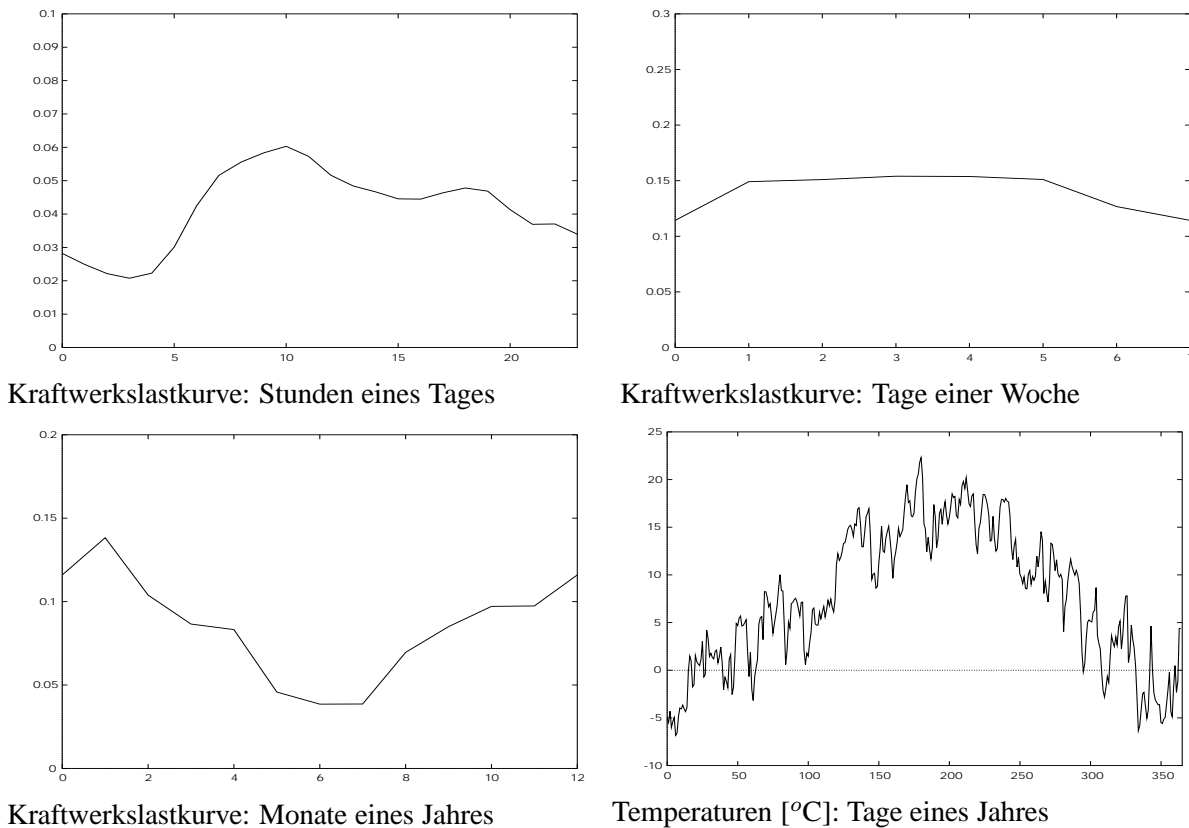


Abbildung 5.2: Beispiel für Zeitgänge einer quasiperiodisch emittierenden Kraftwerksquelle (Gl. 5.3). Die Temperatur (rechts unten) beeinflusst den ansonsten periodischen Verlauf der Kraftwerksemissionen.

Sommermonate um eine Stunde, ist auch bei kurzen Sommersmogepisoden von Bedeutung, da in CTMs noch andere Daten mit Zeitstempel eingehen – z.B. Meßdaten von Wetterstationen. Bei Nichtberücksichtigung der Sommerzeit würden während einer Sommerepisode im CTM Emissionen der Stunde N-1 auf meteorologischen Rahmenbedingungen der Stunde N treffen. Deshalb muß die Sommerzeit mit berücksichtigt werden.

Der Einfluß der Sommerzeit auf das Emissionsverhalten ist nicht immer offensichtlich. Dies sei anhand folgender Überlegungen verdeutlicht: Emissionsrelevante Ereignisse, die überhaupt keinen Bezug zur (künstlichen) Festlegung der Tageszeit haben, sind von der Zeitumstellung überhaupt nicht betroffen. Zu diesen zählen alle natürlichen Vorgänge wie z.B. Vulkanemissionen, Waldbrände, biogene Emissionen aus Wäldern, Böden, etc.

Zivilisationsbedingte Prozesse reagieren aber demnach nicht automatisch auf die Zeitumstellung. Manche Ereignisse orientieren sich nicht an der Uhrzeit, sondern an anderen Rahmen-

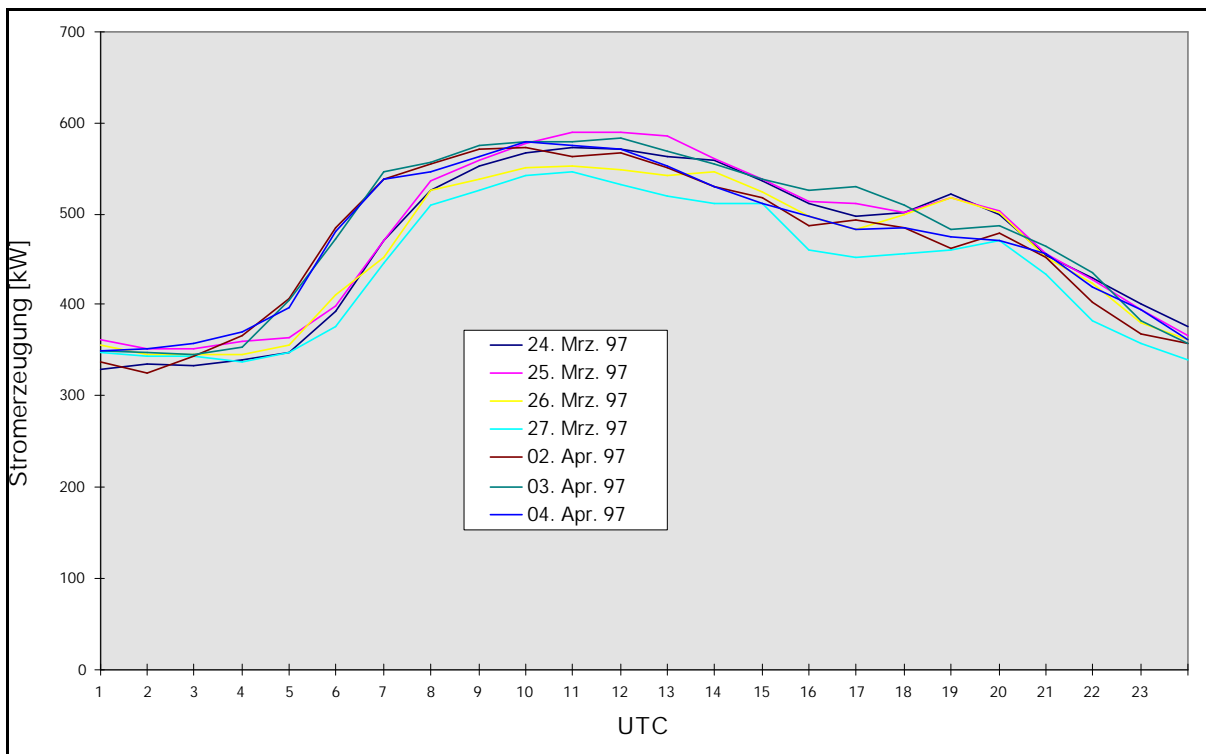


Abbildung 5.3: Stromerzeugung eines Kraftwerkes an Arbeitstagen vor und nach der Zeitumstellung (Sommerzeit)

bedingungen, so z.B. das Einschalten von Beleuchtungen an der Helligkeit, also primär am Sonnenuntergang. Die meisten und vor allem bedeutendsten anthropogenen Prozesse richten sich jedoch nach der Tageszeit und müssen daher in der Zeitumstellung berücksichtigt werden. Zu ihnen gehören der Straßenverkehr, öffentliche Kraftwerke, öffentliche Einrichtungen (bestimmt durch Arbeitszeiten), Luft-, Schienen- und Schiffsverkehr und jegliche emissionsrelevanten Arbeitsvorgänge (Produktion, etc.).

Tabelle 5.1 gibt einen Überblick über äußere Einflüsse des zeitlichen Verhaltens von Emissionen. Obwohl die Temperatur physikalisch die Verdunstung von Lösemitteln beeinflusst, wird sie nicht bei der zeitlichen Variation der Lösemittlemissionen berücksichtigt. Denn letztendlich verdunsten die meisten flüchtigen Bestandteile relativ schnell, so daß Unterschiede der Temperatur nur marginal das Zeitverhalten der VOC-Emissionen beeinflussen.

Bei Quellgruppen, deren zeitliches Verhalten von der Uhrzeit beeinflusst wird, verschiebt sich der Zeitgang von Emissionen um eine Stunde, sie steigen/fallen früher auf der Bezugszeitachse UTC, und bleiben bis zur Rückstellung der Uhren auf Winterzeit um diese Stunde

Tabelle 5.1: Zeitliche Abhängigkeit verschiedener Quellen von äußeren Einflüssen

SNAP1-Ebene	Zeitabhängigkeit	sommerzeit-sensitiv ?
1. Kraft- und Heizwerke	Uhrzeit, Sonnenstand, Temperatur	teils
2. Kommerzielle u.a. Verbrennungsanlagen	Uhrzeit	ja
3. Industrielle Verbrennung	Uhrzeit	ja
4. Produktionsprozesse	Uhrzeit	ja
5. Gewinnung und Verarbeitung von Brennstoffen	Uhrzeit	teils
6. Lösemittleinsatz	Uhrzeit	ja
7. Straßenverkehr	Uhrzeit, Temperatur	ja
8. Andere mobile Quellen	Uhrzeit	ja
9. Abfallbehandlung	Uhrzeit, Temperatur	teils
10. Landwirtschaft	Sonnenstand, Temperatur, Jahreszeit	nein
11. Natur	Sonnenstand, Temperatur, Jahreszeit, Geologie	nein

verschoben. Die Zeitlücke in lokaler Ortszeit im Frühjahr bzw. die doppelt belegte Stunde im Herbst entsteht dabei nicht, da in UTC gerechnet wird.

Abbildung 5.3 zeigt die Tagesgänge der Stromerzeugung eines Kraftwerkes an verschiedenen Arbeitstagen auf der lokalen Zeitachse UTC+1. Wochenend- und Feiertage wurden der Übersichtlichkeit halber weggelassen. Am Ostersonntag, dem 31. März 1997, wurden die Uhren um eine Stunde vorgestellt. Die Werktagskurven nach diesem Tag zeigen den morgendlichen Anstieg des Strombedarfes um eine Stunde früher. Auch verschwindet die deutliche Spitze gegen 18 Uhr nach Umstellung der Zeit auf Sommerzeit - der Bedarf an Beleuchtungsstrom sinkt.

Einerseits ist das Datum der Umstellung in Europa länderspezifisch, zum anderen haben sich die Regeln für die Terminfestlegung im Laufe der Jahre geändert. Island z.B. nimmt an der Umstellung überhaupt nicht teil, während Estland 1998 die Uhren umgestellt hat, jedoch eine Woche später auf Sommerzeit und drei Wochen früher auf Winterzeit als der Rest Europas.

Bis 1994 stellte Großbritannien und Irland die Uhren einen Monat später auf Winterzeit als das übrige Europa (letzter Sonntag im September). 1995 stellte dann ganz Europa die Uhr in der gleichen Nacht um, allerdings zu einem neuen Zeitpunkt, nämlich am ersten Sonntag des Oktobers (01.10.95). Seit 1996 stellen nun alle Länder bis auf Estland und Island ihre Uhren wieder am letzten Sonntag im Oktober auf Winterzeit. Der Beginn der Sommerzeit fand bisher bei den beteiligten Ländern (außer Estland) durchgängig am letzten Sonntag im März statt.

Für alle relevanten Jahre, d.h. 1990 bis 1999, wurden die Anfangs- und Endstunde der Sommerzeit eines jeden Landes in die Datenstruktur des europäischen Emissionsmodells integriert. Somit kann die Zeitumstellung bei der Berechnung von hoch aufgelösten Emissionsdaten für Chemie-Transport-Modelle mit berücksichtigt werden.

5.1.2 Feiertage

Feiertage beeinflussen die Gestaltung des Tagesablaufes von Menschen. Daher nehmen sie auch wesentlichen Einfluß auf die zeitliche Charakteristik anthropogener Emissionen. Die typischen durch Arbeit und Schule bedingten Stoßzeiten beim Straßenverkehr, viele Produktionsprozesse der Industrie, Transportvorgänge im Güterverkehr, Hausarbeiten (Kochen, Waschen, ...) etc. finden an Feiertagen nicht oder zu anderen Tageszeiten statt. Andere emissionsrelevante Vorgänge finden dagegen verstärkt an Wochenenden oder Feiertagen statt, so z.B. Freizeitaktivitäten, Haus- und Gartenarbeiten (Rasenmähen, Holzarbeiten), Autowaschen. Daher müssen neben den regulären Sonntagen auch die Feiertage eines jeden Landes in das Emissionsmodell für Europa miteinbezogen werden.

Grundsätzlich kann man Feiertage differenzieren in

- a religiöse Feiertage (z.B. Pfingsten) versus gesetzliche Feiertage (z.B. Unabhängigkeitstag in Finnland).
- b feste Feiertage (z.B. Saint Patrick's Day in Irland) versus variable Feiertage (z.B. Spring Break in Großbritannien)
- c ganze Feiertage (z.B. Sturm auf die Bastille in Frankreich) versus halbe Feiertage (z.B. Heilig Abend in Deutschland)

Betrachtet man die 90er Jahre mit Blick auf die Festlegung von Feiertagen, so stellt man neben den jährlichen Veränderungen durch variable Feiertage auch historisch bedingte Verände-

rungen fest: Feiertage werden neu ernannt, verschoben oder abgeschafft. Neu hinzu kamen in den 90ern z.B. Unabhängigkeitstage der baltischen Staaten oder der Staaten des ehemaligen Jugoslawiens. Verschoben wurde z.B. der Tag der Deutschen Einheit, während in fast allen Teilen Deutschlands (außer Sachsen) der Buß- und Betttag abgeschafft wurde.

1998 war an 94 Werktagen des Jahres mindestens in einem europäischen Land ein Feiertag. Das sind durchschnittlich fast 2 Tage pro Woche, in denen die Emissionen eines Landes sich deutlich anders verhalten als an üblichen Werktagen. Zum Vergleich: Phasen mit hohen Ozonkonzentrationen im Sommer bauen sich meist im Laufe mehrerer Tage auf. Damit fällt in fast jeden Untersuchungszeitraum mindestens ein Feiertag eines europäischen Landes. In den Sommermonaten, auf die sich viele Untersuchungen konzentrieren, ist die durchschnittliche Anzahl der Feiertage noch höher als 2 Tage pro Woche; Ende Juni folgen sogar 4 Feiertage in verschiedenen Ländern aufeinander.

Viele Feiertage in Europa sind länderübergreifend, d.h. werden am gleichen Tag in mehreren Ländern gefeiert. Zu ihnen zählen vor allem die religiösen Tage (Epiphania, Ostern, Himmelfahrt, Pfingsten, Fronleichnam, Allerheiligen, Mariä Himmelfahrt und Weihnachten). Allerheiligen wird von Schweden und Finnland jedoch nicht am 1. November sondern am darauffolgenden Samstag gefeiert. Neben den religiösen Tagen gibt es noch Neujahr (01.01.), den Maifeiertag (01.05) und Gedenktage an das Ende der beiden Weltkriege, das ist der 11. November für den ersten Weltkrieg und der 8. Mai für den zweiten, die in einigen Nationen gleichzeitig begangen werden. Manche Länder wie z.B. Bulgarien, die Niederlande oder Italien setzten jedoch für die Befreiung am Ende des zweiten Weltkriegs aus historischen Gründen frühere Termine fest (6. Mai, 5. Mai bzw. 25. April). Mittsommernacht wird ausschließlich in den nordischen Ländern gefeiert (Samstag nach Sommeranfang).

Unter den **gesetzlichen Feiertagen** gibt es die unterschiedlichsten Anlässe zu Feier/Gedenken und daher auch die unterschiedlichsten Termine, da jedes Land in Europa individuelle, historisch bedingte Tage feiert.

Diese Tage haben fast immer ein festes Datum im Gegensatz zu vielen religiösen Tagen. Tabelle 5.2 gibt eine Übersicht über diese Nationalfeiertage im Jahre 1998.

Land	Tag	Feiertag	Land	Tag	Feiertag
Albanien	28.11.	Unabhängigkeitstag	Andorra	08.09.	Mare de Deu de Meritxell
Belgien	21.07.	Nationaltag	Belgien	15.11.	Geburtstag d. Königs
Belgien	11.11.	Waffenstillstand 1918	Bosnien- Herzegowina	01.03.	Unabhängigkeitstag
Bulgarien	02.05.	Arbeiter Tag	Bulgarien	24.05.	Kulturtag (kyrillisch)
Bulgarien	09.09.	Befreiungstage	Bulgarien	10.09.	Befreiungstage
Bulgarien	06.05.	Kriegserinnerung	Bulgarien	03.03.	Tag der Nation
Dänemark	16.04.	Geburtstag d. Königin	Dänemark	05.06.	Verfassungstag
Deutschland	03.10.	Tag der Dt. Einheit	Deutschland	31.10.	Reformationstag
Estland	24.02.	Unabhängigkeitstag	Estland	23.06.	Siegestag
Estland	24.06.	Tag des Hl. Johannes	Finnland	06.12.	Unabhängigkeitstag
Finnland	07.11.	Pyhäinpäivä	Finnland	27.06.	Juhannuspäivä
Frankreich	14.07.	Sturm auf d. Bastille	Frankreich	08.05.	Befreiungstag
Frankreich	11.11.	Waffenstillstand 1918	Griechenland	25.03.	Unabhängigkeitstag
Griechenland	28.10.	Nationaler Jahrestag	Großbrit. u. Nordirland	31.08.	Gesetzl. Sommerfeiertag
Großbrit. u. Nordirland	25.05.	Frühlingsferien	Großbrit. u. Nordirland		
Großbrit. u. Nordirland	05.01.	Gesetzl. Feiertag	Irland	17.03.	Sankt Patricks Tag
Irland	03.08.	Öffentl. Feiertag	Island	17.06.	Jahrestag d. Republik
Italien	02.06.	Jahrestag d. Republik	Italien	25.04.	Befreiungstag
Jugoslawien	28.06.	St. Vitus Tag	Kroatien	30.05.	Staatstag
Kroatien	15.08.		Kroatien	05.08.	
Kroatien	22.06.		Lettland	18.11.	Unabhängigkeitstag
Lettland	11.11.	Freiheit + Unabh. 1918	Lettland	23.06.	Ligo o. Mittsommer
Lettland	08.05.	Gedenken an 2. Weltkrieg	Lettland	25.03.	1. Gedenken: Deportation
Lettland	14.06.	2. Gedenken: Deportation	Liechtenstein	15.08.	Übernahmetag
Litauen	16.02.	Unabhängigkeitstag	Luxemburg	23.06.	Nationaltag
Macedonien	08.09.		Malta	21.09.	Unabhängigkeitstag

Fortsetzung nächste Seite

Land	Tag	Feiertag	Land	Tag	Feiertag
Moldavien	27.08.	Unabhängigkeitstag	Monaco	19.11.	Nationaltag
Niederlande	30.04.	Tag der Königin	Niederlande	05.05.	Befreiungstag
Norwegen	17.05.	Verfassungstag	Österreich	26.10.	Nationaltag
Polen	03.05.	Verfassungstag	Polen	11.11.	Unabhängigkeitstag
Portugal	10.06.	Tag von Portugal	Portugal	05.10.	Republiktag
Portugal	01.12.	Unabhängigkeitstag	Rumänien	01.12.	Nationaltag
Rußland	12.06.	Unabhängigkeitstag	Schweden	06.06.	Schwedische Flagge
Schweden	07.11.	Allhelgonadagen	Schweden	27.06.	Mittsommernacht
Schweiz	01.08.	Konföderationstag	Slovenien	25.06.	Nationaler Staatstag
Slowakei	01.09.	Slovak. Verfassung	Slowakei	09.05.	Befreiungstag
Slowakei	29.08.	Slovak. Eigenständigkeit	Spanien	12.10.	Nationaltag
Spanien	25.07.	Santiago Tag	Spanien	29.06.	St. Peter und St. Paul
Spanien	19.03.	San Jose	Tschechien	28.10.	Gründung d. Republik
Tschechien	05.07.	Konstantin/Method, Jan Hus	Tschechien	06.07.	Konstantin/Method, Jan Hus
Tschechien	08.05.	Feier des Kriegsendes	Türkei	29.10.	Ernennung d. Republik
Türkei	23.04.	Kindertag	Türkei	19.05.	Jugendtag
Ukraine	24.08.	Unabhängigkeitstag	Ungarn	20.08.	St. Stephens Tag
Ungarn	15.03.	Jahrestag d. Revolution	Weißrußland	03.07.	Unabhängigkeitstag
Zypern	01.04.	Unabhängigkeitskampf	Zypern	25.03.	Griech. Unabhängigkeit
Zypern	01.10.	Unabhängigkeit Zyperns	Zypern	28.10.	Nationaler Jahrestag

Tabelle 5.2: Europas Nationalfeiertage im Jahre 1998

Die wichtigsten **religiösen Feiertage** in Europa sind: Epiphania, Karfreitag, Ostern, Pfingsten, Fronleichnam, Christi Himmelfahrt, Allerheiligen, Mariä Himmelfahrt, Heilig Abend und Weihnachten. Während Epiphania, Allerheiligen, Mariä Himmelfahrt, Heilig Abend und die Weihnachtsfeiertage ein festes Datum besitzen, ändern sich Karfreitag, Ostern, Pfingsten, Fronleichnam und Christi Himmelfahrt von Jahr zu Jahr. Dabei richten sich letztere nach dem Datum von Ostern. Für Gesamteuropa ist zu beachten, daß es zwei verschiedene Termine für Ostern gibt - Ostern nach dem Gregorianischen Kalender (römisch-katholische Kirche, etc.) und Ostern nach dem Julianischen Kalender (orthodoxe Kirche). In fast allen Ländern werden die Tage nach dem Gregorianischen Kalender festgelegt. Nur in Bulgarien, Griechenland und Zypern werden Ostern und alle vom Osterdatum abhängigen Feiertage nach dem Juliani-

schen Kalender gefeiert. Orthodoxes Ostern ist manchmal eine Woche, manchmal vier Wochen nach dem Gregorianischen Ostern. Meistens ist der Unterschied eine Woche, nur in rund einem Viertel der Jahre beträgt die Differenz einen Monat. 1998 beispielsweise waren Ostern nach dem Gregorianischen Kalender und orthodoxes Ostern um eine Woche verschoben: römisch-katholischer Ostersonntag war am 12. April, orthodoxer Ostersonntag am 19. April. Für eine genaue Datierungsmethode der Ostertermine siehe (Royal-Greenwich-Observatory, 1996).

Für die Abhängigkeit des zeitlichen Verhaltens von Emissionen von Feiertagen wurde eine länder- und jahresspezifische Feiertagstabelle in die Datenstruktur des Emissionsmodells integriert. Liegt nun ein Feiertag eines Landes in der Untersuchungsperiode, so werden bei der Berechnung von Emissionsdatensätzen für diese Periode durch das europäische Emissionsmodell automatisch andere Tagesgänge für die entsprechenden Länder und Tage eingelesen und daraus Emissionsraten berechnet.

5.1.3 Zeitzonen

Zur Bestimmung der Emissionen in stündlicher Auflösung müssen bei einer europaweiten Betrachtung die unterschiedlichen Zeitzonen des Kontinents mit berücksichtigt werden. Da die anthropogen bedingte Freisetzung von Luftbeimengungen überwiegend von der Ortszeit abhängig ist, entscheidet die Zeitzonenzugehörigkeit eines Landes über eine Zeitversetzung der dortigen Emissionen relativ zu den Emissionen anderer Länder. In Modellgittern, die große Teile Europas bedecken, führt daher diese Zeitversetzung zu einem asynchronen Verlauf der Emission innerhalb des Untersuchungsgebietes: im Osten des Gebietes erreichen die Werte früher ihr Tagesmaximum als im Westen. Das in Abbildung 2.1 auf Seite 21 gezeigte oberste Modellgitter z.B. erstreckt sich über vier Zeitzonen (WEZ, MEZ, OEZ, OEZ+1). Die damit verbundenen 3 Stunden Zeitversetzung zwischen Portugal und Rußland müssen für die Modellierung von Chemie-Transport-Prozessen in der At-

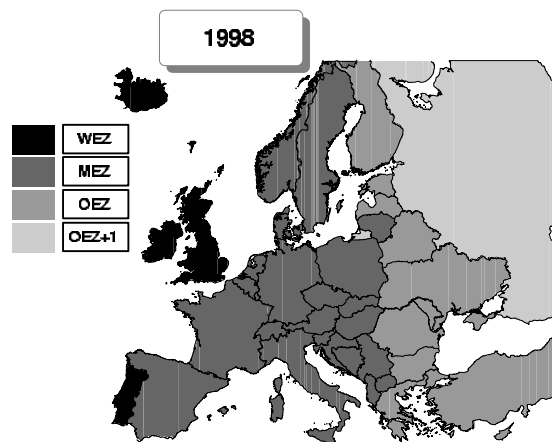


Abbildung 5.4: Die vier Zeitzonen Europas im Jahre 1998 (WEZ, MEZ, OEZ, OEZ+1)

mosphäre berücksichtigt werden.

Die meisten Länder Europas liegen 1998 in der Mitteleuropäischen Zeitzone (MEZ). Dazu gehören Albanien, Andorra, Belgien, Bosnien-Herzegovina, Dänemark, Deutschland, Frankreich, Italien, Jugoslawien, Kroatien, Liechtenstein, Litauen, Luxemburg, Macedonien, Malta, Monaco, Niederlande, Norwegen, Österreich, Polen, San Marino, Slowakei, Slovenien, Spanien, Schweden, Schweiz, Tschechische Republik und Ungarn.

In der Osteuropäischen Zeitzone (OEZ) liegen Estland, Finnland, Lettland, Ukraine, Weißrußland, Rumänien, Bulgarien, Moldawien, Griechenland und die Türkei.

Großbritannien, Irland, Island und Portugal hingegen befinden sich in der Westeuropäischen Zone (WEZ, d.i. GMT - Greenwich Mean Time). Abbildung 5.4 zeigt die Zeitzonen Europas im Jahre 1998.

Nun ist die Zeitzonenzugehörigkeit mancher europäischer Länder jedoch nicht konstant über die Jahre hinweg. In den 90er Jahren haben einige Länder ihre Zeitzonenzugehörigkeit verändert:

Portugal z.B. wechselte Anfang der 90er zu MEZ, nachdem es lange Jahre der Westeuropäischen Zeitzone zugerechnet wurde. Damit lag es in der gleichen Zone wie sein iberischer Nachbar - Spanien. 1996 kehrte es dann wieder zur WEZ zurück.

Island selbst ist trotz seiner exponierten westlichen Lage in der Zeitzone von Großbritannien, Irland und Portugal (WEZ). Irreführend ist im Sommer, daß Island die Zeitumstellung nicht mitmacht. Dann besteht zwischen dem Inselland und den anderen Staaten der WEZ eine Stunde Differenz. Sie befinden sich aber trotzdem alle in der gleichen Zeitzone - in der WEZ.

Die baltischen Staaten, Weißrußland, Moldawien und die Ukraine änderten im Zuge ihrer Unabhängigkeit von der Sowjetunion 1992 ihre Zeit um eine Stunde von OEZ+1 zu OEZ und paßten sich damit an die Zeit von Ländern wie Finnland, Rumänien, Bulgarien und Griechenland an, die auf demselben Längengrad liegen. Litauen stellte die Uhren dann 1998 nochmals zusätzlich um eine Stunde zurück und ist seither in der MEZ !

Rußland hat im gleichen Jahr, 1992, seine Zeitzonen im Norden und im Süden des Landes neu strukturiert. Der europäische Teil bleibt jedoch 2 Stunden vor MEZ.

Die jahresabhängige Zeitzonenzugehörigkeit wurde im Emissionsmodell für jedes Land getrennt implementiert. So können die anthropogenen Emissionen, die in lokaler Zeit berechnet werden, für jedes Jahr auf UTC transformiert werden. Die Emissionsdaten liegen damit wie meteorologische Daten mit einheitlichem Zeitbezug für ganz Europa vor.

6 Ergebnisse - multiskalig hoch aufgelöste Emissionen

Im folgenden werden Ergebnisse vorgestellt, die durch die Methoden aus den Kapiteln 3, 4 und 5 gewonnen wurden. Die folgenden Unterkapitel 6.1, 6.2, 6.3 und 6.4 erläutern verschiedene Aspekte der europäischen Jahresdatenbasis (Vervollständigung, VOC-Unterteilung, Aktualisierung und Datenqualität), während die Unterkapitel 6.5 und 6.6 die gewonnene hohe Auflösung bezüglich Raum und Zeit darstellen und erläutern.

6.1 Ergebnis der räumlichen Vervollständigung europäischer Emissionsdaten

Jeder der untersuchten Schadstoffe entstammt zu großen Teilen aus ein oder zwei dominierenden Quellgruppen der Snap1-Ebene. Bei CO, NMVOC und NO_x, den wichtigsten Vorläufern für Photooxidantien, trägt nach (CORINAIR, 1996) jeweils der Straßenverkehr mit 56% (CO), 31% (NMVOC) bzw. 44% (NO_x) am stärksten zur Belastung der Atmosphäre bei. Daneben hat für die flüchtigen organischen Substanzen die Lösemittelanwendung mit knapp 23% mit Abstand den zweithöchsten Anteil in den CORINAIR-Ländern von 1990. Bei NO_x dominieren nach dem Straßenverkehr die öffentlichen Kraft- und Heizwerke mit rund 21%. SO₂ entstammt zur Hälfte aus öffentlichen Kraftwerken. Das Bezugsjahr 1990 wurde in der Ausgangsdatenbasis (CORINAIR) deshalb gewählt, weil für dieses Jahr zu mehr Ländern und detailliertere Emissionsdaten verfügbar waren als für spätere Bezugsjahre.

Für diese genannten Hauptverursacher sind Korrelationen mit emissionsrelevanten Eingangsparametern in Abbildung 6.1 dargestellt. Für CO wurde die Quellgruppe Straßenverkehr ausgewählt, da sie mit über der Hälfte (s.o.) dominiert. Gleiches gilt für SO₂ aus öffentlichen Kraftwerken. Für NO_x und NMVOCs wurden die nach dem Straßenverkehr jeweils zweitwichtigsten Quellgruppen dargestellt. Alle Abbildungen lassen bereits bei einem Regressoren starke Korrelationen erkennen. Das Bestimmtheitsmaß $B=R^2$ liegt zwischen 80% und 95% für die gezeigten Größen.

Bei einem hohen Anteil an kleinen Emissionswerten ist eine logarithmische Transformation vor der Regressionsanalyse sinnvoll, um den zu großen Einfluß weniger hoher Werte zu vermeiden. Prinzipiell ist eine stärkere Gewichtung hoher Emissionswerte jedoch wünschenswert, da eine genauere Schätzung von hohen Werten wichtiger ist als von kleinen Werten –

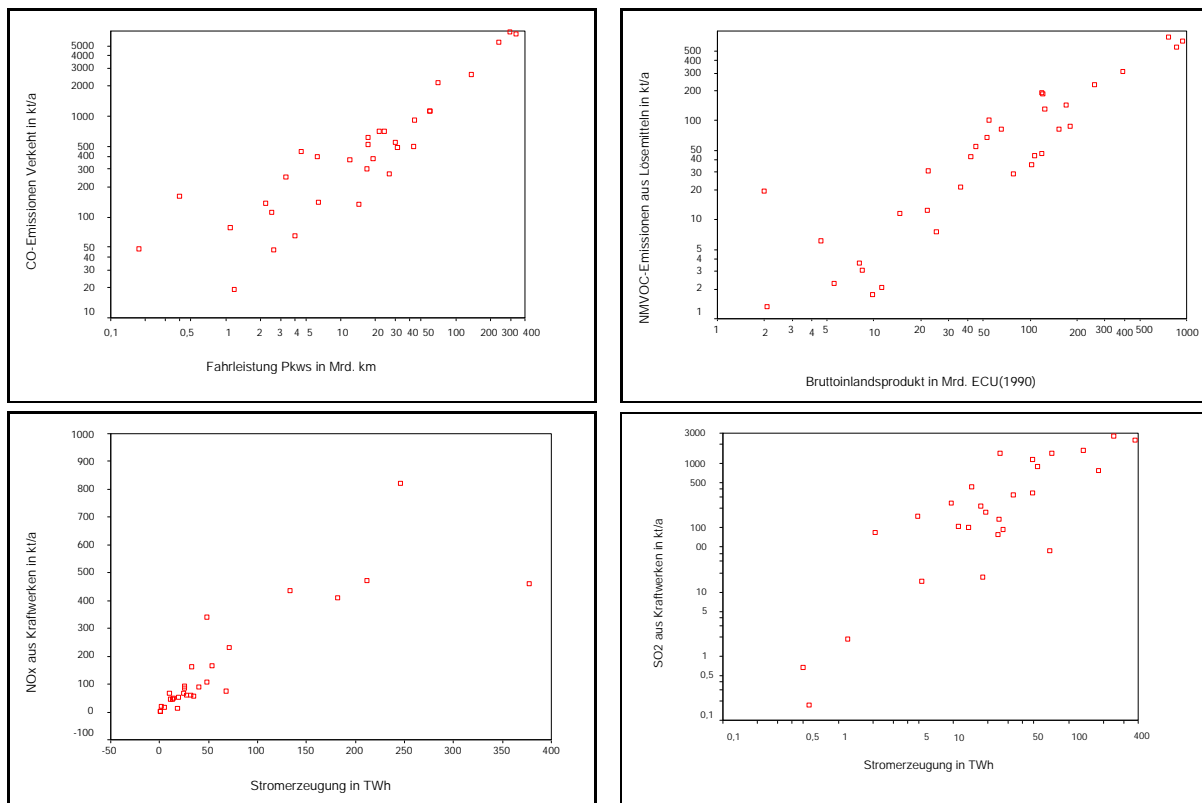


Abbildung 6.1: Korrelationen von Emissionen aus dominierenden Quellen mit relevanten Kenngrößen der Quellgruppe (1990). Darstellung in logarithmischer bzw. linearer Skala.

10% Genauigkeit bei Emissionen aus Deutschland und 20% bei Luxemburg ist günstiger als umgekehrt! Je nach Verteilung wurde daher die logarithmische oder die lineare Skala gewählt.

Aus der Regressionsanalyse lassen sich nun nach Gl. 3.13 die Emissionen \hat{E} von Ländern schätzen, die nicht in der CORINAIR-Datenbasis enthalten sind. Damit kann die Ausdehnung der Datenbasis flächendeckend auf Gesamteuropa erfolgen. Zusätzlich können natürlich auch die Emissionen der bereits in der Datenbasis enthaltenen Länder geschätzt und mit den erhobenen Emissionen verglichen werden. Dies dient gleichermaßen als Überprüfung der Schätzungen aus der Regressionsanalyse. Abbildung 6.2 zeigt die geschätzten CO Emissionen aus dem Straßenverkehr für alle europäischen Länder. In das Regressionsmodell für CO aus Straßenverkehr gingen die Parameter *Index der Minderungstechnik im Kraftfahrzeugbereich*, *Pkw-Bestandszahl* und *Fahrleistungen Lkws* ein. Ein sehr ähnliches Bild ergibt sich für die weiteren Schadstoffe NO_x und NMVOC im Straßenverkehr.

Demnach tragen Rußland und die Ukraine im Straßenverkehr nochmals sehr stark zur Be-

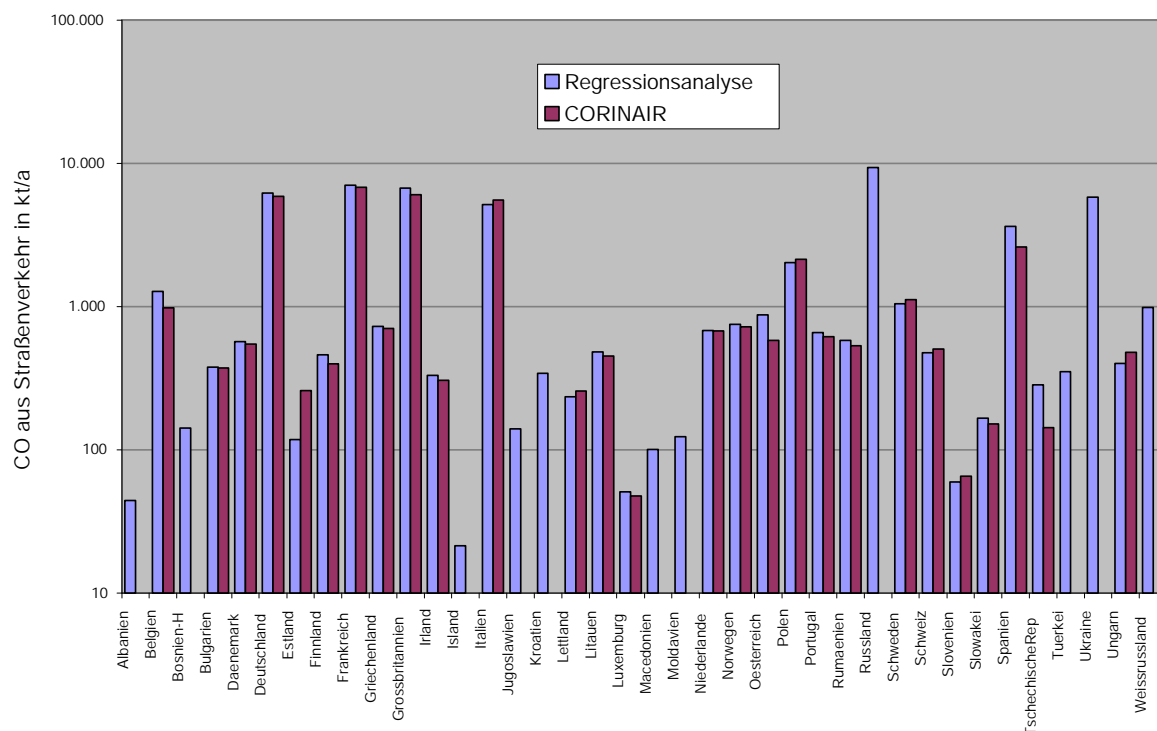


Abbildung 6.2: Schätzung von CO-Werten aus Straßenverkehr 1990 mittels Regressionsanalyse und zum Vergleich CORINAIR-Werte (logarithmische Darstellung).

lastung der Atmosphäre bei. Die übrigen in der CORINAIR-Datenbasis von 1990 nicht enthaltenen Länder – Albanien, Bosnien-H., Island, Jugoslawien, Kroatien, Macedonien, Moldavien, Türkei und Weißrußland – emittieren entsprechend ihrer Größe weniger. Die geringsten CO-Emissionen aus Kraftfahrzeugen hat Island mit 21369 t.

Im Anhang befindet sich eine Liste der aus der Regressionsanalyse gewonnenen funktionalen Zusammenhänge und eine ausführliche Tabelle der daraus geschätzten Emissionen für das Jahr 1998.

Summiert man über alle Quellen und Länder, so erhält man die Gesamtemissionen in Europa 1990. Demnach wurden im Jahr 1990 von Portugal bis zum Ural und von Island bis zur Türkei rund 38 Mio. Tonnen Schwefeldioxid anthropogen emittiert, 23 Mio. Tonnen Stickoxide, 98 Mio. Tonnen Kohlenmonoxid, 24 Mio. Tonnen flüchtige organische Substanzen und 8 Mio. Tonnen Ammoniak. Davon entfallen für jeden Schadstoff bereits die Hälfte auf fünf Länder. Unter ihnen sind Deutschland, Großbritannien, Rußland, Polen, Ukraine, Frankreich, Italien und Spanien mit Anteilen von 6 bis 15%.

Die Nord- und Ostsee sowie die Kerosinmissionen von Flugzeugen mußten getrennt ermittelt und in die europäische Datenbank integriert werden. In Bezug auf Gesamteuropa haben Nord- und Ostsee zusammen vor allem bei den Stickoxiden mit rund 830 Tausend Tonnen einen beträchtlichen Anteil von 3,5%, bei Schwefeldioxid mit 580 Tausend Tonnen immerhin noch einen Anteil von 1,5%. Kohlenmonoxid und die flüchtigen organischen Komponenten aus internationaler Seefahrt und durch Kerosinablaß fallen im Gesamtbild Europas mit unter 0,1% nicht ins Gewicht.

Abbildung 6.3 veranschaulicht den Beitrag der größten Länder zu den Gesamtemissionen. Die bevölkerungsstärksten Länder tragen am meisten zu den Gesamtemissionen bei. Auffällig

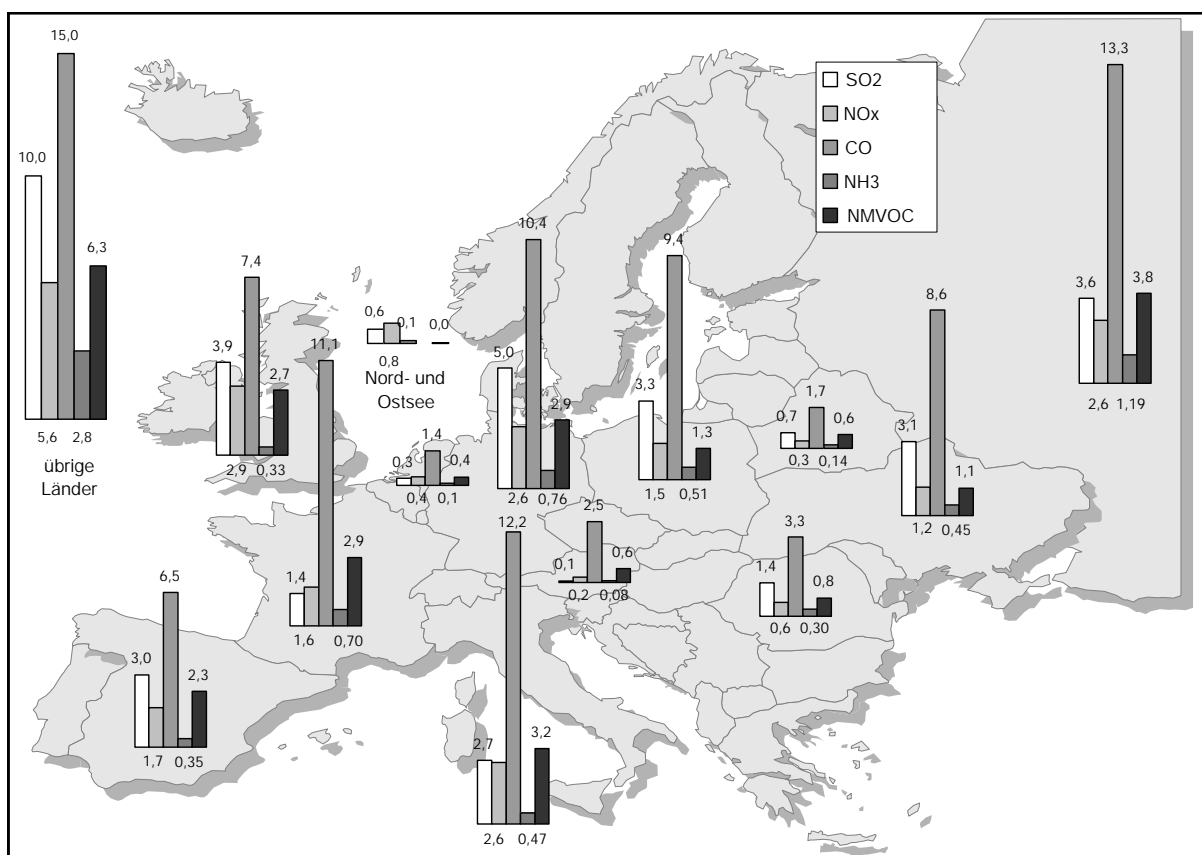


Abbildung 6.3: Emissionen 1990 Gesamteuropa in Mio t

ist, daß Frankreich vergleichsweise wenig NO_x und SO₂ emittiert. Dies rührt von dem mit 87,6% sehr hohen Anteil der Kernenergie an der Elektrizitätserzeugung – im Jahr 1991 368 von 420 TWh aus Kernenergie nach (ESAP, 1999).

In Österreich sowie in Norwegen (nicht abgebildet) ist ebenfalls der Anteil der thermischen Kraftwerke an der Elektrizitätserzeugung klein, da in diesen Ländern das Potential an Wasserkraft groß ist und deren Nutzung auch stark ausgebaut wurde. Norwegen produzierte 1990 99,5% des Strombedarfes mit Wasserkraft (ESAP, 1999), Österreich immerhin noch 65%. Daher sind die NO_x - und SO_2 -Emissionen dieser Länder vergleichsweise gering, insbesondere die SO_2 -Emissionen geringer als NO_x -Emissionen, da thermische Kraftwerke wesentlich stärker zur Schwefeldioxidfreisetzung beitragen als zur Freisetzung von Stickoxiden. In Deutschland, zum Vergleich, wird nur 3,4 % des Strombedarfes aus Wasserkraft gewonnen.

In Italien tragen zusätzlich noch zwei Vulkane mit ca. 570000 t zur Schwefeldioxidbilanz bei. Dies ist jedoch keineswegs die dominierende Quelle für Italien, sondern macht nur rund ein Fünftel aus.

Für die Nord- und Ostsee sind nur Schiffsemissionen berücksichtigt. Ölplattformen und ähnliches in der Nordsee wurden zu den Eigentümerländern gerechnet. Daher ergibt sich bei ihnen auch ein atypisches Verhältnis zwischen den Schadstoffen. Es wird weit weniger CO als NO_x und SO_2 emittiert.

Die Schwefeldioxidemissionen in Deutschland sind für 1990 aufgrund der ehemaligen DDR-Kraftwerke und der sehr schwefelhaltigen Braunkohle noch sehr hoch. Dies hat sich in den folgenden Jahren jedoch deutlich verringert.

Die skandinavischen Länder Norwegen, Schweden und Finnland tauchen trotz ihrer großen Fläche nicht unter den größten Emittenten in Europa auf, da sie durchgängig eine geringe Bevölkerungsdichte aufweisen.

6.2 Ergebnis der Untergliederung von VOC-Emissionen

Abbildung 6.4 zeigt die Anteile der NMVOC-Emissionen in Europa 1998 in Substanzgruppen zusammengefaßt. Den größten Anteil mit fast der Hälfte (44%) macht die Gruppe der Alkane aus. Zu ihnen gehören Ethan, Propan und höhere Alkane, die nach (Middleton et al., 1990) in Gruppen mit unterschiedlicher Reaktionsgeschwindigkeit r zusammengefaßt sind.

Zu 11% bzw. 15% setzen sich VOCs aus Alkenen und Aromaten zusammen. Unter den Alkenen dominiert mit Abstand Ethen vor Propen und höheren Alkenen. Unter den Aromaten wird zwischen Benzol bzw. Chlorbenzolen und alkylierten Aromaten unterschiedlicher Reaktivität getrennt. Benzol und Chlorbenzole machen ein Fünftel der Aromaten aus.

Ethin, Ketone und Aldehyde tragen mit zwei bis vier Prozent zu den NMVOCs bei. In der

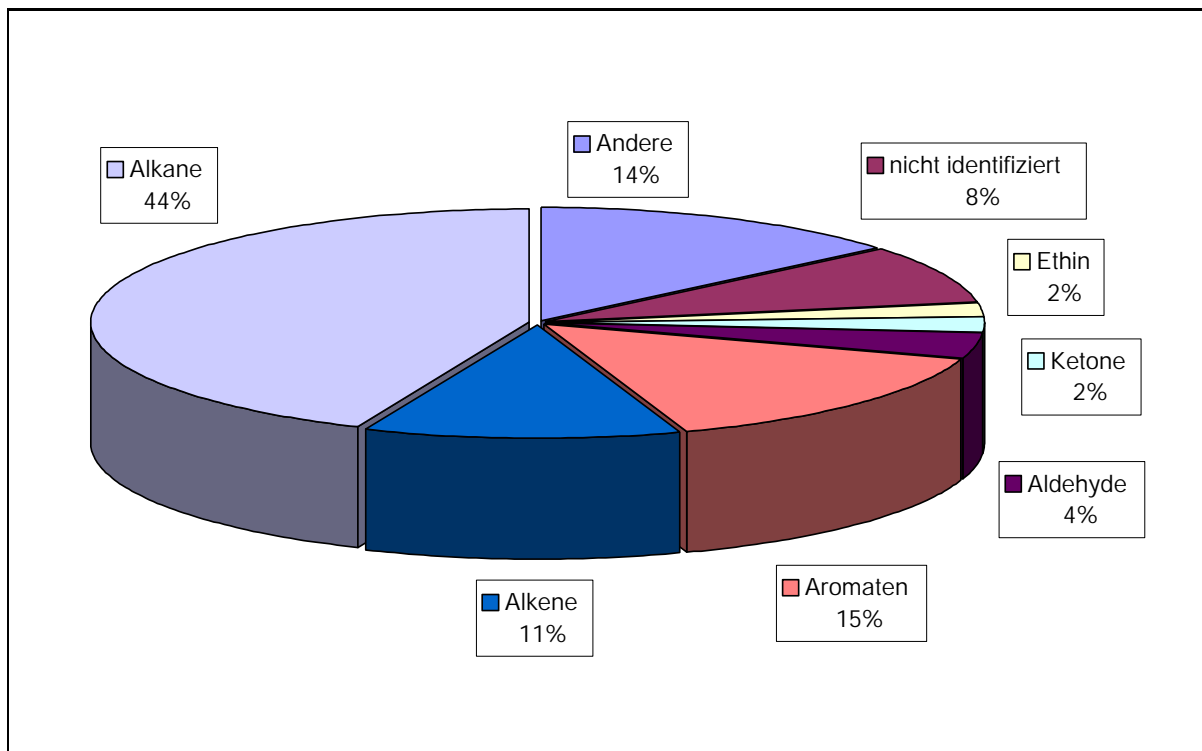


Abbildung 6.4: Anteile der NMVOC-Emissionen 1998 in Europa

Gruppe 'Andere' befinden sich VOCs mit geringen Anteilen an den Gesamtemissionen, unter ihnen Kresole, Phenole, Styrole, halogenierte Alkene und sonstige auch unreaktive VOCs.

Abbildung 6.4 verdeutlicht auch den mit 8 % relativ hohen Anteil nicht identifizierbarer organischer Substanzen. Die Schwierigkeit, diese VOCs einer Substanzgruppe zuzuordnen, ergibt sich vor allem beim Lösemittelleinsatz für die Erzeugung und Verarbeitung chemischer Produkte und für diverse andere chemische Prozesse, bei Produktionsprozessen der inorganischen und organischen chemischen Industrie und bei der Behandlung und Entsorgung von Abfällen.

In Abbildung 6.5 sind die relativen Anteile für jedes Land dargestellt. Die Untergliederung wurde nach der Klassifizierung von (Middleton et al., 1990) vorgenommen. In den relativen Anteilen sind alle Quellen eines Landes enthalten, die im Jahr 1998 NMVOCs emittiert haben. Der Einfachheit halber wurde Methan weggelassen, da Methan in CORINAIR getrennt aufgeführt wird. Es handelt sich also in der Abbildung um eine Untergliederung der NMVOC-Emissionen.

Eine weitere Untergruppe, *Alkane/Aromaten-Gemisch*, wurde ebenfalls nicht aufgeführt, da

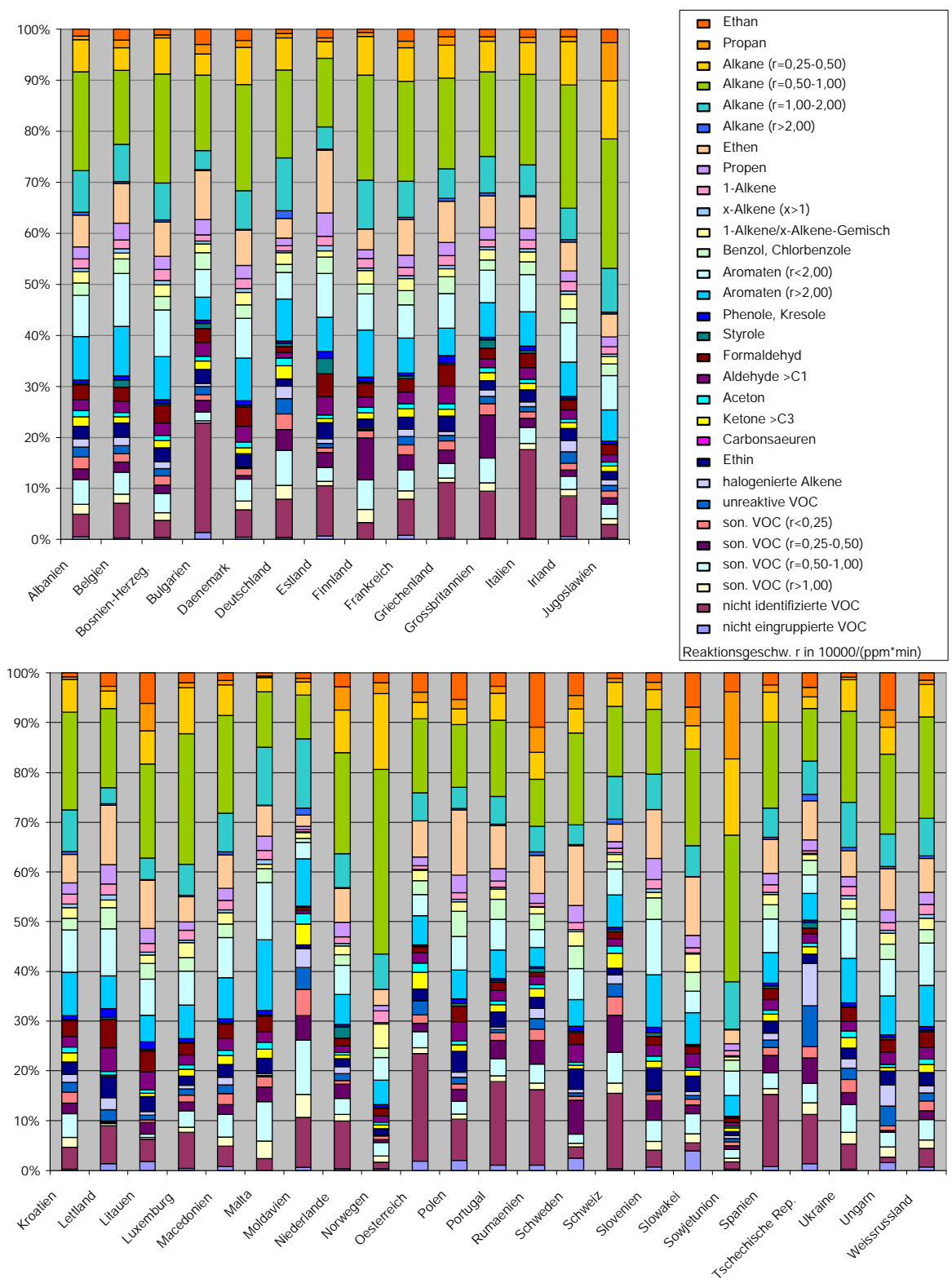


Abbildung 6.5: Untergliederung der NMVOC-Emissionen 1998 für jedes Land

die entsprechenden Alkane und Aromaten jeweils anderen Untergruppen zugeordnet werden konnten. Somit sind 30 der 32 Untergruppen von (Middleton et al., 1990) aufgelistet.

Die Alkane allein machen bei den meisten Ländern schon über 25% der VOCs aus, mit den Alkenen zusammen sind es häufig bereits die Hälfte der VOCs. Die Aromaten tragen bei vielen Ländern nochmals mit 15 bis 20 % zu den NMVOC-Emissionen bei. Die Unterschiede zwischen den Ländern stammen überwiegend aus der unterschiedlichen Zusammensetzung der Fahrzeugflotten und der im Einsatz befindlichen Motoren samt Minderungstechniken. Daneben ergeben auch spezielle Industrien eines Landes entsprechende Unterschiede - z.B. Autoindustrie in Deutschland, Frankreich, Italien, Papierindustrie in Finnland oder Textilindustrie in Portugal.

6.3 Ergebnis der Aktualisierung von Emissionsdaten

Mittels der in Kap. 3.3 beschriebenen Methoden konnte die gesamteuropäische Emissionsdatenbank aktualisiert und um die fehlenden Jahre ergänzt werden, für die keine europäischen Emissionen erhoben wurden (z.B. 1991 bis 1993). Während zuvor nur wenige ausgewählte (Sommersmog-)Episoden untersucht werden konnten, kann die europäische Emissionsdatenbasis nun mit einem lückenlosen Umfang an Bezugsjahren auf beliebige Untersuchungsperioden angewandt werden und stellt damit keine Einschränkung mehr dar. In diesem Abschnitt wird das Ergebnis der Aktualisierung vorgestellt und der Verlauf der Emissionen in Europa in den 90er Jahren erläutert:

Die Freisetzung von Schadstoffen in die Atmosphäre über Europa hat in den 90er Jahren kontinuierlich abgenommen. Während 1990 noch 37,6 Mio t SO₂, 23,2 Mio t NO_x, 98,1 Mio t CO und 23,8 Mio NMVOC emittiert wurden, haben sich bis 1999 deren Beträge um 20 bis 30% in ganz Europa verringert. Unter den genannten Gasen haben sich Schwefeldioxid- und Kohlenmonoxidemissionen am stärksten verringert (s. Tabelle 6.1). Dieser Rückgang wurde jedoch nicht von allen Ländern in gleichem Maße und durch dieselben Ursachen bewirkt. Während in Osteuropa durch die politische Wende ab 1990 eine wirtschaftliche Depression die meisten Länder erfaßte und damit zwangsläufig anthropogene Emissionen drastisch verringerte, wurde in weiten Teilen Westeuropas eine Reduktion durch umweltpolitische Maßnahmen in vielen Ländern herbeigeführt. Diese verlief kontinuierlicher, da einerseits die Minderungstechnik erst nach und nach eingesetzt wird und andererseits die wirtschaftspolitischen Rahmenbedingungen stabil blieben.

Tabelle 6.1: Zeitliche Entwicklung der NO_x-, SO₂-, CO- und NMVOC-Emissionen in Europa in den 90er Jahren [t/a], berechnet mittels der in Kap. 3.3 beschriebenen Methode

Jahr	SO ₂	CO	NO _x	NMVOC
1990	37 670 000	98 121 000	23 199 000	23 766 000
1991	33 678 000	88 400 000	21 255 000	21 977 000
1992	31 107 000	85 685 000	20 474 000	21 177 000
1993	29 949 000	83 199 000	19 982 000	20 876 000
1994	26 412 000	78 125 000	19 010 000	19 946 000
1995	26 591 000	76 167 000	18 895 000	19 681 000
1996	27 915 000	75 073 000	18 886 000	19 616 000
1997	26 650 000	72 181 000	18 795 000	19 344 000
1998	26 313 000	70 298 000	18 528 000	19 108 000
1999	26 289 000	68 341 000	18 407 000	18 898 000

Die wirtschaftliche Entwicklung in Osteuropa hatte 1993/1994 ihren Tiefpunkt erreicht. Danach stieg das Bruttoinlandsprodukt in fast allen Ländern wieder allmählich. Diese uneinheitliche Entwicklung in Ost und West legt eine Gliederung des Untersuchungszeitraumes in zwei Abschnitte nahe. Eine Unterteilung des Jahrzehnts ist somit an dem Wendepunkt der wirtschaftlichen Entwicklung sinnvoll. Die Jahre 1990 bis 1994 und 1995 bis 1999 werden also im folgenden getrennt betrachtet.

Abbildung 6.6 (a und b) zeigen die Emissionsentwicklung in Europa für jedes Land in der ersten Hälfte des Jahrzehnts (a) und der zweiten (b) beispielhaft für NO_x. Ein ähnliches Bild ergibt sich für die anderen untersuchten Gase. In den Abbildungen ist deutlich zu erkennen, daß die Entwicklung in Europa nicht homogen ist. In manchen Ländern steigen die Emissionen immer noch kontinuierlich, andere hatten in den ersten fünf Jahren eine steigende und später eine rückläufige Tendenz. In manchen osteuropäischen Ländern kam nach dem ursprünglichen Rückgang in den zweiten fünf Jahren wieder ein Anstieg der Luftbelastung. Der stärkste Rückgang überhaupt in dem Untersuchungszeitraum hat in den Jahren 1990 bis 1994 in osteuropäischen Ländern stattgefunden. Besonders betroffen waren die Baltischen Staaten, die 1994 nur noch 49 bis 54 % Stickoxide im Vergleich zu 1990 emittierten. Das Bruttoinlandsprodukt der Baltischen Staaten hat sich bereits bis 1993 halbiert.

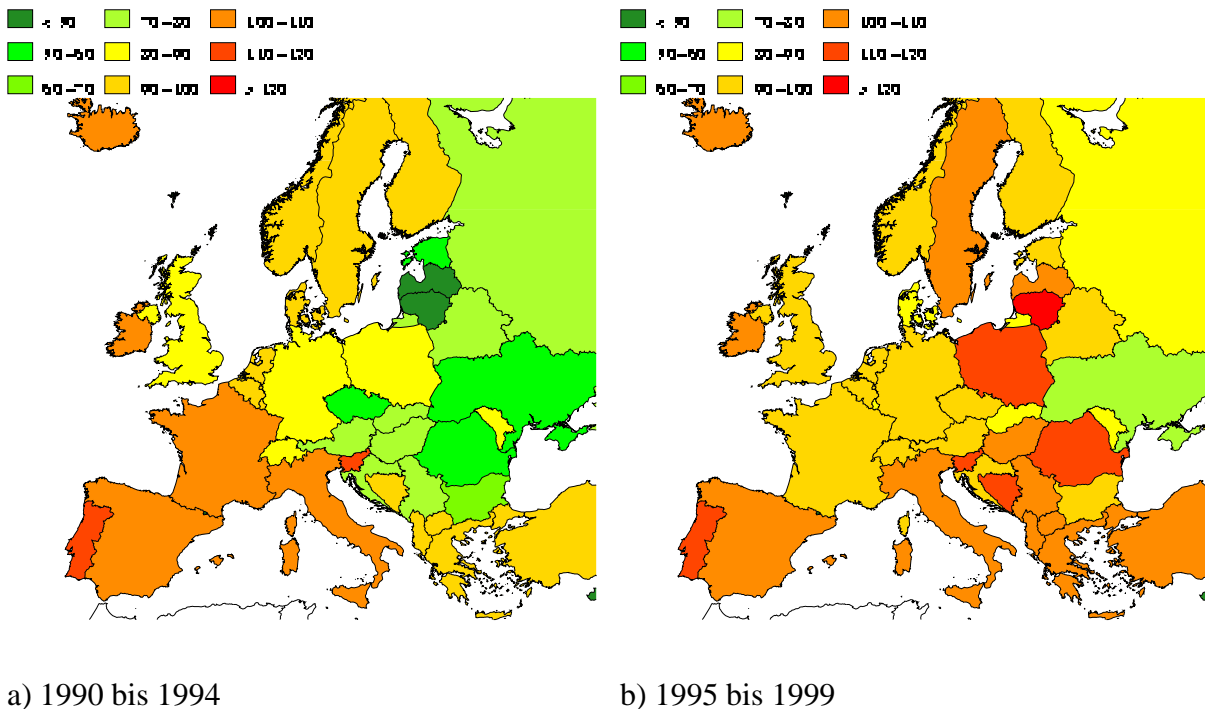


Abbildung 6.6: Erhöhung bzw. Verringerung von Emissionen in Europa in den 90er Jahren, beispielhaft gezeigt für Stickoxide (NO_x), Angaben in Prozent (1990 $\hat{=}$ 100% bzw. 1995 $\hat{=}$ 100%)

Abbildung 6.6 zeigt auch, daß innerhalb der Europäischen Union trotz gemeinsamer umweltpolitischer Ziele und Maßnahmen (z.B. EURO Abgasnormen für Kraftfahrzeuge) die Entwicklung der Emissionen uneinheitlich ist. Während in Ländern wie Deutschland und England zwischen 1990 und 1994 Stickoxide um 10 bzw. 16% reduziert wurden, steigerte sich deren Emission in Portugal um weitere 15%. Ursache für diese Unterschiede ist hauptsächlich die Entwicklung des Straßenverkehrs. Die Durchdringung der Kraftfahrzeugflotten mit Katalysatorfahrzeugen begann in den Ländern der EU unterschiedlich früh und verläuft unterschiedlich schnell. Während in Deutschland 1990 bereits 18% der Pkws mit Katalysatoren der EURO I Norm ausgerüstet waren (Samaras et al., 1998), bestand deren Anteil in Portugal in weniger als einem Prozent. Auch stieg die absolute Anzahl der Fahrzeuge unterschiedlich stark. Deutschland und England hatten einen Anstieg von ca. 11% zwischen 1990 und 1995 zu verzeichnen, während in Portugal der Zuwachs mit 21% doppelt so stark war. Dies erklärt, warum trotz Einführung der EURO Normen im Straßenverkehr, die Emissionen in manchen Ländern trotzdem weiter gestiegen sind, in anderen zurückgingen. Andererseits haben immer auch länder-

spezifische Entwicklungen Auswirkung auf die Zu- bzw. Abnahme von Emissionen.

Analog zur räumlichen Extrapolation wurde die (zeitliche) Fortschreibung über die Regressionsanalyse der vorhandenen Emissionsdaten auf der Ebene von Hauptsektoren (SNAP1-Ebene) durchgeführt. Durch die schrittweise Verbesserung des Regressionsmodells wurden dadurch die wesentlichen Einflußgrößen für jede Hauptquellgruppe getrennt ermittelt. Diese haben den größten Einfluß auf die jährliche Änderung der Emissionen. Sie sind in Tabelle 6.2 aufgeführt. Als dominante Indikatoren ergeben sich meist plausible Größen, so z.B. der Ene-

Tabelle 6.2: Wichtigste Einflußgrößen für die Aktualisierung von europäischen Emissionen - nach Hauptquellgruppen (SNAP1) getrennt

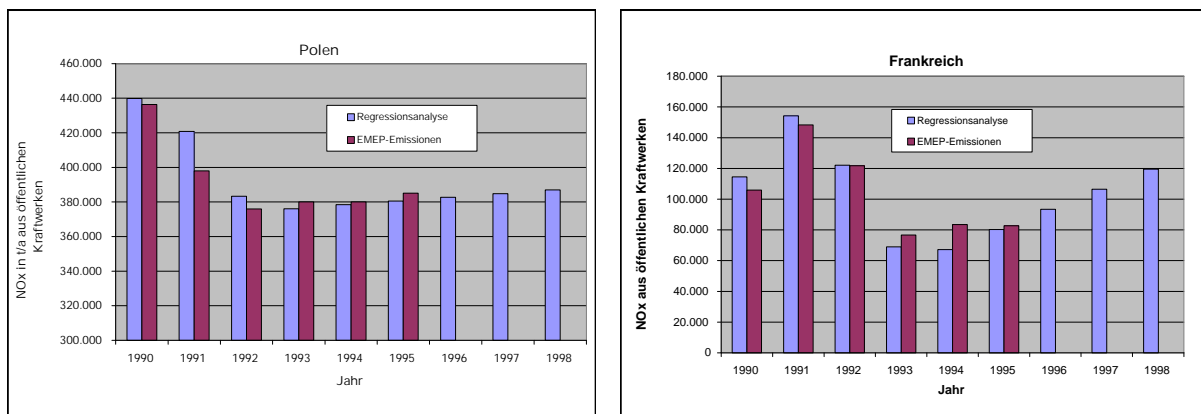
SNAP1-Ebene	Einflußgröße
1. Kraft- und Heizwerke	Stromproduktion, Brennstoffanteile fossiler Energieträger, EV ¹ öffentlicher Kraftwerke, Minderungstechnik (Entstickung, Entschwefelung)
2. Kommerzielle u.a. Verbrennung	EV Haushalte, Bevölkerung, Gradtagszahl, Minderungstechnik
3. Industrielle Verbrennung	EV Industrie, BIP, Temperatur, Minderungstechnik
4. Produktionsprozesse	EV Industrie, BIP, Temperatur
5. Gewinnung und Verarbeitung von Brennstoffen	EV Industrie, BIP
6. Lösemittleinsatz	BIP, Bevölkerung
7. Straßenverkehr	Fahrleistungen, Fahrzeugbestände, EV Transport, Kfz-Katalysatoren
8. Andere mobile Quellen	Fahrleistungen, Bevölkerung, Fahrzeugbestände
9. Abfallbehandlung	Bevölkerung, BIP
10. Landwirtschaft	Temperatur
11. Natur	Temperatur

¹ EV = Energieverbrauch

gieverbrauch in der Industrie für Emissionen aus industriellen Verbrennungsanlagen und Produktionsprozessen oder Fahrleistungen und Fahrzeugbestandszahlen für Emissionen aus dem Transportbereich. Im Sektor *Lösemittelverbrauch* mit sehr inhomogener Quellstruktur überla-

gert auf europäischer Ebene der Einfluß der wirtschaftlichen Entwicklung (BIP) alle anderen Einflußgrößen.

Abbildung 6.7 zeigt Beispiele für Zeitreihen auf Snap1-Ebene - NO_x aus öffentlichen Kraftwerken in Polen und Frankreich. Die stärkste Korrelation ergab sich mit der Einflußgröße *Stromproduktion* gefolgt von den *Energieverbräuchen öffentlicher Kraftwerke*. Bis 1995 kann der Verlauf der geschätzten Emissionen mit erhobenen verglichen werden. Die Abbildungen zeigen, daß auch nicht-monotone Verläufe nachgebildet werden.



a) NO_x aus öffentlichen Kraftwerken in Polen b) NO_x aus öffentl. Kraftwerken in Frankreich

Abbildung 6.7: Vergleich von EMEP Emissionen mit geschätzten Emissionen aus der Regressionsanalyse auf SNAP1-Ebene

Für die erste Hälfte des Jahrzehnts kann das Ergebnis der Regressionsanalyse mit offiziellen Emissionsangaben verglichen werden, da es für manche Jahre bis 1994 offiziell verfügbare Emissionen von CORINAIR bzw. EMEP gibt. Dies ist gleichzeitig auch eine Überprüfung der Methode zur Aktualisierung von Emissionen.

Dazu wird in Tabelle 6.3 ein Überblick der NO_x -Emissionen 1994 für alle Länder Europas gegeben – jeweils mit den offiziellen EMEP Emissionen und den in dieser Arbeit berechneten Emissionswerten einander gegenübergestellt. Die Tabelle zeigt Abweichungen von meist unter 10 % und in wenigen Fällen von über 20%, tendenziell für westeuropäische Länder jedoch geringere Abweichungen als für osteuropäische. Dies ist zum einen auf den kontinuierlicheren Verlauf der Emissionen im Westen zurückzuführen, zum anderen aber auch bedingt durch die deutlich umfangreichere und zuverlässigere Datenlage speziell in der Europäischen Union. Für die Ukraine und die Tschechische Republik ergibt sich daher auch eine Abweichung von rund

Tabelle 6.3: NO_x-Gesamtjahreswerte 1994 mittels Regressionsanalyse (RA) geschätzt im Vergleich mit EMEP Emissionswerten [t/a]

Land	NO _x RA	NO _x EMEP	Land	NO _x RA	NO _x EMEP
Albanien	22923	24000	Belgien	348126	345000
Bosnien-Herzegowina	71393	80000	Bulgarien	283797	230000
Dänemark	280697	272000	Deutschland	2315110	2210000
Estland	51155	50000	Finnland	292702	282000
Frankreich	1641523	1682000	Griechenland	356684	357000
Großbritannien	2568905	2422000	Irland	114977	117000
Island	22026	22000	Italien	1993125	2157000
Jugoslawien	52707	52000	Kroatien	49477	59000
Lettland	39884	45000	Litauen	78187	77000
Luxemburg	22894	23000	Macedonien	37094	39000
Moldavien	32965	35000	Niederlande	556220	542000
Norwegen	223694	222000	Österreich	182304	177000
Polen	1047909	1105000	Portugal	233479	254000
Rumänien	293466	319000	Rußland	2119699	1865000
Schweden	384821	372000	Schweiz	140814	139000
Slovenien	58519	66000	Slowakei	216128	173000
Spanien	1010515	1223000	Türkei	166939	175000
Tschechische Rep.	570175	435000	Ukraine	738433	568000
Ungarn	177378	188000	Weißrußland	213827	203000

30%.

Für 1998 wurden die Ergebnisse der Fortschreibung in Tabelle 6.4 aufgelistet.

Diskussion der Ergebnisse

Bei der Fortschreibung von Emissionswerten mittels emissionsrelevanter Einflußgrößen muß beachtet werden, daß die Einflußgrößen selbst auch nicht für aktuelle Jahre zur Verfügung stehen, da sie nicht ermittelbar sind (Jahresdurchschnittstemperatur, etc.). Daher müssen die Parameter um ein, bei manchen älteren Statistiken auch um 2-3 Jahre durch plausible An-

Tabelle 6.4: Emittierte Gesamtmasse der Stoffe NO_x, SO₂, CO und NMVOC im Jahr 1998 [1000 t/a]

Land	SO ₂	NO _x	CO	NMVOC	Land	SO ₂	NO _x	CO	NMVOC
Albanien	68	26	92	35	Belgien	273	335	1 333	304
Bosnien-H.	517	91	313	111	Bulgarien	1 510	228	734	134
Dänemark	140	245	685	137	Deutschland	3 235	2 185	6 390	2 198
Estland	98	55	102	14	Finnland	113	261	418	180
Frankreich	1 292	1 587	9 355	2 158	Griechenland	590	375	1 305	364
Großbritannien	2 724	2 411	4 615	2 136	Irland	182	130	356	100
Island	22	22	22	6	Italien	1 386	2 222	8 811	2 230
Jugoslawien	433	54	192	51	Kroatien	64	47	423	67
Lettland	54	47	196	18	Litauen	151	99	340	76
Luxemburg	9	19	86	13	Macedonien	110	39	143	7
Moldavien	99	28	148	2	Niederlande	167	544	886	383
Norwegen	40	213	817	354	Österreich	95	187	1 970	371
Polen	2 872	1 194	4 734	830	Portugal	385	277	1 214	244
Rumänien	906	386	2 375	490	Rußland	2 093	1 754	8 719	2 665
Schweden	113	375	1 127	495	Schweiz	34	134	573	234
Slovenien	180	69	99	34	Slowakei	357	176	380	179
Spanien	1 730	1 102	4 159	996	Türkei	378	186	662	185
Tschech. Rep.	1 362	541	876	307	Ukraine	1 334	502	3 679	485
Ungarn	735	185	846	148	Weißrußland	464	199	1 422	366
Europa:	26 315	18 530	70 297	19 107					

nahmen extrapoliert werden, falls eine Emissionsdatenbank für das laufende Jahr benötigt wird. Bei Temperaturen, die maximal um ein Jahr ergänzt werden müssen, wurde dies z.B. durch langjährige Mittelwerte eines jeden Landes ermöglicht. Bei kontinuierlicheren Parameterverläufen wie z.B. für Kraftfahrzeugbestandszahlen ist eine lineare Fortführung der Tendenz der letzten Jahre sinnvoller.

Trotz kurzer zu ergänzender Zeiträume birgt die Extrapolation bei nicht-monoton verlaufenden Parametern (Temperatur, event. Energieverbräuche) Unsicherheiten, die sich auf die Emissionswerte auswirken.

Von entscheidender Wichtigkeit für das Ergebnis der Regressionsanalyse ist die Qualität der Eingangsdaten, d.h. sowohl der Parameterwerte als auch der Emissionen. Hier muß erwähnt werden, daß alle genannten Daten grundsätzlich mit Fehlern behaftet sein können, es jedoch keine Angaben über die Genauigkeit oder Zuverlässigkeit der Daten gibt. Auch ist es aufgrund des großen Datenumfanges kaum möglich, Daten einzeln zu prüfen.

Falls falsche Werte vorhanden sind, beeinträchtigen sie sowohl die Regression als auch die Schätzung von Emissionen. Die Methode der Fortschreibung über Regressionsanalyse bietet jedoch im Gegensatz zu anderen Methoden die Möglichkeit, über die Analyse Fehler zu identifizieren, die dann 'von Hand' korrigiert werden können. In der Tat konnten so einige Fehler auch in den erhobenen EMEP und CORINAIR Emissionsdaten erkannt und berichtigt werden.

6.4 Ergebnis des Qualitätskonzeptes

Genauigkeit

Um ein Maß für die systematischen Unsicherheiten angeben zu können, müssen die Qualitätsklassen A bis E auf Seite 52 quantifiziert werden. Aufgrund der Vielzahl der Quellen und der aufwendigen Berechnungsmethoden können diese nur abgeschätzt werden. Hierbei geht es um eine erste Einschätzung der Unsicherheiten, nicht um eine exakte Fehleranalyse.

Die Länderbeauftragten für Emissionsberechnung diskutierten auf der Jahrestagung der 'UNECE-Task Force on Emission Inventories' (UNECE-Task-Force, 1998) die Quantifizierung der Klassen A bis E. Da auch zwischen den Ländern aufgrund der nationalen Gegebenheiten Emissionen unterschiedlich genau berechnet werden können, fanden Unsicherheitsbandbreiten als Maß der systematischen Abweichungen den größten Konsens. Diese sind in Tabelle 6.5 aufgelistet und geben auf jeden Fall eine Vorstellung der Größenordnung systematischer Unsicherheiten. Demnach können mit A bewertete Emissionsdaten mit einer maximalen Unsicherheit von +/- 10–30% bestimmt werden. Dies gilt ausschließlich für SO₂-Emissionen aus Verbrennungsprozessen in Großanlagen (s. Tabelle 3.2). Die maximale Unsicherheit der Klasse E bewegt sich hingegen im Bereich bis zu einer Größenordnung. Mit E bewertete Emissionen zählen jedoch nicht zu den Vorläufersubstanzen für Photooxidantien und spielen daher in dieser Arbeit eine untergeordnete Rolle.

Der **maximale Gesamtfehler** je Schadstoff errechnet sich unter Annahme der Werte von Tabelle 6.5 aus der Summe der Unsicherheiten je Quellgruppe mit deren prozentualen Anteil gewichtet. SO₂ kann demnach mit größter Genauigkeit (15–46%), d.h. mit kleinster systema-

Tabelle 6.5: Quantitative Bewertung des maximalen Fehlers von Unsicherheiten der CORINAIR Emissionen nach (UNECE-Task-Force, 1998)

Bewertungsklasse	Maximaler Fehler
A	10 - 30 %
B	20 - 60 %
C	50 - 150 %
D	100 - 300 %
E	500 - 1000 %

tischen Unsicherheit bestimmt werden, während für die klimarelevanten Gase ('Treibhausgase') CH₄ und N₂O die größten maximalen Abweichungen ermittelt wurden (s. Tabelle 6.6). Hierbei ist allerdings die stochastische Mittelung außer acht gelassen, die sich aus der Sum-

Tabelle 6.6: Maximaler systematischer Gesamtfehler, berechnet unter Annahme der Werte aus Tabelle 6.5

emittierter Stoff	SO ₂	NO _x	VOC	CO	NH ₃	CH ₄	N ₂ O
max. Gesamtfehler [%]	15-46	46-139	56-168	57-162	129-350	190-456	423-866

mation der einzelnen Quellen ergibt. Bei der Verwendung in atmosphärischen Modellen sind durch stochastische Mittelung über mehrere hundert Quellgruppen (SNAP3-Ebene) wesentlich geringere systematische Unsicherheiten zu erwarten.

Präzision

Zu den Schätzwerten aus der Regressionsanalyse können Konfidenzintervalle berechnet werden. Diese müssen mit Hilfe der Matrizenmultiplikation (s. S. 53) für jeden Schätzwert einzeln ermittelt werden. Die folgende Darstellung beschränkt sich daher nur auf die wichtigsten Quellgruppen.

In Abbildung 6.8 sind die bereits gezeigten CO-Emissionen aus dem Straßenverkehr nun auch mit den entsprechenden Konfidenzintervallen dargestellt. Als Vertrauenswahrscheinlichkeit $1-\gamma$ wurde 90% gewählt, also $\gamma=10\%$. Demnach liegt der wahre Wert z.B. der CO-Emission-

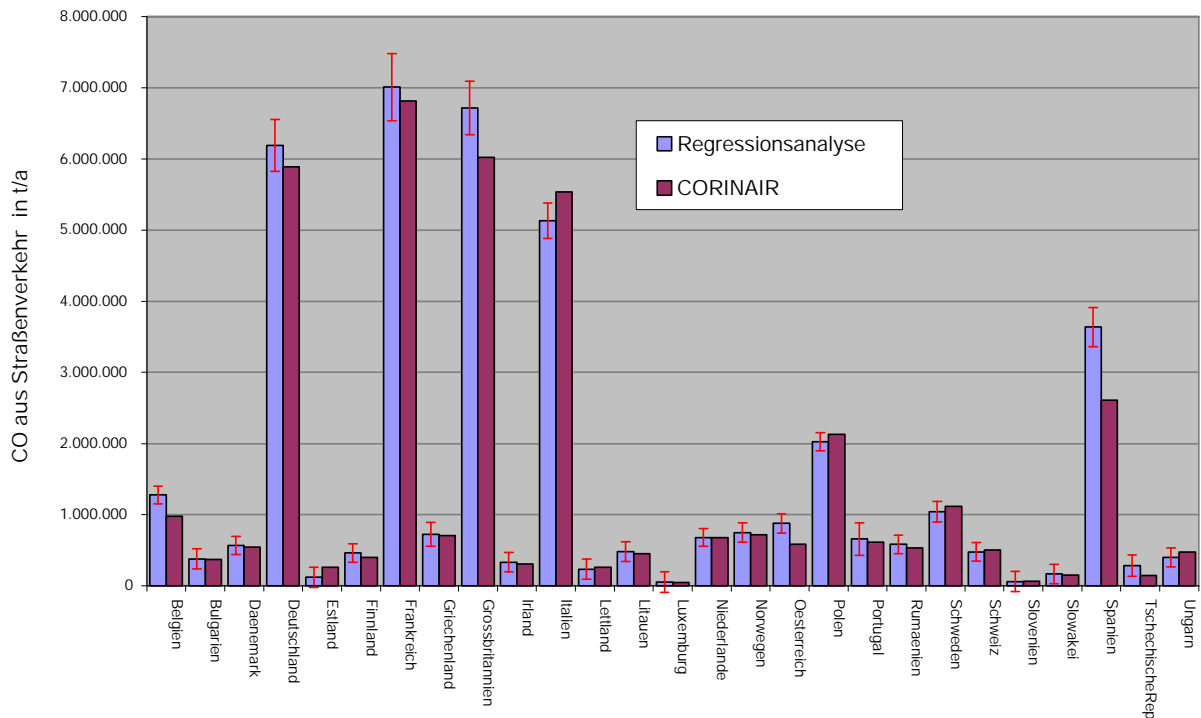


Abbildung 6.8: Konfidenzintervalle zu den Schätzwerten für CO-Emissionen aus dem Straßenverkehr (1990) mit einer Vertrauenswahrscheinlichkeit von 90%. Hierbei muß betont werden, daß die tatsächlichen Gesamtunsicherheiten weitaus größer sind (s. Unterkap. **Genauigkeit**).

en aus französischen Kraftfahrzeugen (1990) mit 90-prozentiger Wahrscheinlichkeit in dem Konfidenzintervall [6538 kt, 7480 kt] um den geschätzten Wert von 7009 kt CO. Die Unsicherheit bezüglich zufälliger Fehler kann also für jeden Emissionswert nur mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit angegeben werden.

Für die weiteren wichtigen Quellgruppen (SO_2 aus Kraftwerken, NO_x aus Straßenverkehr, NMVOC aus Lösemittelanwendung, etc.) ergibt sich ein sehr ähnliches Bild bezüglich der Konfidenzintervalle.

Vollständigkeit

Im folgenden wird Vollständigkeit auf vier Kriterien hin dargestellt.

A Vollständigkeit bzgl. Länder

Durch die räumliche Extrapolation mittels Regressionsanalyse kann die bisher bezüglich den Ländern unvollständige CORINAIR Emissionsdatenbasis vervollständigt werden. Es sind damit alle europäischen Länder enthalten (s. Abschnitt 6.1).

B Vollständigkeit bzgl. Bezugsjahr

Analog der Ergänzung fehlender Länder wurde Vollständigkeit bzgl. der Bezugsjahre durch Ergänzung der aktuellsten Jahre erreicht (s. Abschnitt 3.3).

C Vollständigkeit bzgl. emittierten Stoffen

Die benötigten Daten zu den Schadstoffen CO, NH₃, NMVOC, NO_x und SO₂ sind in der Ausgangsdatenbasis und damit auch in der erstellten gesamteuropäischen Datenbasis durchgängig vorhanden. Um die Anpassung der europäischen Emissionsdatenbank an CTMs zu gewährleisten, werden die organischen Komponenten nach (Middleton et al., 1990) in 32 Stoffklassen aufgeteilt. Diese 32 Stoffklassen können dann an unterschiedliche Chemiemechanismen der Modelle angeglichen werden. Somit ist Vollständigkeit bzgl. emittierter Stoffe gegeben.

D Vollständigkeit bzgl. Quellen

Die Integration der Daten über Kerosin- und Schiffsemissionen in das europäische Emissionsmodell (s. S. 45) stellt einen wichtigen Beitrag zur Vollständigkeit der Quellen dar. Damit ist Vollständigkeit bzgl. Quellen jedoch noch nicht gewährleistet.

Die einzige Möglichkeit, diese zu überprüfen, besteht letztendlich nur im Vergleich der berechneten Emissionen mit Konzentrationsmessungen der entsprechenden Substanzen in der Atmosphäre - eventuell mit anschließender inverser Modellierung. Solche Vergleiche wurden bereits in verschiedene Projekten für Straßenabschnitte (Corsmeier und Vogel, 1998) oder ganze Städte (Slemr et al., 1999; Möllmann-Coers et al., 1999; Klemp et al., 1999; Baumbach et al., 1999; BMBF, 1996) durchgeführt. Diese Messungen sind jedoch lokal und zeitlich stark begrenzt und können unregelmäßig oder nur punktuell emittierende Quellen nicht aufdecken (z.B. Kerosinablaß). Insbesondere können solche örtlich und zeitlich stark eingeschränkten Meßkampagnen nicht auf eine gesamteuropäische Emissionsdatenbasis übertragen werden.

Deshalb wird das Maß der Vollständigkeit wie folgt abgeschätzt:

Betrachtet man die neu hinzugenommenen Quellen in SNAP97 im Vergleich zu SNAP94 und summiert ihren nach (EMEP/CORINAIR'98, 1998) geschätzten Anteil an den Gesamtemissionen auf, erhält man ein Maß der Vollständigkeit der 1994 CORINAIR Emissionen nach heutigem Stand des Wissens – s. Tabelle 6.7.

Tabelle 6.7: Vollständigkeit bzgl. Quellen durch Vergleich der SNAP94 und SNAP97 Quellen und deren Anteil nach (EMEP/CORINAIR'98, 1998)

Substanz	SO ₂	NO _x	NMVOC	CH ₄	CO	N ₂ O	NH ₃
Anteil neuer Quellen in SNAP97 [%]	0	0,8	0,2	0,8	0	1,6	1
Vollständigkeit in [%]	100	99,2	99,8	99,2	100	98,4	99

Demnach sind zwischen 98% (N₂O) und 100% (SO₂, CO) der heute bekannten Quellen in der 94er Datenbasis enthalten. Für 1994 nicht berücksichtigt wurden z.B. natürliche Blitze, verschiedene Produktionsprozesse sowie Lösemiteleinsatz bei Feuerlöschern, Schaumprodukten und Kühlgeräten, welche mit anderen Substanzen als halogenierten Kohlenwasserstoffen arbeiten. Da die 94er Datenbasis Ausgangspunkt der Regressionsanalyse ist, kann das o.g. Vollständigkeitsmaß bzgl. Quellen für die gesamte Emissionsdatenbasis angenommen werden.

Repräsentativität

Im folgenden wird Repräsentativität auf vier Kriterien hin dargestellt.

A Repräsentativität bzgl. Länder

Unter Beachtung der auf Seite 55 gegebenen Definitionen für Länderbezeichnungen ist die Repräsentativität praktisch vollständig gewährleistet.

B Repräsentativität bzgl. Bezugsjahr

ist offensichtlich zu 100% gegeben.

C Repräsentativität bzgl. emittierten Stoffen

Die in (CORINAIR, 1996) enthaltenen emittierten Stoffe sind teils chemisch eindeutig (CO, SO₂, N₂O, CH₄, NH₃), teils eine Zusammenfassung verschiedener chemischer Verbindungen

(NMVOC, NO_x). Die chemisch eindeutigen Verbindungen sind 100% repräsentativ.

Für die beiden anderen Stoffbezeichnungen gilt: NO_x besteht nach (Bank, 1994, S.536) zu 95% aus NO und zu 5% aus NO₂. (Stern, 1994, S.6) geht von bis zu 10% für NO₂ aus. NO_x wird in Masseneinheiten als NO₂ angegeben. NMVOCs repräsentieren nach (Bloemen und Burn, 1993) organische Stoffe, die bei einer Temperatur von 20° C und einem Luftdruck von 1,013 hPa einen Dampfdruck von mehr als 1,3 hPa aufweisen.

D Repräsentativität bzgl. Quellen

Trotz größtmöglicher Abgrenzung der Quellen zueinander in Snap97 und im CORINAIR Handbuch (EMEP/CORINAIR'98, 1998) besteht die Möglichkeit von nichteindeutigen Zuordnungen von Quellen - z.B. mobile Quellen, die in Wirklichkeit für lange Zeit nicht bewegt werden (Bagger, Krane, etc.) und deshalb als stationäre Quellen eingestuft werden. Als potentiell inkonsistent erfaßte Quellen aufgrund fehlender Eindeutigkeit gelten diverse Industrieprozesse, mobile Quellen in der Industrie und auf Flughäfen und Verbrennung von Abfällen verschiedenen Ursprungs. Es gibt jedoch keine Angaben, inwieweit solche nichteindeutigen Quellen von den Beauftragten der CORINAIR-Länder unterschiedlich behandelt werden.

Offensichtlich ist, daß die Repräsentativität mit abnehmendem Detaillierungsgrad der Quellen zunimmt, also auf SNAP1-Ebene höher ist als auf SNAP3-Ebene.

Vergleichbarkeit

Für unseren Fall kann festgehalten werden, daß *Vergleichbarkeit* zwischen zwei Emissionsdatensätzen unterschiedlichen Ursprungs oder zwischen dem erforderlichen Emissionsdatensatz eines atmosphärischen Modells und dem tatsächlich verfügbaren gewährleistet ist, wenn die Definitionen für

- Schadstoffe
- Quellen bzw. Quellgruppen
- geographischer Bezug (Land, Modellgebiet, etc.)
- Bezugsjahr
- Einheiten (kg, Mg, Gg pro Stunde, Tag, Jahr)

strikt beachtet werden. Haben zwei Datensätze in allen Punkten exakt die gleiche Ausprägung, so sind sie vergleichbar.

6.5 Ergebnis der räumlichen Disaggregation von Emissionen

Die räumliche Zuordnung von Punkt-, Linien- und Flächenquellen durch Integration zusätzlicher geographischer Daten in das Emissionsmodell (s. Kap. 4) führt zu einer detaillierten räumlichen Struktur der Emissionen in ganz Europa. Einen Gesamteindruck hiervon vermittelt Abbildung 6.9, in welcher flächendeckend für Europa die NO_x -Emissionen des Jahres 1998 dargestellt sind.

Um das Ergebnis der räumlichen Disaggregation zu evaluieren, wurde eine von starker Luftverschmutzung beeinträchtigte Region in Europa ausgewählt, für die nun die hoch aufgelösten Emissionen untersucht werden. Besonders bietet sich die stark industrialisierte Region um Mailand für die Untersuchung an, da im Rahmen des europäischen Atmosphärenforschungsprogrammes EUROTRAC (Unterprojekt LOOP (Nefel et al., 1997) - Limitation of Oxidant Production) bereits ein detailliertes Emissionskataster der Stadt und ihrer Umgebung erstellt wurde. Diese Emissionsdatenbasis wurde vor Ort durch Experten mittels Befragung von Industriebetrieben, Verkehrserhebungen und Berücksichtigung von verfügbaren emissionsrelevanten lokalen Statistiken erstellt (Maffeis, 1998) und kann nun für einen Vergleich mit den eigens berechneten Emissionen verwendet werden.

Hierzu wurde ein hoch aufgelöstes Emissionskataster derselben Region erstellt, wobei darauf geachtet wurde, daß den Emissionen die exakt gleichen Gitter (geographische Projektion, Ursprung, Orientierung, Zellgröße) zugrunde liegen, um bestmögliche Voraussetzungen für den Vergleich zu bieten. Die beiden mit unterschiedlichen Methoden und von unabhängigen Personen ermittelten Emissionskataster sind in Abbildung 6.5 a) und b) dargestellt. Kataster a) wurde nach den in dieser Arbeit beschriebenen Methoden erstellt ('Top-Down'), während Kataster b) vor Ort durch Experten berechnet wurde ('Bottom-Up'). Zum Vergleich ist in Abbildung 6.5 c) das Kataster basierend auf CORINAIR Emissionen ohne räumliche Differenzierung dargestellt. Dort sind die Werte innerhalb der administrativen Einheiten konstant.

Das Modellgitter umfaßt 47 mal 54 Gitterzellen der Größe $3km \cdot 3km$ und bedeckt Mailand, einen Teil der Po-Ebene und im Norden noch Teile der schweizer Alpen. Die Angaben sind in Tonnen NO_x pro Quadratkilometer und Jahr.

In beiden Katastern ist deutlich das stark belastete Zentrum von Mailand zu erkennen.

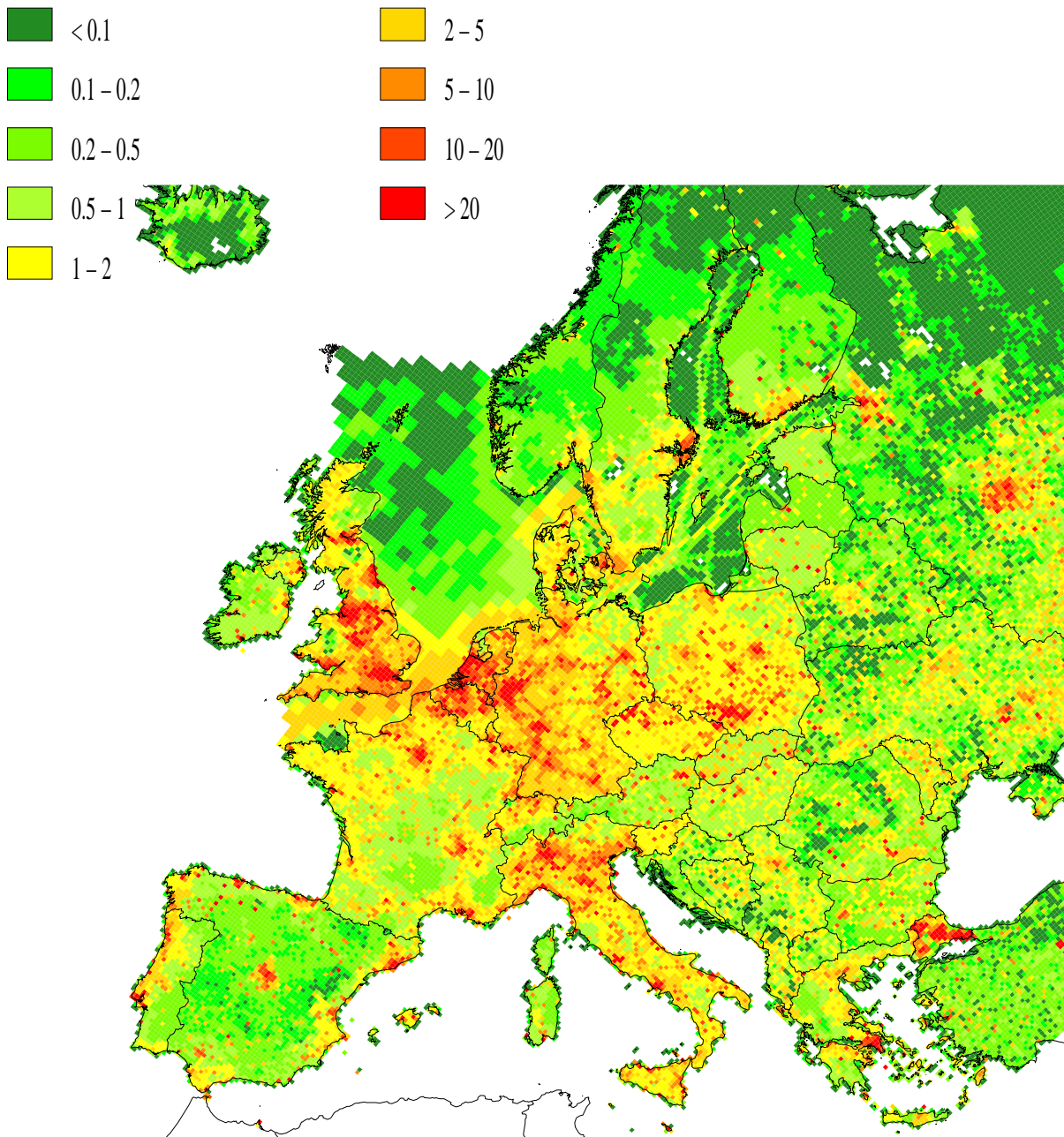
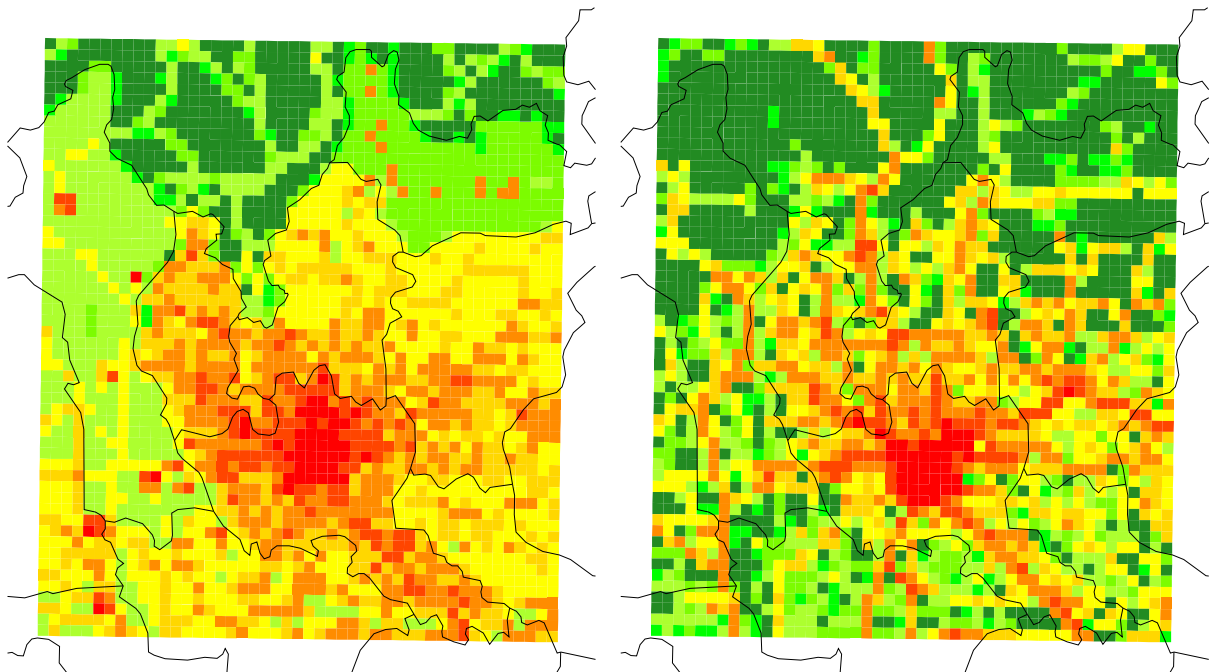


Abbildung 6.9: NO_x -Emissionen 1998 in t/km^2 für Gesamteuropa in hoher räumlicher Auflösung (16km-16km)

Ebenfalls gut sichtbar sind einzelne Straßen und Orte besonders im westlichen Teil. Der nördliche Bereich bedeckt Teile der südlichen Alpen und ist daher deutlich weniger belastet. Die NO_x -Emissionen aus dem Straßenverkehr heben sich dort besonders deutlich von dem um-

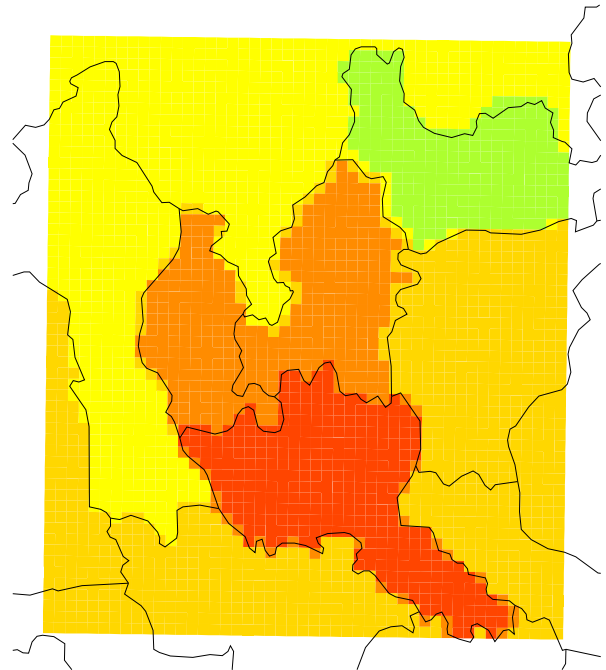


a) Kataster nach eigenen Methoden berechnet ('Top-down')

b) Kataster von Experten vor Ort berechnet (Maffei, 1998) ('Bottom-up')



Abbildung 6.10: NO_x -Emissionen für Mailand und Umgebung mit unterschiedlichen Methoden berechnet. Darstellung in quasi-logarithmischer Skala !



c) Kataster nach CORINAIR ohne zusätzliche räumliche Disaggregation

gebenden Gebiet ab. Zwischen den NO_x -Emissionen im ländlichem und städtischem Raum liegen ein bis zwei Größenordnungen Unterschied.

Eine quantitative Aussage über die Ähnlichkeit der räumlichen Struktur bietet eine geostatistische Korrelation der beiden Kataster a) und b). Dabei wird jeder Wert eines Katasters mit dem Wert der korrespondierenden Gitterzelle des anderen Katasters verglichen. Der Korrelationskoeffizient ergibt für den in der Abbildung gezeigten Schadstoff NO_x

$$R_{geo}(NO_x) = 79,4\%$$

Diese geostatistischen Korrelation erkennt jedoch nur die *exakte Entsprechung* von geographischen Strukturen in den Katastern und nicht die *Nähe* von solchen Strukturen. Würde man z.B. eine Straße um nur eine Gitterzelle verschieben, so ergäbe die Analyse in diesem Bereich keine Korrelation, da hohe Emissionen mit niedrigen und niedrige mit hohen verglichen würden. Die *Nähe* von Strukturen ist jedoch aufgrund der raschen Durchmischung von Schadstoffkonzentrationen in der Luft auch ein Qualitätsmerkmal im Vergleich. Daher werden die beiden Kataster auch auf die Nähe von räumlichen Strukturen hin untersucht. Hierzu wird ein Glättung mit folgender Gewichtungsmatrix durchgeführt.

Tabelle 6.8: Glättung mit Gewichtung: Die Emissionswerte werden mit der Matrix multipliziert, anschließend addiert und durch 15 geteilt.

1	2	1
2	3	2
1	2	1

Mit den geglätteten Katastern ergibt sich ein wesentlich höherer Korrelationskoeffizient von

$$R_{geo,gew}(NO_x) = 91,5\%$$

Derselbe Vergleich läßt sich zwischen dem ursprünglichen Datensatz (Abb. 6.5 c) und dem Kataster von (Maffei, 1998) (Abb. 6.5 b) anstellen. Für diese beiden Datensätze ergibt sich ein Korrelationskoeffizient von

$$R_{geo}^*(NO_x) = 48,7\% \quad \text{bzw.} \quad R_{geo,gew}^*(NO_x) = 57,8\%$$

Die Korrelation fällt deutlich geringer aus, sowohl in den ursprünglichen Datensätzen als auch bei den gewichteten Werten. Die Glättung mittels Gewichtung erhöht den Korrelationskoeffizienten weniger, da Datensatz c) bereits wenig räumliche Strukturen besitzt.

Die räumliche Verteilung von Emissionen nach den hier beschriebenen Methoden stellt somit eine wesentliche Verbesserung von Emissionskatastern dar. Berücksichtigt man noch, daß die räumliche Struktur durch völlig unterschiedliche Methoden unabhängig voneinander entstand, ist ein Korrelationskoeffizienten von über 90 % recht gut.

Der entscheidende Vorteil der in dieser Arbeit beschriebenen Methoden gegenüber der 'Bottom-Up'-Methode liegt jedoch in der Flexibilität. Emissionskataster nach dem 'Bottom-Up'-Ansatz sind mit großem Aufwand verbunden und können daher nur für eine begrenzte Anzahl von Regionen erstellt werden. Mit der neuen Methode erstellte Kataster hingegen

- können für jede Stadt oder Region in Europa erstellt werden,
- sind ohne zusätzlichen Aufwand auch auf ein nachträglich vergrößertes Untersuchungsgebiet erweiterbar,
- sind durch die schnelle Bereitstellung bereits für vorbereitende Maßnahmen, z.B. einer Meßkampagne, verfügbar,
- können auch große Gebiete bis hin zu Gesamteuropa in hoher räumlicher Auflösung abdecken,
- ermöglichen Untersuchungen mit verschachtelten Modellgittern (Nesting Grids, s. S.2.1).

6.6 Ergebnis der zeitlichen Disaggregation von Emissionen

Die jährlichen Emissionswerte in den Ausgangsdatensätzen wurden für ganz Europa und alle verfügbaren Schadstoffe auf stündliche bzw. tägliche Werte von 1. Januar bis 31. Dezember disaggregiert. Damit sind zeitlich hoch aufgelöste Emissionskataster für beliebige (Sommersmog-) Episoden eines jeden Jahres verfügbar.

Der Verlauf der zeitlichen Variation von Emissionen wird in Abbildung 6.11 beispielhaft anhand zweier Länder dargestellt. In der oberen Kurve sind NMVOC-Emissionen aus Rußland über einen Zeitraum von 8 Tagen (03.05.1998 bis 10.05.1998, Sonntag bis Sonntag) dargestellt, in der unteren der entsprechende Verlauf von NMVOC-Emissionen aus Großbritannien. Beide Verläufe setzen sich aus den Anteilen der 11 Hauptquellgruppen zusammen, wobei der *Straßenverkehr*, *Produktionsprozesse* und *Lösemittleinsatz* die dominierenden Quellgruppen

für NMVOC sind. Die Auswahl der Länder wurde aufgrund der großen Zeitdifferenz durch die unterschiedlichen Zeitzonen getroffen. Die Zeitachse ist einheitlich für beide Verläufe - UTC.

Beim Vergleich der Minima für reguläre Wochentage - senkrechter Strich in der Mitte - wird diese Differenz der Ortszeiten von 3 Stunden deutlich. (Großbritannien liegt in der WEZ, Rußland eine Stunde vor der OEZ).

Am Montag, 04.05.1998, war in Großbritannien ein Feiertag (May Day, 1. Montag im Mai). Dies läßt sich auch am zeitlichen Verlauf der NMVOC-Emissionen (untere Kurve, zweiter Tag) feststellen. Der Spitzenwert des Tages ist im Vergleich zu den folgenden Wochentagen geringer. Dienstag, Mittwoch und Donnerstag sind in beiden Ländern reguläre Arbeitstage und haben daher denselben Verlauf. Die Verläufe an Freitagen sowie auch an Montagen, die keine Feiertage sind, weichen leicht von den Kurven übriger Wochentage ab, da Beginn und Ende der Arbeitswoche nochmals andere Bedingungen darstellen. An Samstagen und Sonntagen werden in beiden Ländern deutlich weniger flüchtige Substanzen emittiert, da Einsatz und Produktion von Lösemitteln in der Industrie und auch der berufsbedingte Verkehr geringer sind.

In Verbindung mit den Ergebnissen aus Kap. 6.5 lassen sich für jede Stunde *Emissionskarten* von Europa in hoher räumlichen Auflösung erstellen. In Abbildung 6.12 ist dies beispielhaft für 6 Stunden eines Tages (4, 8, 12, 16, 20 und 24 Uhr) dargestellt.

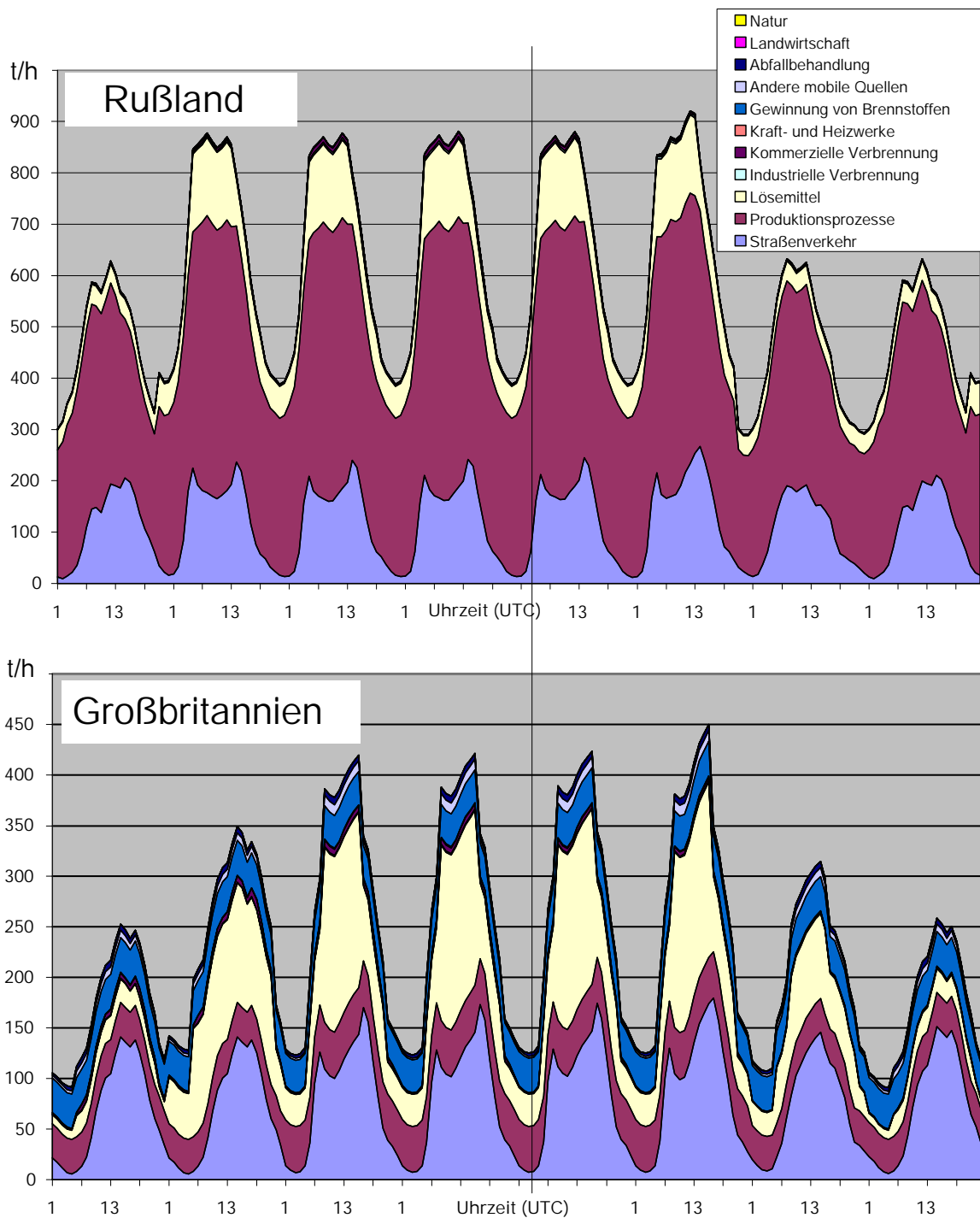


Abbildung 6.11: Zeitliche Variation der NMVOC-Emissionen von Großbritannien und Rußland vom 03.05.1998 bis 10.05.1998 (Sonntag bis Sonntag)

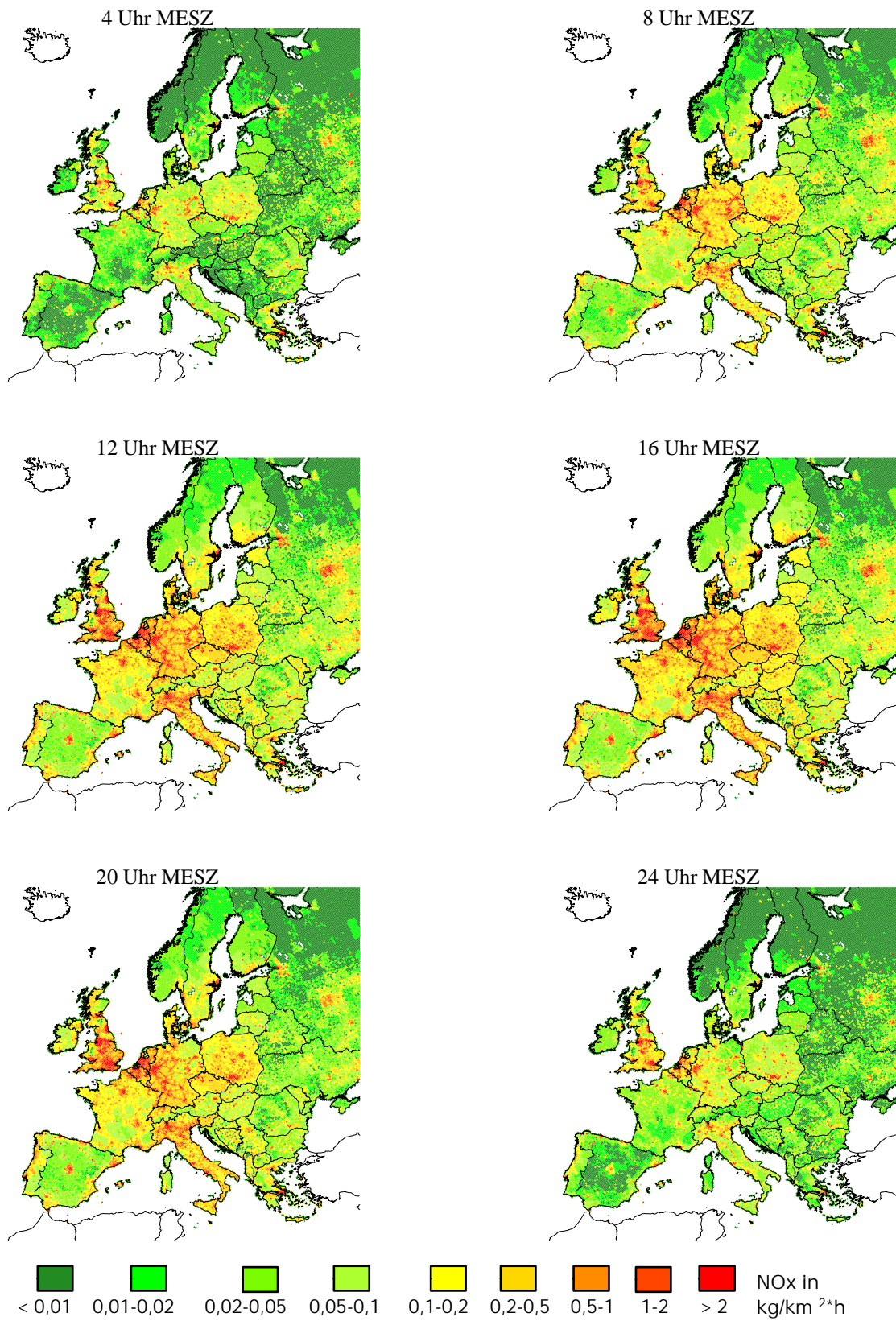


Abbildung 6.12: NO_x-Emissionen [kg/km²·h] in stündlicher Auflösung am 21.06.1998

7 Exemplarische Anwendung: Photooxidantienbildung durch Kerosinemissionen

Da eine multiskalig hoch aufgelöste Emissionsdatenbasis, wie sie in den vorangegangenen Kapiteln erarbeitet und vorgestellt wurde, nicht dem Selbstzweck dient, sondern für atmosphärische Modelle verwendet wird, muß die Anwendbarkeit der erarbeiteten Ergebnisse gewährleistet sein.

Bislang waren Emissionsdaten auf europäischer Ebene nur sehr begrenzt einsetzbar. Durch einen hohen Bearbeitungsaufwand und eine geringe Flexibilität der verwendeten europäischen Emissionsmodelle konnten nur ein bis zwei Sommerepisoden eines bestimmten Jahres auf ebenso wenigen Modellgittern und -gebieten ermittelt werden. Nun steht eine sehr viel umfangreichere und flexiblere Emissionsdatenbasis zur Verfügung. Deren umfangreiche Anwendbarkeit für Chemie-Transport-Modelle (CTM) wird im folgenden gezeigt.

Die Untersuchung von Kerosinablässen auf die Luftqualität erfordert durch die Vielzahl an tatsächlich stattgefundenen, bezüglich Raum und Zeit nur sehr punktuell auftretenden Kerosinablässen vielfältige Merkmale von der Emissionsdatenbasis: ein lückenloser Umfang der Bezugsjahre sowie eine flexible Wahlmöglichkeit der Episoden während eines Jahres ist nötig, um Ablässe in verschiedenen Jahren und zu unterschiedlichster Jahreszeit untersuchen zu können. Da die wichtigsten chemischen, physikalischen sowie meteorologischen Prozesse sich in den ersten Stunden nach dem Ablaß abspielen, sind zudem Emissionswerte in *stündlicher* Auflösung unbedingt erforderlich. Der Kerosinablaß als Notfallmaßnahme - wie im folgenden näher erläutert - hat zur Folge, daß die überflogenen Gebiete prinzipiell in jeder Region Europas liegen können. Da das betroffene Gebiet meist eine geringe Ausdehnung besitzt, bedarf es für die Emissionsdaten daher außerdem einer kleinskaligen räumlichen Auflösung für beliebige Regionen in Europa. Die Anpassung europäischer Emissionsdaten an ein CTM schließlich erfordert eine flexible Datenstruktur - insbesondere zur Anpassung der NMVOC-Substanzen an den im CTM verfügbaren Chemiemechanismus.

Mit dieser exemplarischen Untersuchung kann die weitreichende Anwendbarkeit der erarbeiteten europäischen Emissionsdatenbasis erprobt werden. Mit der Beantwortung der bislang

ungeklärten Frage, wie Kerosinablässe die Luftqualität beeinträchtigen, kann in diesem Kapitel zugleich auch die Bedeutung einer flexiblen europäischen Emissionsdatenbasis für neue wissenschaftliche Fragestellungen hervorgehoben werden.

Doch zunächst werden die näheren Umstände eines Kerosinablasses erläutert.

7.1 Was ist ein Kerosinablaß ?

Langstreckenflugzeuge sind technisch so konzipiert, daß sie durch Betankung großer Treibstoffvorräte mit einem höheren Gewicht starten als aus Sicherheitsgründen für die Landung der Maschine zugelassen ist. Das Gewicht des mitgeführten Kerosins trägt mit häufig über 100 Tonnen beträchtlich zum Gesamtgewicht der Flugzeuge bei. Nach Beendigung des regulären Langstreckenfluges ist das maximal zulässige Landegewicht durch Treibstoffverbrauch unterschritten, und das Flugzeug kann ohne Sicherheitsrisiko landen. Durch diese technische Auslegung der Langstreckenflugzeuge kann deren Gesamtgewicht reduziert werden, und damit für den planmäßigen Flugverlauf regelmäßig Kraftstoff eingespart werden.

Bei außerplanmäßigen, d.h. frühzeitigen Landungen, z.B. technischer oder medizinischer Notfall, muß jedoch aus Sicherheitsgründen dieses überschüssige Kerosin über eine spezielle Vorrichtung - Druckdüsen an den Tragflächen - abgelassen werden ('Kerosinablaß' oder 'Kerosin dump'). Dies geschieht in von der Flugsicherung ausgewiesenen Flugräumen über 'dünnbesiedelten' Gebieten, sog. flugverkehrsarmen Zonen, also außerhalb des Flugraumes von Flughäfen. Soweit der Notfall dies zuläßt, muß eine Mindestflughöhe von 1500 Metern und -geschwindigkeit von 450 km/h eingehalten werden. Bei Abblaßgeschwindigkeiten von rund 2500 Litern pro Minute dauert der ganze Vorgang lediglich 15 bis 60 Minuten.

Gelegentlich beim Landeanflug sichtbare Flüssigkeitsstreifen, die von den Tragflächen auch kleinerer Maschinen ausgehen, sind jedoch kein Kerosinablaß, sondern Kondensstreifen, die bei erhöhter Luftfeuchtigkeit durch Wirbel an den Tragflächen (Wirbelschleppen) entstehen. Diese werden häufig als Kerosinablaß mißinterpretiert und führen zu Verwirrung und falschen Schlußfolgerungen über das Umweltbewußtsein von Fluggesellschaften und Flughafenbetreibern. Schon allein aus wirtschaftlichen Aspekten wird Kerosin nur in Notfällen abgelassen, denn bei rund 100 Tonnen entspricht der Verlust gut 50.000 DM.

Ein Notfall mit Kerosinablaß kommt in Europa ca. 280 mal pro Jahr vor. In rund der Hälfte der Fälle sind zivile Flugzeuge betroffen, die anderen Ablässe sind von militärischen Maschi-

nen verursacht. In Deutschland sind die Vorgänge meldepflichtig und bei dem Deutschen Flugdienst anzugeben. Aufzeichnungen existieren dort seit 1987.

Dieses auch in der Öffentlichkeit (Backa, 1997; dv, 1997; BAZL, 1998; TÜV, 1992) und in der Politik (Hessischer Umweltminister, 1988; Bundesregierung, 1991) diskutierte Thema wurde stets unter dem Gesichtspunkt der Bodenkontamination diskutiert und unter welchen Bedingungen Kerosin biologisch abgebaut wird.

In der Diskussion bisher unbeachtet ist jedoch der Gesichtspunkt einer indirekten Gefährdung. Da Kerosin zu den flüchtigen organischen Komponenten (NMVOC) und damit zu den Vorläufersubstanzen von Photooxidantien zählt, können Sekundärschadstoffe in diesem Zusammenhang in der unteren Atmosphäre entstehen. Die chemische Zusammensetzung von Kerosin läßt auf ein hohes Ozonbildungspotential schließen, so daß unter ungünstigen meteorologischen Bedingungen eine Überschreitung der Ozongrenzwerte in bodennahen Schichten der Atmosphäre denkbar ist, und eine Gefährdung von Mensch und Umwelt nicht ausgeschlossen werden kann.

In diesem Kapitel wird deshalb dem bisher unbeachteten Aspekt des Kerosinablasses unter folgender Fragestellung nachgegangen:

- Unter welchen Umständen führte bisher ein Treibstoffablaß zu einer signifikanten Erhöhung von bodennahem Ozon ?
- Wurde in einem der Fälle der Schwellwert von 120 ppb für Ozonkonzentrationen überschritten ?
- Lassen sich gegebenenfalls solch hohe Ozonkonzentrationen vermeiden ?

Zur Beantwortung dieser Fragen wird ein Trajektorien-Boxmodell eingesetzt: mittels retrospektiver Simulation der Chemie- und Transportprozesse in der Mischungsschicht kann die Einwirkung der bisher stattgefundenen Treibstoffablässe auf die Photooxidantienbildung rekonstruiert werden.

7.2 Modellbeschreibung

7.2.1 Chemische und physikalische Eigenschaften von Kerosin

Kerosin [griech.] ist ein Gemisch aus Kohlenwasserstoffen der Größe C₉–C₁₆ (CONCAVE, 1995, S.2), das durch fraktionierte Destillation von Erdöl bei 180–240° C oder durch Kohlenmonoxidhydrierung hergestellt wird. Gerade und verzweigte Alkane bzw. Zyклоalkane machen bereits einen von Anteil ca. 70% (vol.) aus. Weitere chemische Komponenten sind aromatische Kohlenwasserstoffe, hauptsächlich Alkylbenzole und Alkylnaphtalene (ca. 25%) und Alkene (5%).

Den Anforderungen an Flugtreibstoff entsprechend darf der Gefrierpunkt bei maximal -45° C liegen. Die Wasserlöslichkeit von Kerosin ist sehr gering. Der geringe dennoch lösliche Anteil besteht überwiegend aus aromatisierten Kohlenwasserstoffen. Mit einer Dichte von 0,75 bis 0,85 g/cm³ würde das Kohlenwasserstoffgemisch in Wasser an der Oberfläche schwimmen.

Bei Freisetzung von Kerosin in die Umwelt wird es trotz seines hohen Siedebereiches von ca. 200° C schnell verdunsten. Die Halbwertszeiten vieler untersuchter Einzelkomponenten, die im Treibstoff gefunden werden, betragen in der Atmosphäre bei Sonneneinstrahlung weniger als einen Tag (CONCAVE, 1995, S.25).

Im Hinblick auf photochemische Prozesse sind bei den Kerosinbestandteilen vor allem chemische Eigenschaften bedeutend, die ein Maß für die Photooxidantienbildung darstellen. Zu ihnen zählen das POCP - 'Photochemical Ozone Creation Potential' (Derwent et al., 1996) und die OH-Reaktivität.

Bei der Betrachtung der Werte der Kerosin-Komponenten zeigt sich (s. Tabelle 7.1), daß alle Komponenten die Photooxidantienbildung begünstigen, es diesbezüglich also keine unreaktiven Anteile gibt. Im Vergleich mit anderen VOC-Komponenten sind die POCP-Werte und OH-Reaktivität durchschnittlich hoch, teilweise besitzen sie sogar extrem hohe Ozonbildungspotentiale. Der nach den Anteilen gewichtete Durchschnittswert aller Kerosinkomponenten (POCP: 56,25; OH: 3,46·10⁴/(ppm·min)) liegt für beide Größen deutlich über dem Mittelwert aller VOC-Substanzen (POCP: 43,6; OH: 2,32·10⁴/(ppm·min)) - beim POCP um 29% darüber und bei der OH-Reaktivität sogar um 49% über der mittleren OH-Reaktivität aller VOC-Komponenten. Damit ist eine signifikante Beeinflussung der Bildung von Sekundärschadstoffen in der Atmosphäre durch Anwesenheit von verdunstetem Kerosin zu erwarten.

Tabelle 7.1: Für die Photochemie relevante chemische Größen der Kerosinbestandteile.

VOC-Komponente (C ₉ –C ₁₆)	Anteil (%)	POCP ¹	OH-Reaktivität ²
Alkane	35,0	37,5	2,24
Zykloalkane	35,0	50,0	2,06
Alkylbenzole	12,5	115,0	9,16
Alkylnaphthalene	12,5	75,0	3,59
Alkene	5,0	37,5	7,18
Durchschnittswert (gewichtet)		56,25	3,46
Vergleichswerte:			
Ethen		100,0	1,30
Mittelwert aller VOCs		43,6	2,32

¹ POCP - Photochemical Ozone Creation Potential

² in 10000/(ppm·min)

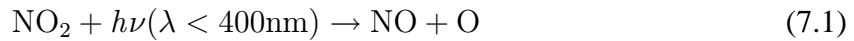
7.2.2 Grundschema der atmosphärischen Photochemie

Hier sollen die Grundzüge der atmosphärischen Photochemie in einfacher Weise dargestellt werden (überwiegend nach (Stern, 1994)), die zum Verständnis der Bildung von Photooxidantien wichtig sind. Tatsächlich ist die Chemie der Troposphäre um ein Vielfaches komplexer, umfaßt “eine ungeheure Vielzahl an chemischen Reaktionen in einem unkontrollierbaren und sich bewegenden Reaktionsgefäß“ (Graedel und Crutzen, 1994, S.150). Für detailliertere Darstellungen sei auf z.B. (Wayne, 1991; Seinfeld und Pandis, 1998; Atkinson, 1990) verwiesen. Zum prinzipiellen Verständnis der Ozonbildung, dessen Zusammenhang mit den wichtigen Vorläufersubstanzen NMVOC und NO_x und den meteorologischen Rahmenbedingungen, genügt jedoch die folgende Zusammenfassung.

Ozonbildung in der Troposphäre

Während des Tages kann durch Einwirkung der Sonnenstrahlung NO₂ dissoziiert werden (Gl. 7.1). Aus der Photolysereaktion entstehen NO und ein einzelnes Sauerstoffatom O im Grundzustand. Letzteres bildet, wenn es sich an ein Sauerstoffmolekül O₂ anlagert, Ozon O₃ (Gl.7.2). Diese Reaktionskette wird durch die schnelle Reaktion von O₃ mit NO wieder umgekehrt (s. Gl. 7.3). Somit stehen die an den Reaktionen beteiligten Substanzen in einem Gleichgewichts-

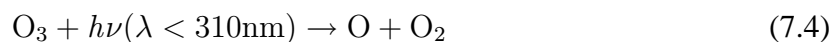
zustand. O₃ wird also nicht unbegrenzt produziert. Der Gleichgewichtszustand hängt sowohl von den Konzentrationen der beteiligten Verbindungen als auch von der spektralen Lichtintensität ab.



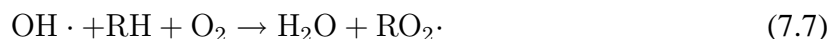
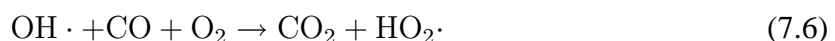
Dieser Gleichgewichtszustand erklärt, warum es innerhalb von Ballungsgebieten oder an Autostraßen nur zu geringen Ozonkonzentrationen kommt: anthropogen verursachtes NO_x besteht überwiegend aus NO (95%) und nur in geringem Maße aus NO₂ (5%). Damit begünstigt es durch Verschieben des NO/NO₂-Gleichgewichts zu höheren NO-Anteilen die Degeneration von O₃ und Bildung von NO₂ nach Gl. 7.3. Eine Minderung des Ozonvorläufers NO_x an diesen Quellen würde in Quellnähe zu einer - scheinbar paradoxen - Erhöhung der Ozonkonzentration führen.

Daher stellt sich die Frage, woher das für Gl. 7.1 erforderliche NO₂ stammt, welches zu den tatsächlich beobachteten hohen O₃ Konzentrationen an Sommertagen führt, wenn es nicht vorher ein O₃-Molekül zerstört hat.

Im Zusammenhang der ozonunabhängigen Stickstoffdioxid-Produktion treten die weiteren Vorläufersubstanzen CO und VOC in Erscheinung. Diese reagieren mit OH-Radikalen und Sauerstoff O₂ zu Peroxiradikalen. Die zuvor erfolgte OH-Radikalbildung kann durch Photolyse von Ozon (Gl. 7.4) zustande kommen: das freigesetzte O-Atom kann auch mit einem Wassermolekül zwei OH-Radikale bilden (Gl.7.5).



Nun stehen OH-Radikale zur Verfügung, die das Kohlenmonoxid und die organischen Verbindungen angreifen. Unter Reaktion eines Sauerstoffmoleküls entstehen Peroxiradikale - RO₂ und HO₂, mit R als Alkylrest, o.ä.:



Die Peroxiradikale oxidieren Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid, welches dann für die Photolyse zur Ozonbildung nach Gl. 7.1, 7.2 zur Verfügung steht.



Das neu entstandene Radikal OH steht für Gl. 7.6 wieder zur Verfügung und durchläuft somit einen Reaktionszyklus. Dadurch ist nicht eine erneute Photolyse von Ozon nötig, die OH-Radikale für die Peroxiradikalbildung liefert. Die Ozonkonzentration kann damit ansteigen.

RO geht weitere je nach Rest R teils sehr komplexe Reaktionspfade ein, in deren Verlauf NO mehrfach zu NO₂ aufoxidiert werden kann. Mit jeder Oxidierung von NO zu NO₂ verschiebt sich das eingangs erläuterte Gleichgewicht hin zu einer höheren Ozonkonzentration.

An einem warmen, sonnigen Tag in Mitteleuropa erreicht Ozon in der Mischungsschicht gewöhnlich eine Konzentration von 60 bis 80 ppb. Diese hängt jedoch stark von den lokalen Emissionen ab. In extremen Fällen kann die Konzentration auch auf 400 ppb steigen, wie in den 50er Jahren in Los Angeles beobachtet wurde (Photochemischer Smog).

7.2.3 Kerosineintrag in die Mischungsschicht

Bevor das abgelassene Kerosin in der Atmosphäre zur Photooxidantienbildung beitragen kann, muß es erst von der flüssigen Phase in die gasförmige Phase übergehen. Da es eine leicht flüchtige Flüssigkeit ist, geschieht die Verdunstung auch bereits vom ersten Moment der Freisetzung an. Die gesetzlichen Vorschriften für Ablässe sind so konzipiert, daß möglichst kein Kerosin den Boden kontaminiert. Entsprechende Messungen von Boden- und Pflanzenproben (TÜV, 1992; Backa, 1997) nach einem Kerosinablaß ergaben auch keine oder nur geringe Rückstände des Flugzeugkraftstoffes. Demnach verdunstet der größte Anteil im Fallen in der Luft. Die Frage bei der Photooxidantienbildung ist jedoch, in welcher Höhe wieviel des verdunsteten Kerosins verbleibt.

Entscheidend für die unmittelbar schadhafte Einwirkung hoher Ozonkonzentrationen auf Rezeptoren sind die Ozonwerte in deren Höhe, also in der bodennahen Schicht der Atmosphäre - der Mischungsschicht. Deren Höhe kann stark variieren, liegt aber in der Größenordnung von ca. einem Kilometer. Da Flugzeuge bei einem Dump eine Mindesthöhe von 1500 Metern einhalten sollen und sie diese in den meisten Fällen noch deutlich überschreiten, findet die Kerosinfreisetzung in der Regel oberhalb der Mischungsgrenzschicht statt. Ausnahmen

können dringliche Notfälle (z.B. Feuer an Bord des Flugzeuges) sein, in denen nicht mehr die vorgeschriebene Mindesthöhe erreicht werden kann. Der Regelfall sind jedoch Flughöhen in mehreren Kilometern Höhe. Die Frage ist nun, wie viel Kerosin innerhalb der Mischungsschicht verdunstet.

Während für das Boxmodell die *chemischen* Eigenschaften (Ozonbildungspotential) des Treibstoffs im Vordergrund stehen, spielen für den Kerosineintrag die *physikalischen* Eigenschaften wie Oberflächenspannung, Dichte, Dampfdruck und molekulare Masse die dominierende Rolle. Insgesamt kann man den Vorgang des Kerosineintrags in zwei sukzessive Schritte unterteilen und diese getrennt voneinander betrachten

1. Zerstäuben des Flüssigkeitsstrahles durch hohe Fluggeschwindigkeit
2. Fallen und Verdunsten der Flüssigkeitstropfen

Der erste Schritt vollzieht sich innerhalb weniger Sekunden direkt nach Freisetzung des Kerosins. Daher ist der Anteil des hierbei bereits verdunstenden Kerosins vernachlässigbar, zumal die niedrige Temperatur in Abflughöhe die Verdunstung verlangsamt. Der zweite Prozeß bewegt sich, wie im folgenden gezeigt wird, im Bereich von Minuten bis Stunden. Er entscheidet darüber, welcher Anteil des fallenden Kerosins in der Mischungsschicht in verdampfter Form vorliegt.

Zerstäuben des Flüssigkeitsstrahles

Bei Austritt aus den Druckdüsen erfährt das Kerosin eine Reibungskraft F_R in der Luft, die es in kleine Tropfen zerstäubt.

Hinzu kommt ein Prozeß, der bereits in der Wolkenbildung bekannt ist - **Koaleszenz** - und das Größenspektrum der Tropfen verändert - vgl. (Roedel, 1991, S.174). Nach der Zerstäubung befinden sich Tröpfchen unterschiedlicher Größe und damit auch unterschiedlicher Fallgeschwindigkeiten übereinander. Größere Tropfen mit Radius R fangen alle kleineren Tropfen mit Radius r ein, die sich in einem vertikalen Schlauch mit Querschnittsfläche $\pi(R+r)^2$ befinden. Damit verschiebt sich das Größenspektrum zu schwereren Tropfen hin. Beide Prozesse führen zu einer Flüssigkeitswolke mit unbekannter Größenverteilung der Tropfen.

Die Größenverteilung ist jedoch in doppelter Hinsicht vom weiteren Verlauf des Vorgangs wichtig. Zum einen bestimmt der Radius die Fallgeschwindigkeit des Tropfens in Luft und zum anderen entscheidend auch die Verdunstungsrate. Unter gleichen Bedingungen verdunstet

an stärker gekrümmten Flächen (kleinen Tropfen) jede Flüssigkeit schneller als an weniger gekrümmten Flächen (großen Tropfen). Daher braucht es in Regenwolken auch erst Tropfen mit einer Mindestgröße, bevor sie zu Regentropfen anwachsen und zu Boden fallen können (vgl. (Roedel, 1991, S.174)).

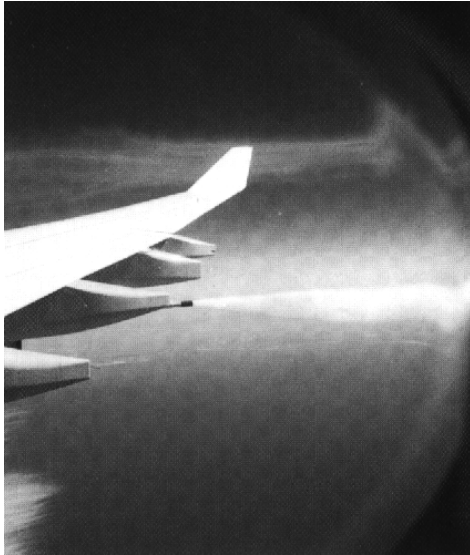


Abbildung 7.1: Aufnahme eines Kerosinablasses in großer Flughöhe (Backa, 1997): die Druckdüsen lassen Kerosin nach hinten ab.

Der kleinstmögliche Tropfenradius läßt sich aus theoretischen Überlegungen bestimmen:

Um ein Tröpfchen mit Radius r zu teilen, muß entlang des Tröpfchenumfangs U die Oberflächenspannung σ (Gerthsen et al., 1989, S.91) von Kerosin überwunden werden. Die dafür nötige Kraft bringt die Reibungskraft nach Newton auf (Gerthsen et al., 1989, S.36). Beim kleinsten noch teilbaren Tropfen entsprechen sich die Kraft der Oberflächenspannung und die Reibungskraft nach Gl.7.10

$$U \cdot \sigma = \frac{1}{2} c_W \rho_L A v^2 \quad (7.10)$$

A ist der Querschnitt des Körpers,

ρ_L die Dichte des Mediums - hier Luft,

c_W ein Widerstandskoeffizient je nach Form des Körpers (Kugel: $c_W \approx 1$) und

v die Relativgeschwindigkeit.

σ bezeichnet die spezifische Oberflächenspannung einer Flüssigkeit.

Bei einer Fluggeschwindigkeit von 120 m/s und einem angenommenen c_W -Wert von 0,5 ergibt dies einen kleinsten Radius der Tröpfchenverteilung von

$$r_{min} = 12,8 \mu m. \quad (7.11)$$

Beide Kräfte in Gl. 7.10 haben den Radius des Tröpfchens als abhängige Variable. Für Radien r kleiner $12,8 \mu m$ ist die Reibungskraft F_R aufgrund der quadratischen Abhängigkeit zum Radius kleiner als die Kraft der Oberflächenspannung F_O mit linearer Radiusabhängigkeit und kann ein Tröpfchen nicht mehr teilen.

Da der Kerosinablaß in der Literatur bereits häufig unter dem Aspekt der Bodenkontamination untersucht wurde, gibt es eine ausführliche experimentelle Studie von 1973 (Cross und Picknett, 1973), die wertvolle Hinweise für das Größenspektrum des zerstäubten Kerosins liefert.

In der Studie wurde ein Kerosinablaß mit einer Militärmaschine experimentell nachvollzogen, welche "fast identische" Ablaßraten und -druckdüsen wie zivile Langstreckenflugzeuge hatte. Bei einer Geschwindigkeit von 120 m/s wurden 450 kg/min Treibstoff unter Druck freigesetzt. Die Flughöhe wurde möglichst niedrig gehalten - unter 15 Metern, um die Größenverteilung der Tropfen unverfälscht von Verdunstungserscheinungen zu erhalten. Da die Oberflächenspannung der Flüssigkeit eine wesentliche Rolle spielt, wurden zur Gewährleistung realer Bedingungen Originaltreibstoffe verwendet. Mit einer Fallhöhe von ca. 15 m konnten beide komplexen Prozesse - Zerstäuben des Strahles und Koaleszenz der zerstäubten Tropfen - experimentell erfaßt werden. Die Tropfen wurden durch am Boden liegendes Filterpapier aufgefangen und anschließend deren Größe bestimmt. Das ausführliche Ergebnis der Analyse enthält entscheidende Anhaltspunkte über die Größe der Tropfen, wie sie in einem realen Kerosinablaß kurz nach der Freisetzung vorliegen. Zusammengefaßt ergeben sich folgende Punkte:

- der Treibstofftyp spielt keine Rolle bei der Zerstäubung
- bei Ausstoß nach hinten, wie er in der zivilen Luftfahrt üblich ist, ergeben sich Tropfenradien von $< 40 \mu\text{m}$ bis $680 \mu\text{m}$ mit einem massengemittelten Radius von $275 \mu\text{m}$
- eine höhere Fluggeschwindigkeit führt zu kleineren Tropfen
- eine höhere Freisetzungsrates führt zu größeren Tropfen

Der kleinste festgestellte Tropfenradius von $40 \mu\text{m}$ entsprach der Detektionsgrenze des Analyseverfahrens. Kleinere Tropfen haben einen maximalen Gewichtsanteil von 0,2%. Dies korrespondiert mit den theoretischen Überlegungen.

Das Größenspektrum nach (Cross und Picknett, 1973) ist in Tabelle 7.2 dargestellt. Dies ist auch die relevante Größenverteilung für die weitere Betrachtung des Kerosineintrages in die Mischungsschicht, insbesondere für das Fallen und Verdunsten der Flüssigkeitstropfen.

Fallen und Verdunsten der Flüssigkeitstropfen

Nachdem die Größenverteilung der Kerosintropfen bekannt ist, kann mit ihnen auch die Fallgeschwindigkeit und die Verdunstung ermittelt werden.

Durch ihre Masse erfahren die in der Luft verteilten Kerosintropfen eine Gravitationskraft, die im freien Fall in Gleichgewicht mit der Reibungskraft tritt. Bei Radien größer $40 \mu\text{m}$ verläßt die Fallbewegung der Tropfen den sog. laminar-viskosen Strömungszustand und geht in den turbulenten Zustand über. Die Reibungskraft des turbulenten Strömungswiderstandes - Newton'sche Reibungskraft F_R - wurde bereits in Gl. 7.10 dargestellt. Da F_R in zweiter Potenz vom

Tabelle 7.2: Verteilung der Tropfengröße direkt nach einem Kerosinablaß aus rückwärts gewandten Druckdüsen nach (Cross und Picknett, 1973). Der massengemittelten Radius beträgt ca. $275 \mu\text{m}$

Radien (μm)	<160	160-230	230-290	290-360	360-410	410-520	520-630	630-680
Massen (%)	15	20	20	20	10	10	4	1
Repräsentat. Radius	100	195	260	325	385	455	565	655
Fallgeschw.(m/s)	1,7	2,3	2,7	3,0	3,27	3,56	3,97	4,27

Radius r abhängt, die Gewichtskraft aber vom Volumen $V \sim r^3$, fallen unterschiedlich große Tropfen unterschiedlich schnell. Durch Gleichsetzen der Gewichtskraft $F_G = g \cdot m = g \cdot \rho \cdot \frac{4}{3}\pi r^3$ und der Reibungskraft F_R erhält man die maximale Fallgeschwindigkeit in Abhängigkeit vom Tropfenradius zu

$$v = \sqrt{\frac{8}{3} \frac{g \cdot \rho_{FL}}{c_W \cdot \rho_{Luft}} \cdot r} \quad (7.12)$$

Die Fallgeschwindigkeiten der zerstäubten Kerosintröpfchen sind ebenfalls in Tabelle 7.2 aufgeführt. Sie reichen von 1,7 m/s bis 4,3 m/s. Zur Berechnung der Geschwindigkeiten wurde jedem Größenbereich ein repräsentativer Radius zugrundegelegt.

Bei einer mittlere Fallgeschwindigkeit von ca. 3 m/s würden die Tropfen ohne Verdunstung in einer Stunde 10,8 km zurücklegen, bei einer Abbläshöhe von 4000 Metern also bereits in 22 Minuten den Boden erreichen. Dies zeigt den relativ kurzen zeitlichen Abstand zwischen Ablassen des Kerosins selbst in großer Höhe und der Präsenz von Kerosin in der Mischungsschicht.

Mit dem ersten Moment der Freisetzung beginnt das Kerosin jedoch bereits zu verdunsten. Die Verdunstung hängt einerseits stark von der Flüchtigkeit des Treibstoffes ab, andererseits trägt die Umgebungstemperatur wesentlich zur Verdunstungsrate bei. Die Unterschiede aus verschiedenen Treibstoffen sind beachtlich: bei einer Abbläshöhe von 1500 m kommen von

dem leichtverdunstenden Treibstoff JP-4 bei einer Bodentemperatur von -10° C noch 5% an, während von den schwerer verdampfenden JP-8 bzw. Jet A noch 50% den Boden erreichen (Paffrath, 1991). Da leichtflüchtige Treibstoffe ein höheres Sicherheitsrisiko darstellen, werden in der zivilen Luftfahrt überwiegend schwerer flüchtige Kerosine (Jet A) verwendet. Auch auf militärischen Flügen der NATO in Europa wird überwiegend das weniger flüchtige JP-8 eingesetzt (Paffrath, 1991), so daß für die in dieser Arbeit untersuchten Dumps das Verdunstungsverhalten von schwerer flüchtigen Kerosinen angesetzt werden muß.

Das verwendete Chemie-Transport-Modell stellt, wie später genauer erläutert, mit der Unterscheidung in Mischungsschicht und der darüberliegenden Schicht ein Zwei-Schicht-Modell dar. Daher wird bei der Verdunstung und dem Verbleib von Kerosin ebenfalls in zwei Luftschichten unterschieden. Die untere reicht vom Boden bis zur Mischungsschichthöhe, die obere soll von dort bis ca. 2000 m Höhe gehen. Im Laufe eines Tages kann sich die Mischungsschicht erhöhen und damit Luft von oberhalb in die atmosphärische Grenzschicht einfließen. Damit mischt sich auch zusätzliches in der oberen Schicht verdunstetes Kerosin in die bodennahe Schicht ein und beteiligt sich an den chemischen Prozessen dort.

Die Kerosinanteile beider Schichten tragen also zu den chemischen Prozessen in der unteren Atmosphäre bei, in der Mischungsschicht unmittelbar, in der darüberliegenden Schicht mittelbar durch Änderung der Mischungsschichthöhe.

Wie bei der Bestimmung des Tropfengrößenspektrums kann auch beim zweiten Prozeßschritt *Fallen und Verdunsten* auf vorangegangene Arbeiten zurückgegriffen werden, die unter dem Aspekt der Bodenkontamination mit Kerosin erstellt wurden. Berücksichtigt man das stetige Temperaturgefälle innerhalb der Troposphäre und entsprechend kürzere Fallhöhen und -zeiten, lassen sich aus (Clewel, 1983) die Anteile des abgelassenen Kerosins ableiten, das innerhalb der Mischungsschicht (bis ca. 1000 m Höhe) und innerhalb der darüberliegenden Schicht (1000 m bis 2000 m) verdunstet. (Zur Darstellung der Verdunstungsanteile wurde hier für die Mischungsschichthöhe vereinfachend 1000 m angenommen. Die Änderung dieser Höhe im Tagesverlauf ist jedoch bei der Untersuchung der Photooxidantienbildung beachtet worden.)

Die gewonnenen Ergebnisse sind in den zwei Grafiken (Abbildung 7.2 und 7.3) dargestellt. Sie zeigen in Abhängigkeit von Bodentemperatur und Flughöhe den prozentualen Anteil des freigesetzten Kerosins in den zwei Schichten (logarithmische Skala).

In beiden Schichten wird eine starke Abhängigkeit des verdunsteten Kerosins sowohl von

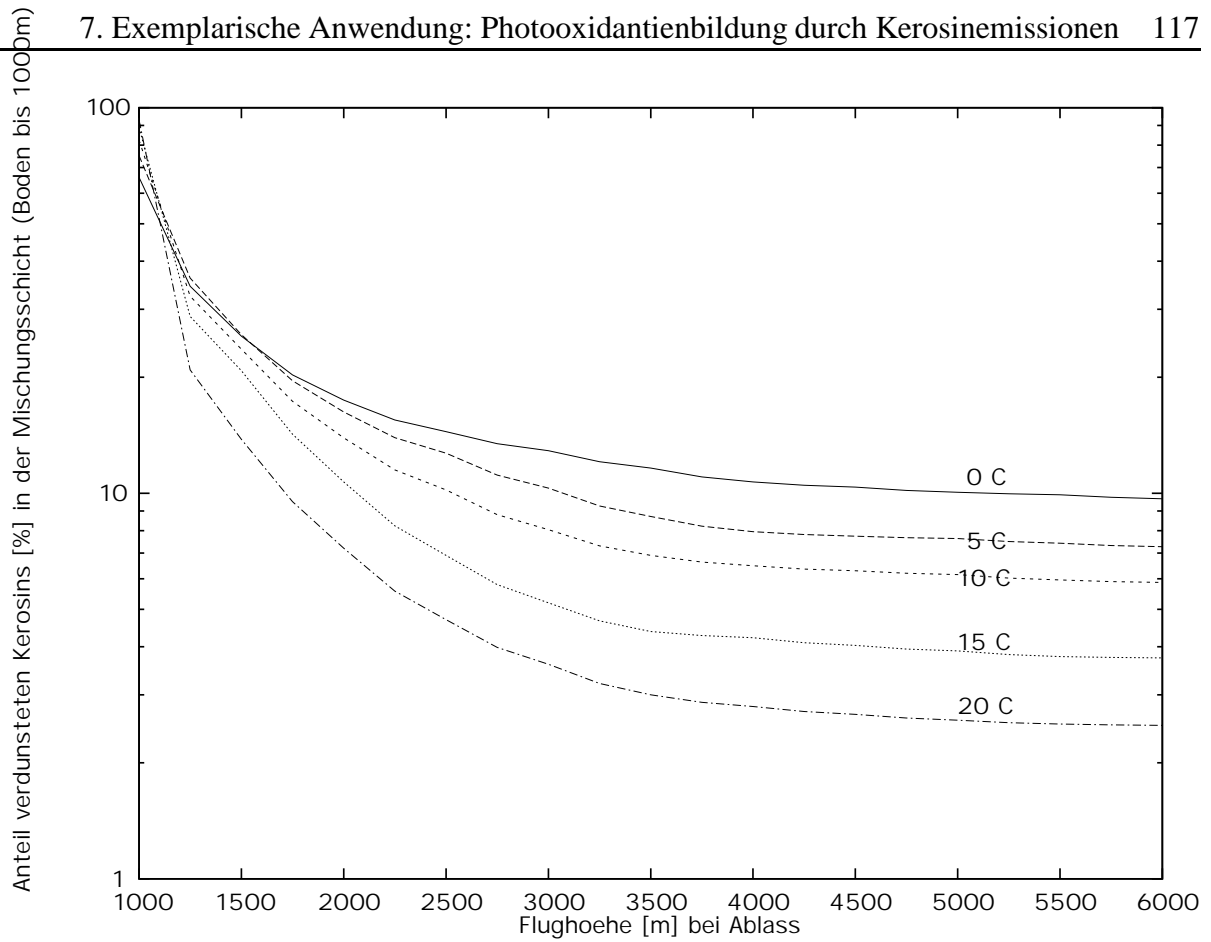


Abbildung 7.2: In der Mischungsschicht verdunstendes Kerosin in Abhängigkeit von Fallhöhe und Bodentemperatur (prozentualer Anteil der freigesetzten Gesamtmenge)

der Flughöhe als auch von der Temperatur der Außenluft deutlich. Während jedoch die Temperatur innerhalb eines Bereiches von 20°C einen Unterschied von einer Größenordnung ausmacht, bewirkt die Flughöhe schon fast zwei Größenordnungen Differenz.

Bei geringer Fallhöhe (bis ca. 1400 m) würde an warmen Tagen mehr Kerosin in der Mischungsschicht verbleiben als an kalten Tagen, da unterwegs mehr verdunstet (Abbildung 7.2). Bei großen Höhen kehrt sich die Reihenfolge um - je höher die Temperatur, desto geringer der Anteil des Kerosins, das in der Mischungsschicht verdunstet. Bei großen Höhen und hohen Temperaturen ist nämlich entsprechend mehr Kerosin schon vor Erreichen der Mischungsschicht verdunstet, so daß innerhalb der Schicht weniger verdunsten kann.

Für die obere Schicht ergibt sich ebenfalls diese Temperaturumkehr bei Flughöhen ab ca. 2400 m (Abbildung 7.3). Für Höhen unter 2000 m hat das Kerosin innerhalb der oberen Schicht weniger Zeit zum Verdunsten. Daher verringert sich bei abnehmender Höhe ab 2000 m der

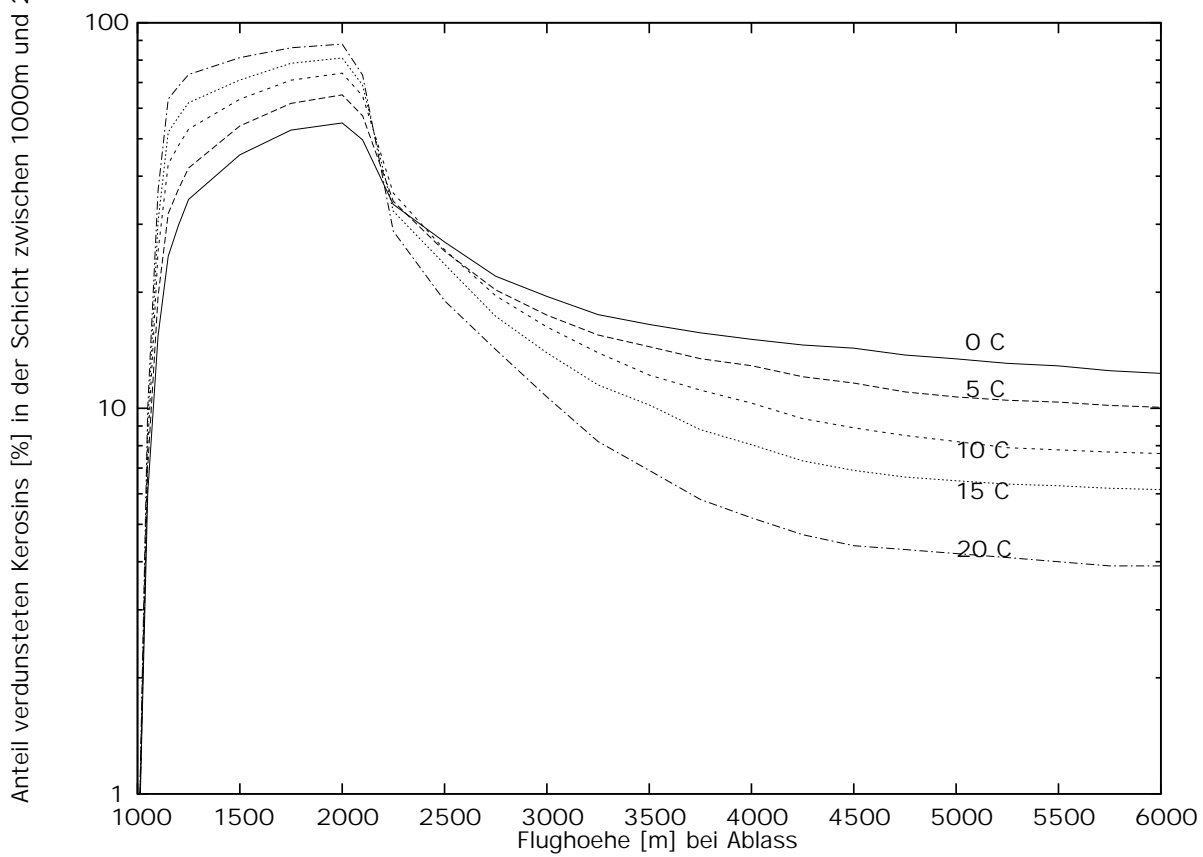


Abbildung 7.3: Oberhalb der Mischungsschicht (1000m - 2000m) verdunstender Anteil des Kerosins in Abhängigkeit von Fallhöhe und Bodentemperatur

Anteil des verdunstenden Kerosins, bis er 0% bei 1000 m Flughöhe erreicht.

Bei Höhen über 2000 m verdunstet trotz nach oben abnehmender Temperatur stets mehr Kerosin in der oberen Schicht als in der Mischungsschicht. Dies spiegelt den bereits erwähnten Sachverhalt wider, daß die Flughöhe gegenüber der Bodentemperatur die dominierende Einflußgröße ist. Bei Flughöhe oberhalb von 6000 m, verdunsten nur noch wenige Prozent auf den letzten 2000 Metern. Jedoch finden auch weniger als ein Fünftel der Kerosinablässe in Höhen über 6000 m statt (Betschka, 1998).

Die Temperaturabhängigkeit der Verdunstung hat zur Folge, daß im Hinblick auf den Eintrag von Kerosin in die bodennahen Schichten auch die Tageszeit des Ablasses eine Rolle spielt.

7.2.4 Hintergrundemissionen

Nachdem der Eintrag der reaktiven Kerosinbestandteile in die Mischungsschicht im vorangehenden Unterkapitel ermittelt wurde, müssen jetzt noch alle anderen Emissionsquellen in Betracht gezogen werden, die zur Gesamtkonzentration an relevanten Spurenstoffen im Luftpaket beitragen.

Hierzu kann das in dieser Arbeit entwickelte und in den vorigen Kapiteln beschriebene europäische Emissionsmodell eingesetzt werden. Ohne diese wichtigen 'Hintergrundemissionen' könnte die Untersuchung der Photooxidantienbildung nicht durchgeführt werden, denn das Zusammenspiel aller Quellen ist entscheidend. Das verdunstete Kerosin allein trägt nicht zur Ozonbildung bei. Die zur Photolyse erforderlichen Stickoxide (Gl. 7.1) stammen aus anderen anthropogenen Quellen - den Hintergrundemissionen. Die Photooxidantienbildung kann durch die vorhandene Konzentration an Stickoxiden begrenzt sein (NO_x -limitiert) oder durch die Menge an freigesetzten reaktiven organischen Substanzen (VOC-limitiert). Jede weitere Quelle kann somit unmittelbar das photochemische Gleichgewicht verändern. Daher wird die Emissionsrate aller anderen maßgeblichen Quellen benötigt, detailliert in Raum, Zeit und Schadstoffspektrum (VOC-split).

Wird das Kerosin-Luftpaket vom Wind über verschiedene Quellen hinwegbewegt, ist die Emissionsrate der Hintergrundquellen als Ort-Zeit-Funktion erforderlich, also

$$E = E(\vec{x}(t), t) \quad \text{mit} \quad \vec{x}(t) = (x(t), y(t))^T \quad (7.13)$$

$x(t)$, $y(t)$ sind die Koordinaten des bewegten Luftpaketes zum Zeitpunkt t .

Nach (CONCAVE, 1995) zeichnet sich bereits im Laufe weniger Stunden eine Beeinträchtigung der Chemie der unteren Atmosphäre ab. Die Halbwertszeiten der Kerosinbestandteile betragen bei Sonneneinstrahlung unter einem Tag. Die kurzzeitigen Prozesse erfordern Zeitschritte Δt des Emissionsprofils $E(\vec{x}(t), t)$ von einer Stunde. Dabei sind die Morgenstunden von größter Bedeutung. Um die Konzentrationen aller weiterer Spurenstoffe zum Zeitpunkt des Kerosineintrages bestimmen zu können, muß die emissionspezifische 'Geschichte' des Luftpaketes bereits berücksichtigt werden. Deshalb wurden stündliche Emissionsraten $E(\vec{x}(t), t)$ nach den bereits vorgestellten Methoden (Kap. 5) nicht nur ab dem Zeitpunkt des Ablasses bestimmt, sondern für jeden untersuchten Kerosinablaß auch schon entsprechend vor dem Ereignis.

Die in Kap. 4 vorgestellten Methoden konnten angewandt werden, um Hintergrundemissionen mit entsprechender räumlicher Auflösung zu ermitteln. Denn ein Kerosinablaß ist häufig

ein lokal begrenztes Ereignis, mit einer Ausdehnung von wenigen Kilometern, nur in manchen Fällen mit mehreren hundert Kilometern. Und anthropogene Emissionsraten können von Ort zu Ort um Größenordnungen variieren (s. Abbildung 6.9).

Ein Vergleich der Menge an Kerosin mit den NMVOCs aus anderen anthropogenen Quellen zeigt das kurzzeitige und lokale Vorherrschen von Kerosin-VOCs in der Atmosphäre: während im Hintergrund durchschnittlich rund 1 kg VOC pro Stunde und Quadratkilometer emittiert wird, entspricht die Freisetzung von 2500 l/min bei 500 km/h rund 240 kg überdurchschnittlich reaktive VOCs pro Flugkilometer.

7.2.5 Chemie-Transport-Modell (CTM)

Aufgrund der hohen Komplexität photochemischer Prozesse in der Atmosphäre haben sich Chemie-Transport-Modelle als äußerst hilfreiches Werkzeug zur deren Erforschung erwiesen. Die große Anzahl an beteiligten Spurengasen, deren breites Spektrum an Quellen, die vielfältigen chemischen Reaktionen und die an sich schon komplexen meteorologischen Rahmenbedingungen, die die Photooxidantienbildung maßgeblich beeinflussen, können umfassend nur mit numerischen Modellen erfaßt werden. Die Modelle berücksichtigen dabei sowohl den physikalischen Transport als auch die während des Transports erfolgende (photo-)chemische Umwandlung der Spurengase.

Entsprechend der Vielschichtigkeit der Fragestellungen gibt es auch eine Vielzahl an verschiedenen Modellen. Bei CT-Modellen wird grundsätzlich unterschieden zwischen dreidimensionalen Euler-Modellen (Gittermodellen) und Boxmodellen. Letztere werden nochmals unterschieden in stationäre Boxmodelle und nicht-stationäre, auch Trajektorienmodelle genannt, da diese entlang dem vom mittleren Wind vorgegebenen Pfad mitbewegt werden, d.h. keine Relativgeschwindigkeit zu den umgebenden Luftmassen besitzen.

Gittermodelle rechnen auf einem vordefinierten Modellgebiet in meist mehreren vertikalen Schichten. Für jedes Gitterelement und jeden Zeitschritt wird der Transport der Spurengase durch die Zellwände und deren chemische Transformation innerhalb der Zelle bestimmt. Sie bilden die Transportprozesse in der Atmosphäre wesentlich besser ab als einfache Boxmodelle, erfordern im Gegenzug jedoch ein Vielfaches an Eingangsdaten und massive Rechenkapazitäten. Um den Aufwand an Rechnerleistung auf ein vertretbares Maß zu reduzieren, werden häufig reduzierte Chemiemechanismen verwendet, die sich auf die wichtigen Reaktionen beschränken. Häufig werden die meteorologischen Eingabedaten mittels entsprechender Modelle

parallel zu den CT-Vorgängen ermittelt, was eine kompaktere Datenhaltung ermöglicht, jedoch die Rechnerleistung stärker beansprucht.

Im Vorfeld der aufwendigen Gittermodellsimulationen finden häufig Boxmodelle ihren Einsatz. Sie dienen einer Voreinschätzung der untersuchten Fragestellung, z.B. möglicher Emissionsreduktionsstrategien, inwieweit eine aufwendigere Berechnung mit Euler'schen Modellen überhaupt erforderlich ist.

Da es sich bei der Untersuchung des Kerosinablasses auf die Photooxidantienbildung um die Beantwortung einer grundsätzlichen Fragestellung handelt, wurde ein Lagrange'sches (nicht-stationäres) Boxmodell der US-amerikanischen Umweltbehörde EPA (Environmental Protection Agency) verwendet (Gery und Tonnesen, 1990). Das Modell - OZIPR (Ozone Isopleth Plotting Program for Research) - ist eine Weiterentwicklung des in Europa bereits häufig verwendeten OZIPM-4 Modells (Hogo und Gery, 1988). Bei dem neueren Modell können verschiedene Mechanismen zur Gasphasenchemie (SAPRC II, CB IV, RADM) eingesetzt werden, was eine objektivere, d.h. vom Chemiemechanismus unabhängige Beurteilung der Ergebnisse ermöglicht.

Auch die Vielzahl der dokumentierten Ablaßereignisse legen die Verwendung eines Boxmodells nahe.

Die Schwäche der Boxmodelle - eine vereinfachte Meteorologie - wird bei der grundsätzlichen Beantwortung der Fragestellung in Kauf genommen, da der Abbau der Kerosinbestandteile bereits innerhalb weniger Stunden erfolgt, und sich dabei schon der Einfluß von Kerosin in der Atmosphäre abzeichnet.

Abbildung 7.4 verdeutlicht das Prinzip des Boxmodells. Das Luftpaket, in dem sich die chemischen Prozesse abspielen, ist eine imaginäre Box von konstanter Grundfläche und einer Höhe, die von der planetaren Grenzschicht festgelegt wird. Durch Änderung der Höhe der Schicht im Laufe eines Tages, ändert sich auch das Volumen der Box. Die Konzentrationen an Spurengasen werden entsprechend dem neuen Volumen berechnet. Da sich das Volumen durch Zumischung von Luft oberhalb der Box vergrößert, werden auch die dort vorhandenen Spurengase zu den Konzentrationen innerhalb der Box hinzuaddiert, so daß es bei Änderung der Boxhöhe zur Ausdünnung mancher Gase kommt, während andere Substanzen (verdunstetes Kerosin) angereichert werden können.

Die Box bewegt sich mit der mittleren Windgeschwindigkeit und -richtung in der Mischungsschicht. Dabei nimmt sie entlang der Trajektorie aus den zusätzlichen Quellen Emissionen auf. Die emittierte Rate $E(\vec{x}(t), t)$ hängt wie bereits erläutert davon ab, zu welchem

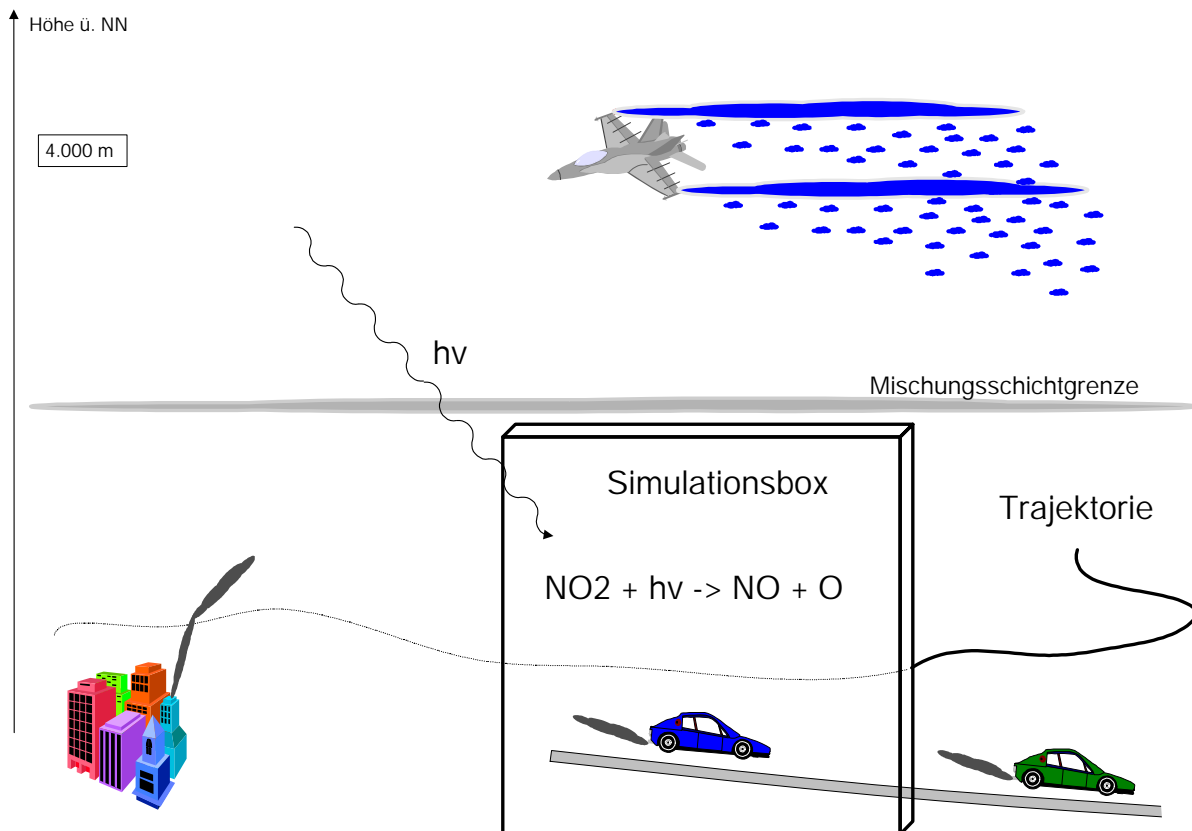


Abbildung 7.4: Kerosinablaß in 4000 Metern Höhe (nicht maßstabsgetreu)

Zeitpunkt die Box welchen Ort überquert. Zeitgleich zur Einmischung von Emissionen werden Spurengase durch Depositionsvorgänge während des Transportes wieder aus der Box gefiltert. Bei niederschlagsfreien meteorologischen Bedingungen am Tage dominiert jedoch meist der Effekt der Konzentrationserhöhung durch Emissionen.

Während des ganzen Transportes des Luftpaketes werden die Spurengase in Abhängigkeit der meteorologischen Bedingungen (Sonneneinstrahlung, Temperatur, Druck, Luftfeuchtigkeit) chemisch umgesetzt. Durch die Auswahl des chemischen Mechanismus werden auch die Photolyseraten in Abhängigkeit vom Sonnenstand festgelegt.

7.3 Ergebnisse

Jährlich werden über Europa rund 5500 t Kerosin von ca. 270 in Notfall befindlichen Langstreckenflugzeugen abgelassen (s. S. 46). Sofern exakte Aufzeichnungen vorhanden sind (Bet-

schka, 1998), werden diese Ablässe nun systematisch untersucht.

60% dieser Ereignisse fanden in den Monaten Oktober bis April statt. Aufgrund der niedrigeren Temperaturen als auch der geringeren Sonneneinstrahlung (niedriger Sonnenstand) lassen diese Ablässe keine gravierende Erhöhung an Photooxidantienbildung erwarten. Von den verbleibenden 40% der Ereignisse finden rund 17% vor 6 Uhr morgens oder nach 14 Uhr statt. Das abgelassene Kerosin ist bis zum nächsten Sonnenhöchststand durch Windbewegungen und Diffusionsprozesse bereits stark ausgedünnt, so daß wohl ein größeres Gebiet betroffen sein kann, dafür der Ozonhöchstwert jedoch gering sein wird. Die Konzentrationserhöhungen sind dann gegenüber den kontinuierlichen 'Hintergrundemissionen' vernachlässigbar. Bei weiteren 3% der Ereignisse werden vergleichsweise nur geringe Mengen an Kerosin freigesetzt. Entweder beträgt die Menge weniger als eine Tonne – die maximale Rate belief sich auf 92,5 t – oder wurde weniger als 5 t Kerosin bei einer Flughöhe von über 6000 m ausgestoßen. Nach Abbildung 7.2 gelangen in den letztgenannten Fällen ebenfalls nur noch geringe Mengen in die Mischungsschicht, so daß noch rund 20% der Ereignisse verbleiben, die die Chemie der Atmosphäre stark beeinträchtigen können. In manchen gemeldeten Kerosinablässen wurde keine Flughöhe berichtet. Möglicherweise sind dies Notfälle gewesen, in denen die Mindestflughöhe von 1500 m aufgrund der Dringlichkeit des Notfalls nicht mehr erreicht werden konnte. (Nachrichtlich sind nur Ablässe bekannt, die die Mindestflughöhe einhalten oder keine Angaben hierzu haben.) Obwohl sich in diesen Fällen der größte Eintrag an Kerosin in die Mischungsschicht und damit eine sehr deutliche Beeinträchtigung der Luftqualität ergeben könnte, werden sie aus den Untersuchungen mit dem Chemie-Transport-Modell ausgeschlossen - die tatsächliche Flughöhe ist nicht berichtet worden.

Die verbleibenden Ablässe werden mit dem Boxmodell untersucht. Dabei werden immer zwei Vergleichsläufe mit exakt denselben Bedingungen (Meteorologie, Hintergrundemissionen, Anfangskonzentrationen) durchgeführt, der erste mit und der zweite ohne Kerosin in der Atmosphäre. Bis zum Moment des Ablasses ergeben sich daher in beiden Rechnungen die gleichen Konzentrationsverläufe der Spurenstoffe.

Ohne das zusätzliche Kerosin ergibt sich in allen untersuchten Fällen ein Maximum der Ozonkonzentration um die Mittagszeit, also in der Zeit zwischen 11 Uhr und 14 Uhr. Der Maximalwert liegt je nach Bedingungen zwischen 50 und 110 ppb. (Die maximale Ozonkonzentration beschreibt die höchste über eine Stunde gemittelte Konzentration des Sekundärschadstoffes.) Als gesundheitsbeeinträchtigende Schwelle werden 120 ppb Ozon angesehen (Fabian,

1992, S.79). Durch Kerosin aus Flugzeugen kann sich das Maximum bei Ablassen am frühen Morgen um mehrere Stunden (!) nach vorne verschieben. Bei Ablassen nach der Mittagszeit wurde keine oder nur eine unwesentliche Verschiebung des Maximums in den Nachmittag hinein beobachtet. Die Erhöhung des Spitzenkonzentrationen betrug in den untersuchten Fällen bis zu 30 ppb.

Die Menge abgelassenen Kerosins spielt für den Maximalwert der Ozonkonzentration eine sekundäre Rolle. Auch bei 5 t Kerosin und einer Flughöhe von 2300 m wurde eine Erhöhung des Ozonmaximums um 15 ppb festgestellt, während sich in einem anderen Fall mit 75 t Kerosin nur geringfügige Änderungen ergaben.

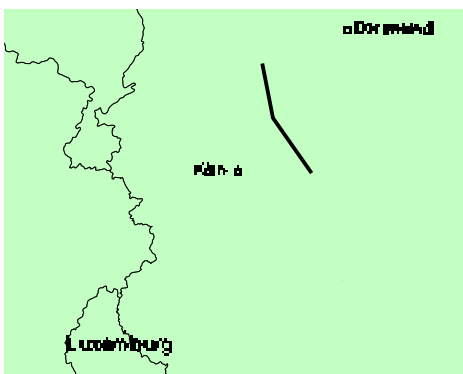


Abbildung 7.5: Kerosinablaß am 09.07.1995 um 12 Uhr: 28,5 t in 3000 m Flughöhe (Betschka, 1998)

Wie zu erwarten hat die Flughöhe einen starken Einfluß auf die Ozonbildung in der Grenzschicht: Bei Ablassen in der gesetzlich vorgeschriebenen Mindestflughöhe von 1500 m werden die stärksten Maximalwerterhöhungen beobachtet, da vergleichsweise viel Kerosin in der Mischungsschicht verdampft und zur Reaktion zur Verfügung steht. Auf der andere Seite wurden trotz begünstigender Rahmenbedingungen (Ablaß in den Morgenstunden, warmer Julitag, 10 t Kerosin) kaum Änderung der O_3 -Konzentration festgestellt, da die Flughöhe 4300 m betrug.

Ebenfalls ist die Größe des Abfallgebietes von Bedeutung. Wie in den folgenden Beispielen gezeigt, werden nach (Betschka, 1998) vergleichbare Mengen an Kerosin über sehr unterschiedlich großen Gebieten freigesetzt. Über großen Gebieten fällt die durchschnittliche Maximalwertsteigerung erwartungsgemäß deutlich geringer aus als bei einem Abfall auf kleinem Gebiet.

Im folgenden werden zwei ausgewählte Fälle genauer beschrieben, die trotz vergleichbarer Kerosinmengen und Flughöhen sehr unterschiedliche Auswirkungen auf die Photooxidantienbildung haben.

7.3.1 Ereignis 1 – Abfall zur Mittagszeit

Am Sonntag, den 09. Juli 1995, mußten gegen 12 Uhr nordöstlich von Köln aufgrund eines Notfalls Kerosin aus einer Flughöhe von ca. 3000 m abgelassen werden. Dabei wurden 28,5 t

des Treibstoffs über einem ausgedehnten, dünn besiedelten Gebiet freigesetzt. Der Verlauf der Flugroute (Betschka, 1998) während des wenige Minuten dauernden Vorgangs ist in Abbildung 7.5 dargestellt.

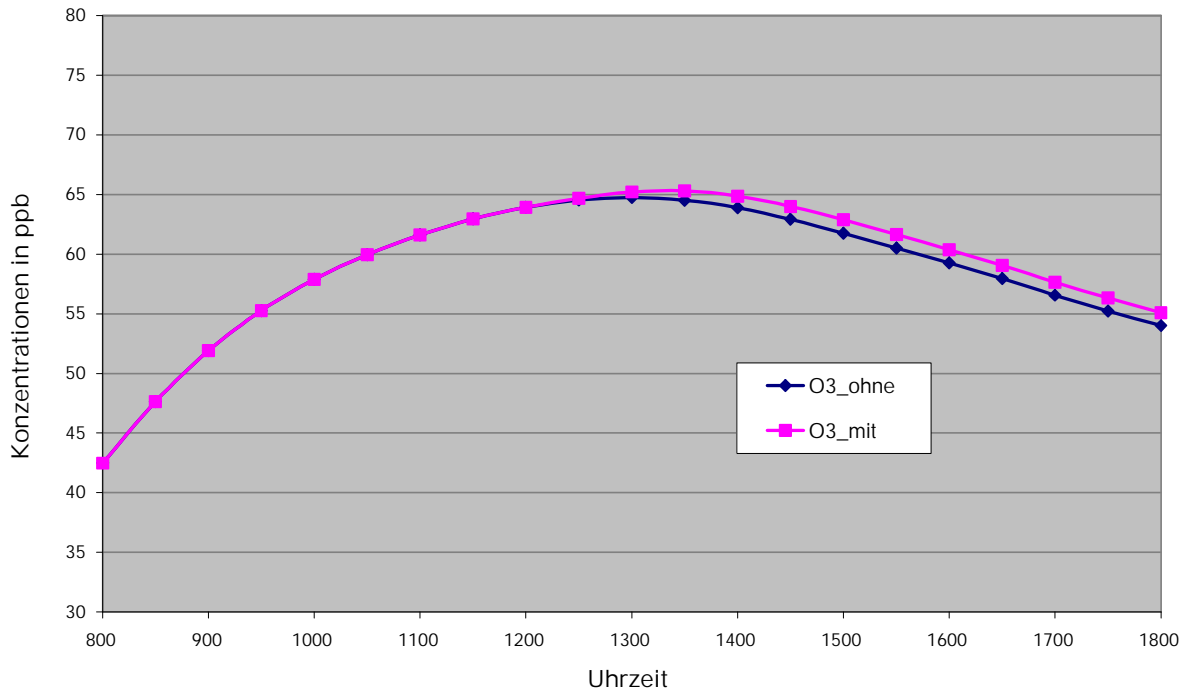


Abbildung 7.6: Ozon-Bildung am 09.07.1995 mit und ohne Einwirkung des abgelassenen Kerosins, berechnet mit einem nicht-stationären Zwei-Schichten-Boxmodell, bodennahe Schicht

Die Bodentemperatur erreichte an diesem Tag erst am späten Nachmittag den Maximalwert von rund 302 K (29° C), und es herrschte mit 0,4 m/s ein nur schwacher Wind aus südwestlicher Richtung (DWD, 1999). Durch die gegebene Flughöhe und die Bodentemperatur ergibt sich der Anteil des Kerosins, das in die unterste Schicht der Atmosphäre gelangte, d.h. weder vorher verdunstete, noch den Boden erreichte. Er betrug 2,5 Prozent der abgelassenen 28,5 t, also 712,5 kg. Die größeren Kerosintröpfchen erreichten mit wenigen Minuten Verzögerung (Fallzeit: ca. 15 Minuten) die atmosphärische Grenzschicht, so daß bereits kurz nach 12 Uhr eine Beeinträchtigung der Luftqualität möglich war. Die Änderung der Mischungsschichthöhe im Tagesverlauf wurde berücksichtigt.

Die zusätzlich in der Luft vorhandenen reaktiven VOCs ließen eine leichte Erhöhung der Ozonkonzentration in dieser Region um ca. 1 ppb erkennen. Der Maximalwert verschob sich damit auch um wenige Minuten nach hinten, von 12.59 Uhr auf 13.19 Uhr. Insgesamt waren

jedoch durch die Temperaturen die Ozonwerte nicht extrem, so daß auch mit Kerosin keine wesentliche Veränderung der Luftqualität stattfand. Die nur geringen Auswirkungen wurden durch die großräumige Verteilung des Kerosins begünstigt.

Der Verlauf der Ozonkonzentrationen mit und ohne verdunstetes Kerosin, berechnet mit dem nicht-stationären Zwei-Schichten-Boxmodell, ist in Abbildung 7.6 für die bodennahe Schicht dargestellt.

7.3.2 Ereignis 2 – Ablaß in den Morgenstunden

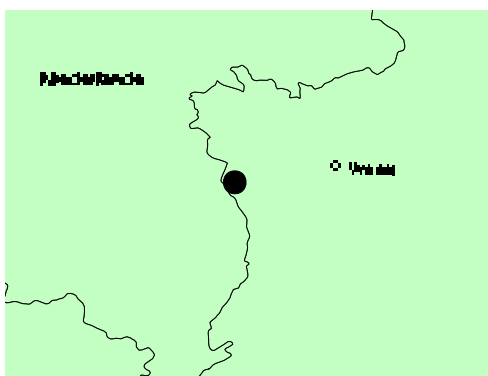


Abbildung 7.7: Kerosinablaß am 01.07.1994 um 9 Uhr: 29 t Kerosin in 3300 m Flughöhe (Betschka, 1998)

Ziemlich genau ein Jahr zuvor, am 01. Juli 1994 (Freitag), wurde um 9 Uhr dieselbe Menge an Kerosin (29 t) in einer vergleichbaren Flughöhe von 3300 m abgelassen. Nach (Betschka, 1998) fand die Freisetzung jedoch auf einem relativ konzentriertem Gebiet in unmittelbarer Nähe zur niederländischen Grenze, westlich von Wesel, statt (s. Abbildung 7.7).

Die Bodentemperatur betrug um 12 Uhr 302.0 K (29° C), war also damit deutlich höher als bei Ereignis 1. Durch die höhere Temperatur – bei gleicher Flughöhe – verdunstete mehr Kerosin während des Fallens und nur noch 0,5 Prozent der 29 t verdunsteten in der Mischungsschicht (bis ca. 400 m zu diesem Zeitpunkt), jedoch auf einem konzentrierteren Gebiet. Der Gesamtbedeckungsgrad – ein Maß für die Bewölkung – war gleich null, die Sonneneinstrahlung also hoch. Die Windgeschwindigkeit wurde für den Zeitpunkt des Ablasses nicht berichtet (DWD, 1999).

Durch die kurze Fallzeit und die ozonbegünstigenden Temperaturen ist eine verstärkte Ozonbildung bereits ab 9 Uhr zu erwarten, also noch deutlich vor dem Sonnenhöchststand des Tages.

Die meteorologischen Bedingungen (Temperatur, Gesamtbedeckungsgrad) begünstigen bereits ohne zusätzliches Kerosin die Photooxidantienbildung, so daß regulär eine maximale Ozonkonzentration von 111 ppb um ca. 14 Uhr erreicht worden wäre. Durch zusätzliches Kerosin steigt die Konzentration bereits ab 9.30 Uhr deutlich stärker an, überschreitet nach 11

Uhr den Wert von 120 ppb, bis sie kurz vor 14 Uhr den Maximalwert von 138 ppb erreicht – s. Abbildung 7.8. Die maximale Eine-Stunde-Durchschnittskonzentration erreicht damit einen

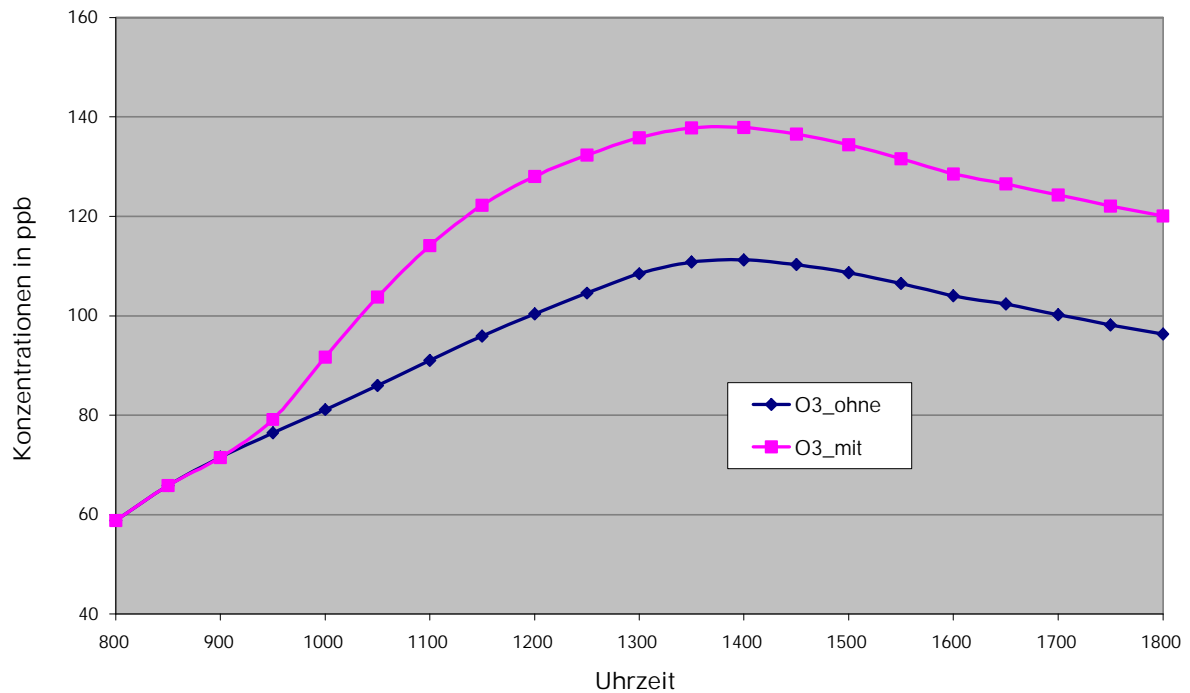


Abbildung 7.8: Ozon-Bildung am 01.07.1994 mit und ohne Einwirkung des abgelassenen Kerosins, berechnet mit einem nicht-stationären Zwei-Schichten-Boxmodell, bodennahe Schicht

um 26,8 ppb höheren Wert als im regulären Fall ohne Kerosin in der Mischungsschicht. Das abgelassene Kerosin hat hier eine deutlichere Beeinträchtigung der Luftqualität zur Folge.

7.3.3 Schlußfolgerungen

Obwohl in beiden Ereignissen dieselbe Menge Kerosin in vergleichbarer Höhe und an fast demselben Jahrestag freigesetzt wurde, ergibt sich doch ein sehr deutlicher Unterschied in der Bildung von Photooxidantien. Dieser ist auf die höherer Temperatur und den früherzeitigen Ablauf im zweiten Ereignis sowie auf die unterschiedliche Ausdehnung der Ablaufgebiete zurückzuführen.

Zusammenfassen läßt sich aus der Untersuchung der Photooxidantienbildung durch Kerosinablaß von Flugzeugen sagen, daß in den meisten Fällen eines Ablaufereignisses die Konzen-

tration an Photooxidantien sich nicht wesentlich erhöht, da

- die meteorologischen Rahmenbedingungen keine Photooxidantienbildung begünstigten,
- die Menge an abgelassenem Kerosin gering war,
- eine große Flughöhe den Eintrag des Kerosins in die Mischungsschicht wesentlich reduzierte oder
- das Ereignisses deutlich nach der Mittagszeit stattfand, und somit die Sonneneinstrahlung geringer war.

In manchen wenigen Fällen konnte jedoch ein teils drastischer Anstieg der Sekundärschadstoffkonzentrationen festgestellt werden. Dann wurde auch der Wert von 120 ppb für Ozon lokal und für einige Stunden überschritten.

8 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurden Methoden und Modelle zur Erstellung einer räumlich, zeitlich und stofflich hoch aufgelösten Datenbasis über die anthropogen verursachte Freisetzung von Spurengasen in Europa entwickelt.

Die Datenbasis dient als wichtige Grundlage für Chemie-Transport-Modelle (CTM) zur Untersuchung von Photooxidantienbildung in der unteren Atmosphäre ('Sommersmog') und von Depositionsprozessen (z.B. Eutrophierung). Die in ihr enthaltenen Spurengase sind deshalb Stickoxide (NO_x), Kohlenmonoxid (CO), Schwefeldioxid (SO_2), flüchtige organische Komponenten (NMVOC) und Ammoniak (NH_3). Da die Datenbasis für unterschiedlichste CTMs auf internationaler Ebene (EUROTRAC) zur Verfügung stehen soll, wurde auf hohe Flexibilität bei der Erstellung der Emissionsdatenbasis geachtet. Aufbauend auf der detaillierten CORINAIR-Datenbasis waren zu deren Erstellung folgende Schritte erforderlich:

Ergänzung fehlender Länder

Da es bislang keine vollständige Emissionsdatenbasis für alle Länder Europas gab, wurde mittels Regressionsanalyse und geeigneter emissionsrelevanter Einflußgrößen (Energieverbräuche, wirtschaftliche Kenngrößen - BIP, Straßenverkehrsdaten, etc.) die detaillierte CORINAIR-Emissionsdatenbasis untersucht und um die Emissionswerte fehlender Länder ergänzt. Damit wurde erstmals eine gesamteuropäische Emissionsdatenbank geschaffen, in der alle europäischen Länder enthalten sind.

Ergänzung fehlender Quellen

Da CORINAIR dezentral von Länderbeauftragten erstellt wird, fehlen darin wichtige Emittenten, die auf internationalem Territorium liegen. Die Ergänzung der Datenbasis um Schiffsemissionen in Nord- und Ostsee zeigte, daß deren Anteil an den Stickoxiden mit rund 3,5% beachtlich ist und bei Schwefeldioxid immerhin noch einen Anteil von 1,5% hat. Die Ergänzung der flüchtigen organischen Substanzen um Kerosin von Flugzeugen, das in Notfällen abgelassen wird, spielt punktuell eine Rolle, nicht jedoch in der Gesamtsumme.

Mit der Implementierung wichtiger Emissionsquellen in das europäische Model konnte die Vollständigkeit von Quellen signifikant verbessert werden.

Aktualisierung der Emissionsdatenbank

Durch die aufwendige Berechnung von Emissionsdaten liegen zwischen dem Bezugsjahr der Datenbasis und deren Verfügbarkeit mehrere Jahre. Benötigt wird jedoch eine aktuelle Emissionsdatenbasis. Um diese zu erhalten, wurde wieder mittels Regressionsanalyse die Entwicklung der Emissionssituation für jedes Land untersucht und anhand von geeigneten Kenngrößen (BIP, Zusammensetzung von Fahrzeugflotten, etc.) fortgeschrieben. Die Kenngrößen berücksichtigen auch den Einsatz von Maßnahmen zur Emissionsminderung.

Erhebliche Unterschiede wurden beim Vergleich von osteuropäischen Ländern mit westeuropäischen gefunden. In Westeuropa trugen in den neunziger Jahren Emissionsminderungsmaßnahmen am stärksten zu den jährlichen Veränderungen bei, während in Osteuropa die wirtschaftliche Entwicklung alle anderen Einflüsse dominierte.

Erarbeitung eines Qualitätskonzeptes

Als Entscheidungsgrundlage für effiziente Luftreinhaltepolitik bedarf es der Qualitätssicherung der Emissionsdatenbasis. Dazu wurde ein Konzept, das sich mit den wesentlichen Kriterien *Genauigkeit, Präzision, Vollständigkeit, Repräsentativität* und *Vergleichbarkeit* an der QA/QC-Struktur des europäischen Atmosphärenforschungsprojektes EUROTRAC orientiert (Mohnen, 1996), erarbeitet und auf eine Emissionsdatenbasis auf europäischer Ebene angewandt. Die Verlässlichkeit von Emissionsdaten für CTMs wird damit wesentlich erhöht.

Verfeinerte räumliche Auflösung

Die Konzentrationen schädigender Photooxidantien (Ozon) können innerhalb von wenigen Kilometern stark variieren. Diese lokalen Unterschiede erfordern auch eine detaillierte räumliche Struktur der Emissionsdatenbasis. Hierzu wurden Quellen nach ihrer geographischen Struktur in Punkt-, Linien und Flächenquellen unterschieden. Die Emissionen von Punktquellen (z.B. Kraftwerke) konnten mit der Integration der geographischen Standortkoordinaten in das europäische Emissionsmodell genau lokalisiert werden. Emissionen aus Linienquellen (z.B. Verkehrsstraße) wurden mit Hilfe von digitalisierten Transportwegenetzen ihrem Entstehungsort

zugewiesen. Und Flächenquellen schließlich konnten durch georeferenzierte digitale Informationen wie satellitenunterstützten Landbedeckungs- und Landnutzungsdaten räumlich genauer zugeordnet werden.

Mit diesem Modul des europäischen Emissionsmodells wurde ein Werkzeug geschaffen, das sowohl für ganz Europa als auch für beliebige Regionen und Städte in Europa anthropogene Emissionen in hoher räumlicher Auflösung berechnen kann. Damit sind auch Grundlagendaten für CTMs auf ineinander verschachtelten Modellgebieten unterschiedlicher Auflösung verfügbar.

Verbesserung eines Modells zur zeitlichen Verteilung

Auf Grundlage der Methoden des EUROTRAC-Projektes GENEMIS wurde der zeitliche Verlauf von Emissionen auf die Jahre nach 1990 ausgedehnt. Dazu wurden meteorologische Daten und weitere verfügbare emissionsrelevante Statistiken verwendet. Das Modell mußte für die folgenden Bezugsjahre entsprechend verallgemeinert werden.

Zusätzlich wurden länderübergreifende (z.B. Ostern) und länderspezifische Feiertage (Nationalfeiertage) mit Rücksicht auf die Jahresabhängigkeit in das Modell integriert, da Feiertage das (emissionsrelevante) Verhalten von Menschen beeinflussen. Die unterschiedlichen Zeitzonen in Europa und insbesondere die jahresabhängige Zeitzonenzugehörigkeit mancher Länder (z.B. baltischer Staaten) sowie der Einfluß der Sommerzeit gegenüber der Winterzeit wurden bei der Bestimmung des stündlichen Verlaufs anthropogener Emissionen erstmals berücksichtigt.

Damit können Emissionsdaten für CTMs in täglicher und stündlicher Auflösung für beliebige Episoden eines Jahres und beliebige Jahre in den Neunzigern erzeugt werden, die zudem länderspezifische Besonderheiten in Europa (Feiertage, Zeitzonen, etc.) beinhalten.

Länderspezifische Untergliederung der NMVOC-Emissionen

Aufgrund der sehr unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der NMVOC-Bestandteile müssen diese genauer ausgewiesen werden. Hierzu wurden neueste Ergebnisse vor allem aus Messungen an Kraftfahrzeugen und Verbrennungsanlagen verwendet, in denen der Anteil einzelner Stoffgruppen an den NMVOC bestimmt wurde. Die nationalen Unterschiede in der für NMVOCs wichtigsten Quellgruppe *Straßenverkehr* wurden durch Berücksichtigung der sehr unterschiedlichen Zusammensetzung der Fahrzeugflotten in Europa beachtet. Die Untergliederung

erfolgte nach (Middleton et al., 1990), was eine flexible Anpassung an CTMs gewährleistet.

Die Implementierung der neuen, auf aktuellsten Meßergebnissen beruhenden NMVOC-Untergliederungen stellt wegen der chemisch sehr unterschiedlichen Eigenschaften der flüchtigen organischen Verbindungen einen wesentlichen Fortschritt für das europäische Emissionsmodell und die Troposphärenforschung dar.

Es wurde mit diesen Methoden somit erstmals eine aktuelle Emissionsdatenbasis entwickelt, die alle Länder Europas und internationale Territorien beinhaltet, eine hohe zeitliche (stündlich) und räumliche (1km·1km) Auflösung sowie eine detaillierte stoffliche Untergliederung besitzt und für Gesamteuropa oder einzelne Regionen/Städte in Europa, für beliebige Untersuchungs-episoden und in nahezu beliebiger geographischer Projektion anwendbar ist.

Photooxidantienbildung durch Kerosinablaß von Flugzeugen

Die weitreichende Bedeutung und Anwendbarkeit der verschiedenen Aspekte der Emissionsdatenbasis wurde durch die exemplarische Untersuchung der Photooxidantienbildung durch Flugzeugkerosin unter Beweis gestellt. Die Vielzahl an tatsächlich stattgefundenen, bezüglich Raum und Zeit nur sehr punktuell auftretenden Kerosinablässen, erforderte von der Emissionsdatenbasis

- einen lückenlosen Umfang der Bezugsjahre
- eine flexible Wahlmöglichkeit der Episoden während eines Jahres
- stündliche Emissionswerte
- für beliebige Regionen in Europa
- mit kleinskaliger räumlicher Auflösung
- und einer flexiblen Datenstruktur (insbesondere zur Anpassung der NMVOC-Substanzen an verfügbare Chemiemechanismen).

Hierin hat sich die erarbeitete europäische Emissionsdatenbasis durchweg bewährt.

Die Untersuchung der Photooxidantienbildung ergab, daß in den meisten Fällen eines Ab-laßereignisses die Konzentration an Photooxidantien sich nicht wesentlich erhöht, da

- die meteorologischen Rahmenbedingungen keine Photooxidantienbildung begünstigten,
- die Menge an abgelassenem Kerosin gering war,

- eine große Flughöhe den Eintrag des Kerosins in die Mischungsschicht wesentlich reduzierte oder
- das Ereignisses deutlich nach der Mittagszeit stattfand, und somit die Sonneneinstrahlung geringer war.

In wenigen Fällen konnte jedoch ein teils drastischer Anstieg der Sekundärschadstoffkonzentrationen festgestellt werden. Dann wurde auch der Wert von 120 ppb für Ozon lokal und für einige Stunden überschritten.

Ausblick

Das europäische Emissionsmodell hängt von vielen sehr unterschiedlichen Eingangsdaten ab. Für manche dieser Bereiche sind in Zukunft umfangreichere Datensätze zu erwarten:

- Neben den Schiffsemissionen in Nord- und Ostsee werden in absehbarer Zeit auch für andere internationale Gewässer (z.B. Mittelmeer) Informationen von Lloyd's zur Verfügung stehen.

- Durch verbesserte Satellitentechnik ist in den nächsten Jahren auch eine detailliertere und umfassendere Datenbasis für digitale Landnutzungskarten zu erwarten. Ebenfalls wird es in zunehmendem Maße weitere georeferenzierte digitale Daten geben (z.B. Seewegkarten, detailliertere Straßenkarten), die für eine weitere Verbesserung der räumlichen Auflösung verwendet werden können.

- Für den dominierende Quellsektor *Straßenverkehr* gibt es auf deutscher Ebene bereits ausführliche Straßendatenbanken mit Verkehrszählungen. Würde eine entsprechende Datenbasis für Europa zur Verfügung stehen, könnte damit die zeitliche Variation und räumliche Zuordnung der Verkehrsemissionen wesentlich verbessert werden.

- Weitere Ergebnisse von NMVOC-Messungen, die in laufenden Forschungsprojekten (z.B. von GENEMIS) erzielt werden, können in das Emissionsmodell integriert werden.

- Der zukünftige Einsatz von Minderungstechniken (z.B. EURO III und IV) muß auch bei einer zukünftiger Aktualisierung von europäischen Emissionen berücksichtigt werden.

Die Methoden des europäischen Emissionsmodells lassen sich grundsätzlich auch auf andere emittierte Substanzen anwenden, z.B. **Feinstäube und Aerosole**, die aufgrund ihrer Lun-

gängigkeit zu Atemwegserkrankungen führen können, oder **Schwermetalle** wie Blei. Das Problem lag bisher jedoch daran, daß noch keine detaillierte Ausgangsbasis, vergleichbar der von CORINAIR, für diese Substanzen vorlag.

Durch die Verfügbarkeit von aktuellen Emissionsdaten für CTMs ist nun auch eine **Ozonprognose** denkbar, d.h. mit Hilfe der Prognose von meteorologischen Größen eine Aussage über die Ozonkonzentrationen der nächsten Tage zu treffen. Dies könnte analog den Pollenflugvorhersagen für Allergiker z.B. für Asthmatiker hilfreich sein.

Langfristig muß das Ziel einer Luftreinhaltepolitik jedoch die dauerhafte Einhaltung der Grenzwerte für Luftschadstoffe sein. Das in dieser Arbeit vorgestellte europäische Emissionsmodell liefert zur Erarbeitung effizienter Strategien wichtige Grundlagendaten.

9 Abstract

This work describes methods and models to generate a European database of anthropogenically emitted trace substances in high spatial, temporal and substance resolution.

Such a database is an important basis for chemistry transport models (CTM) to investigate the generation of photooxidants in the lower atmosphere ('summersmog') and the deposition of substances leading e.g. to eutrophication. The substances included in the database are therefore nitrogen oxides (NO_x), carbon monoxide (CO), sulfur dioxide (SO_2), non-methane volatile organic compounds (NMVOC) and ammonia (NH_3). As the database needs to be compatible to a variety of different CTMs on an international level (EUROTRAC), special emphasis was laid on high flexibility when developing the European emission model. Based on the detailed CORINAIR emission database, the following steps were necessary to establish it:

Completion of missing countries

As so far there was no complete emission database for all European countries, the detailed CORINAIR database was analyzed and completed with emission data of missing countries by means of regression analysis and appropriate emission relevant input variables (energy consumption, gross domestic production, road traffic data, etc.). Therewith, for the first time a pan-european emission database could be established, that includes all European countries.

Completion of missing sources

CORINAIR is set up for each country individually by national experts. Therefore, important sources on *international* territory that were lacking have been added to the emission database. Ship emissions from the North Sea and the Baltic Sea showed, that they contribute significantly with 3,5% to the European nitrogen oxides emissions and with 1,5% to the sulfur dioxide emissions. The adding of aircraft kerosene to the volatile organic compounds being released in cases of emergency dominates only short time after the dump and on limited space, but not in the total sum.

Hence, by implementing important sources to the model, completeness of emissions sources could be improved significantly.

Updating of the emission database

As the calculation of emission data is very extensive, the dataset is only available with several years of delay. But the emission database needs to be up-to-date. In order to achieve this, the annual development of the emissions of each country were investigated by regression analysis and updated with appropriate variables (GDP, vehicle fleet composition, etc.). The variables consider also the implementation of measures to reduce emissions in recent years.

Major differences were found comparing the anthropogenic emissions of Eastern and Western European countries in the 90ies. In Western Europe, emission reduction techniques contributed most to annual changes whereas in Eastern Europe the economic development was dominating all other influences.

Development of a quality concept

Being a basis for decisions in air pollution control, the emission database has to be quality assured. Thus, a quality concept was developed based on the QA/QC structure of the European atmosphere research program EUROTRAC (Mohnen, 1996) including the essential criterions *accuracy, precision, completeness, representativity* and *comparability*. This quality concept was applied for the first time to an emission database on the European level, therewith increasing substantially the reliability of the generated emission data.

Improvement of the spatial resolution

The concentration of harming photooxidants (ozone) can vary essentially within a few kilometers. Thus, the same spatially detailed structure is required for the emission database to simulate photooxidant generation. To achieve the high spatial resolution, the emission sources were categorized according to their geographic structure in point, line and area sources. The emissions of point sources (e.g. power stations) could be localized exactly by implementing their geographic coordinates into the European emission model. Emissions from line sources (e.g. traffic roads) were assigned to their origin with the help of digital maps of transportation nets. And finally area sources could be disaggregated spatially by georeferenced digital information as satellite based landcover and landuse data.

With this European emission model a tool was developed that can determine anthropogenic emissions in high spatial resolution for the whole of Europe as well as for any region or city in

Europe. Therewith, emission input data for CTMs are also available for so called nested model grids of different resolution.

Improvement of a model for the time disaggregation

Starting with the methods of the EUROTRAC project GENEMIS, the temporal variation of emissions was expanded to the years after 1990. Meteorological data and other available emission relevant statistics were used for this. The model had to be generalized to be applicable for other years than 1990.

In addition, international (e.g. Eastern) and country specific i.e. national holidays were implemented into the model because holidays influence the (emission relevant) behaviour of people. The variation of some holiday dates from year to year was taken into account. The different timezones in Europe and especially some countries changing timezones (e.g. baltic countries) as well as the influence of the daylight saving time in the summer months compared to the winter months were also taken into account for the first time when determining the hourly variation of anthropogenic emissions.

Thus, emission data of daily or hourly resolution can now be generated for any episode of the year and for any year in the 90ies, taking into account country specific particularities in Europe (holidays, timezones, etc.).

Country specific splits of NMVOC emissions

As NMVOC components differ essentially in their chemical properties, they need to be split into chemically comparable subgroups. Therefore, newest results mainly from measurements on road vehicles and combustions stations were used that show the share of single substance groups within the NMVOCs. The source group *road traffic* is dominating the NMVOC emissions in Europe. Due to the very different national vehicle fleets, the NMVOC split for road traffic had to be determined separately for each country taking into account the detailed composition of the national vehicle fleets. The NMVOC split structure of (Middleton et al., 1990) was used for the Europe model in order to ensure highest compatibility to different CTMs.

Due to the essential chemical differences among NMVOC compounds, the new splits represent a significant improvement in the European emission model and in tropospheric research.

So, with these methods for the first time an up-to-date emission database can be generated,

that includes anthropogenic emissions of every country in Europe and of international territories, that has a high spatial (1km·1km) and temporal (hourly) resolution as well as a detailed component split, that is applicable to the whole of Europe as well as to single regions/cities anywhere in Europe, for any period of investigation and in almost any geographic projection of the model grid. With the special emphasis on high flexibility, the emission model is compatible to different CTMs.

Generation of photooxidants from kerosene dumps of aircrafts

The importance and applicability of the different aspects of the emission database could be proved by the exemplary investigation of photooxidant generation from aircraft kerosene being released in cases of emergency. The large number of kerosene dumps that really took place, limited in time and space, required from the emission database

- a complete series of available years
- an unrestricted flexibility when determining the investigation episode during the year
- hourly emission values
- the concentration on any region in Europe
- a high spatial resolution
- a flexible data structure (especially concerning the adaption of the NMVOC-split to available chemistry models).

The European emission database generated with the described emission model has proven a success in any of the named aspects.

The investigation of photooxidant generation showed, that in most cases of dump events the concentration of photooxidants does not raise significantly, as - the meteorological conditions do not favor photooxidant generation,

- the amount of kerosene is small,
- a high flight altitude reduces the share of kerosene evaporating in the lowest atmospheric layer (boundary layer) or
- the event takes place clearly after noon, so that the sun intensity was low.

In some few cases though, a drastic raise of the concentrations of secondary pollutants could be noticed. Then, also the threshold values for ozone were exceeded locally and for several hours.

Literaturverzeichnis

- Atkinson, R. (1990). Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds: A review. *Atmospheric Environment*, 24A:1–41.
- Axenfeld, F., Münch, J., Effinger, H. und Janicke, L. (1987). Phoxa emission data base - Federal Republic of Germany 1980/1982. *Dornier System, Friedrichshafen, im Auftrag des Umweltbundesamtes*.
- Backa (1997). *Luftfahrt und Umwelt*. ADV –Arbeitsgemeinschaft Deutscher Verkehrsflughäfen, Mathias Brendle, 70629 Stuttgart.
- Bamberg/Baur (1985). *Statistik*. Oldenburg Verlag, München.
- Bank, M. (1994). *Basiswissen Umwelttechnik*. Vogel Buchverlag, Würzburg.
- Baumbach, G. (1994). *Luftreinhaltung, 3.Aufl.* Springer-Verlag, Berlin Heidelberg.
- Baumbach, G., Glaser, K., Vogt, U. und Grauer, A. (1999). Evaluation of calculated emission data by air pollutant flow measurements around agglomerations of emission sources. In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*, International Scientific Secretariat, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, München. GENEMIS – EUROTRAC2.
- BAZL (1998). *Treibstoff-Schnellablaß (Fuel Dumping) - Aus Sicherheitsgründen manchmal nötig. Faktenblatt 6.4*. Bundesamt für Zivilluftfahrt (BAZL), Maulbeerstrasse 9, CH-3003 Bern.
- Beck, J., de Leeuw, F. und Tarrason, L. (1999). Photochemical smog. In Kielland, G., editor, *Environment in the European Union at the turn of the century – Transboundary Air Pollution*, Kopenhagen Dänemark. European Environment Agency (EEA).

- Berge, E., Beck, J., Larssen, S., Moussiopoulos, N. und Pulles, T. (1997). Air quality. In Jol, A. und Kielland, G., editors, *Air Pollution in Europe 1997*, S. 56 ff, Kopenhagen Dänemark. European Environment Agency (EEA).
- Betschka, H.-P. (1998). *Schriftliche Mitteilung vom 25.05.1998*. DFS – Deutschen Flugsicherung GmbH, Postfach 10 05 51, 63005 Offenbach a.M.
- Bloemen, H. J. T. und Burn, J. (1993). *Chemistry and Analysis of Volatile Organic Compounds in the Environment*. Black Academic & Professional, Glasgow.
- BMBF (1996). *Berlioz - Berlin Ozonexperiment*. BMBF Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit.
- Brocheton, F., Aumont, B., Toupance, G. und Granier, C. (1999). Sensitivity of global ctm models to the spatial representation of the emissions. In Borrell, P. und Borrell, P., editors, *Transport and Chemical Transformation in the Troposphere, Symposium 1998, Proceedings*, S. 560–564, WITPress, Southampton. EUROTRAC2.
- Builtjes, P. (1992). *The LOTOS-Long Term Ozone Simulation-project, Summary Report*. TNO-report, IMW-R 92/240, Order no. 51555.
- Bundesregierung (1991). *Der Bundesminister für Verkehr: Antwort auf die Kleine Anfrage (Drucksache 12/442) betreffend Kerosinbelastungen im Umfeld von zivilen und militärischen Flughäfen Drucksache 12/993*. Verlag Dr. Hans Heger, Postfach 20 13 63, Bonn, ISSN 0722-8333.
- Clewell, H. J. (1983). Ground contamination by fuel jettisoned from aircraft in flight. *J. Aircraft*, Vol. 20:382–384.
- CONCAVE (1995). *kerosines/jet fuels*, volume Reports, product dossier no 94/106. Verlag von Dietrich Reimer, Berlin, Brussels.
- CORINAIR (1996). *Atmospheric Emission Inventory 1990*. European Environment Agency, DK 1050 Copenhagen, Denmark.
- Corsmeier, U. und Vogel, H. (1998). *Konzentrationen von Kraftfahrzeugemissionen und Ozon im Nahbereich einer Autobahn, Wissenschaftliche Berichte Nr. 21*. Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Forschungszentrum Karlsruhe/Universität Karlsruhe.

- Cross, N. und Picknett, R. (1973). Ground contamination by fuel jettisoned from aircraft. In AGARD, editor, *Atmospheric Pollution by Aircraft Engines, Advisory Group for Aerospace Research and Development, Conference Proceedings No. 125*, S. 12.1–12.9. NATO - North Atlantic Treaty Organization.
- Derwent, R. G., Jenkin, M. E. und Saunders, S. M. (1996). Photochemical ozone creation potentials for a large number of reactive hydrocarbons under european conditions. *Atmospheric Environment* 30, S. 189.
- dv (1997). *Wie? - Technik und Motor, April*. Frankfurter Allgemeine Zeitung.
- DWD (1999). *Meteorologische Daten des Deutschland Modells (DM)*. Deutscher Wetterdienst, Abteilung Klima und Umwelt, Postfach 10 04 65, 63004 Offenbach.
- EEA (1996). *CORINAIR 1990 Summary Report 2, Topic Report No. 8/1996 (AE)*. European Environment Agency, ISBN: 92-9167-036-7, EEA, Information Centre, Kongens Nytorv 6, DK-1050 Copenhagen K.
- EEA (1997). *ETC Landcover Data*. European Environment Agency, European Topic Centre on Land Cover, ETC/LC, Kiruna, Sweden.
- EMEP/CORINAIR (1996a). *Atmospheric Emission Inventory Guidebook*. European Environment Agency, DK 1050 Copenhagen, Denmark.
- EMEP/CORINAIR (1996b). Selected nomenclature for air pollution for corinair inventory (snap94). In McInnes, G., editor, *Atmospheric Emission Inventory Guidebook, first edition*, S. 2–14, DK 1050 Copenhagen, Denmark. European Environment Agency.
- EMEP/CORINAIR (1998). Selected nomenclature for air pollution for corinair inventory (snap97). In *Atmospheric Emission Inventory Guidebook, second edition*, DK 1050 Copenhagen, Denmark. European Environment Agency.
- EMEP/CORINAIR'98 (1998). *Atmospheric Emission Inventory Guidebook, second edition*. European Environment Agency, DK 1050 Copenhagen, Denmark.
- Engewald, W., Michael, H., Felix, U. und Knobloch, T. (1998). Determination of emission factors of volatile organic compounds from the residential burning of brown-coal briquettes

- (lignite). In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*. GENEMIS – EUROTRAC.
- ESAP (1999). *Energy in Europe 1998 - Annual Energy Review*. European Commission, Av. du Jeu de Paume 13, 1150 Brüssel, Belgien.
- ESRI (1993). *Digital Chart of the World*. Environmental System Research Institute, Redlands, CA, USA.
- EUROSTAT (1999). *LTO-Cycles on European Airports*. Europäische Kommission – EUROSTAT Data Shop, BP 453, L - 2014 Luxembourg.
- Fabian, P. (1992). *Atmosphäre und Umwelt*. Springer Verlag, Heidelberg.
- Friedrich, R. (1997). Generation of european emission data for episodes. In Adolf Ebel, Rainer Friedrich, H. R., editor, *Tropospheric Modelling and Emission Estimation, Vol.7*, S. 181–357, Springer-Verlag. EUROTRAC.
- Geernaert, G. L. (1999). The influence of coastal processes an aerosol composition, air chemistry and marine eutrophication. In Borrell, P. und Borrell, P., editors, *Transport and Chemical Transformation in the Troposphere, Symposium 1998, Proceedings*, S. 307–311, WITPress, Southampton. EUROTRAC2.
- Gerthsen, C., Kneser, H. O. und Vogel, H. (1989). *Physik*. Springer-Lehrbuch, Berlin, Heidelberg.
- Gery, M. und Tonnesen, G. (1990). *User's guide for executing OZIPR, Order No. 9D2196NASA*. US EPA, Atmospheric Research and Exposure Assessment Laboratory, Research Triangle Parc, NC.
- Graedel, T. E. und Crutzen, P. J. (1994). *Chemie der Atmosphäre, Bedeutung für Klima und Umwelt*. Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg.
- Hartung, J. (1998). *Statistik - Lehr- und Handbuch der angewandten Statistik*. Oldenburg Verlag, München Wien.
- Hassel, D. (1998). Determination of the voc-split in car exhaust. In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*. GENEMIS – EUROTRAC.

- Heil (1991). *Einführung in die Ökonometrie*. Oldenburg Verlag, München, Wien.
- Hessischer Umweltminister (1988). *Antwort auf die Kleine Anfrage des Abgeordneten Boppel (GRÜNE) betreffend Luftbelastung und gesundheitliche Folgen durch Ablassen von Kerosin aus Flugzeugen, Drucksache 12/2996*. Kanzlei des Hessischen Landtags, Postfach 3240, Wiesbaden.
- Hogo, H. und Gery, M. (1988). *User's guide for executing OZIPM-4 with CBM-IV or optional mechanisms, EPA-600-8-88-082*. US EPA, Research Triangle Parc, NC.
- IRF (1998). *World Road Statistics '98*. International Road Federation, Genf.
- Jonson, J., Simpson, D., Mylona, S. und Reis, S. (1999). *Transboundary Photo-oxidants in Europe, EMEP Summary Report*. Norwegian Meteorological Institute, Norwegian Institute for Air Research, Institute of Energy Economics and the Rational Use of Energy, University of Stuttgart, University of Oslo, Research Report 2/99, ISSN 0332-9879.
- Keller, M., Heldstab, J., de Haan, P. und Knörr, W. (1999). *Handbuch Emissionsfaktoren des Straßenverkehrs, Version 1.2*. INFRAS, IFEU, INFRAS, Mühlemattstrasse 45, CH-3007 Bern/Schweiz.
- Kilde, N. (1996). Emission factors from maritime activities. In McInnes, G., editor, *Atmospheric Emission Inventory Guidebook, first edition*, S. B842 1–8, DK 1050 Copenhagen, Denmark. European Environment Agency.
- Klemp, D., Mannschreck, K., Schmitz, T. und Pätz, H. W. (1999). Investigation of emission ratios of anthropogenic trace gases of a city by means of a mobile laboratory - evaluation of calculated emissions estimated for a city region (eva-experiment). In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*, International Scientific Secretariat, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, München. GENEMIS – EURO-TRAC2.
- Lavender, K. (1999). *Schriftliche Mitteilung vom Juni 1999*. Lloyd's Register House, 29 Wellesley Road, Croydon CR0 2AJ, GB.
- Lenhart, L. und Friedrich, R. (1995). European emission data with high temporal and spatial resolution. *Water, Air & Soil Pollution*, 85, Kluwer Academic Publisher, Netherlands, S. 1897–1902.

- Maffei, G. (1998). *NO_x-Emission Inventory of the Milan Area for EUROTRAC2 Subproject LOOP*. EUROTRAC2, Gruppo Modellistica - Progetto Nebula, Via Fara 26, MILANO.
- Middleton, P., Stockwell, W. und Carter, W. (1990). Aggregation and analysis of volatile organic compound emissions for regional modeling. *Atmospheric Environment*, 24A, No. 5:1107–1133.
- Möllmann-Coers, M., Klemp, D. und Slemr, F. (1999). Determination of man made emissions of trace gases using the 'source tracer ratio method'. In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*, International Scientific Secretariat, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, München. GENEMIS – EUROTRAC2.
- Mobley, D. und Saeger, M. (1996). Verification concepts. In McInnes, G., editor, *Atmospheric Emission Inventory Guidebook, first edition*, S. AVER 1–29, DK 1050 Copenhagen, Denmark. European Environment Agency.
- Mohnen, V. (1996). Quality assurance in atmospheric measurement and assessments, transport and transformation of pollutants in the troposphere. In P.M.Borrell, Borrell, P., Cvitas, T., Kelly, K. und Seiler, W., editors, *Proceedings of EUROTRAC Symposium '96, vol. 2*, S. 417–423, Computer Mechanics Publication, Southampton. EUROTRAC.
- Neftel, A., Altenstedt, J., Marsh, A., Vogel, B. und Hjorth, J. (1997). *LOOP – Limitation of oxidant production, Project Description*. EUROTRAC2 – International Scientific Secretariat, GSF–Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, München.
- Obermeier, A. (1998). *Schriftliche Mitteilung vom Dezember 1998*. IER, Universität Stuttgart, Heßbrühlstraße 49a, 70565 Stuttgart.
- OECD (1990). *Emission Inventory of Major Air Pollutants in OECD European Countries*. Organisation for Economic Co-operation and Development, Environment Monographs No. 21, Paris.
- Orlanski, I. (1975). A rational subdivision of scales for atmospheric processes. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 56:527–530.
- Paffrath, D. (1991). *DLR IB 553 - 3/91 Treibstoffverlust aus Flugzeugen*. DLR - Institut für Physik der Atmosphäre, 82234 Oberpfaffenhofen.

- Physick, W. L. (1988). Review: Mesoscale modelling in complex terrain. *Earth-Science Reviews (Elsevier - Amsterdam)*, 25:199–235.
- Pielke, R. A. (1984). *Mesoscale Meteorological Modeling*. Academic Press INC., 24/28 Oval Road, London NW1 7DX.
- Roedel, W. (1991). *Physik unserer Umwelt: Die Atmosphäre*. Springer Verlag, Berlin Heidelberg.
- Royal-Greenwich-Observatory (1996). *Information Leaflet No. 57: 'The Date of Easter.'* Particle Physics and Astronomy Research Council, Royal Greenwich Observatory, United Kingdom.
- Samaras, Z. (1996). Emission factors from road transport. In McInnes, G., editor, *Atmospheric Emission Inventory Guidebook, first edition*, S. B710, DK 1050 Copenhagen, Denmark. European Environment Agency.
- Samaras, Z., Kyriakis, N., Joumard, R., André, M., Serié, E., Hassel, D., Weber, F.-J., Hickman, A.-J., Rijkeboer, R., Sturm, P., Sorenson, S., Lewis, C. A., Beckman, E., Trozzi, C., Vaccaro, R. und Kalivoda, M. (1998). *Methodologies for Estimating Air Pollutant Emissions from Transport, Emissions Factors and Traffic Characteristics Data Set, Final Report, LAT No. 9802*. Laboratory of applied Thermodynamics, Aristotele University of Thessaloniki, GR 540 06 Thessaloniki, Greece.
- Schwarz, U., Wickert, B., Obermeier, A. und Friedrich, R. (1999). European emission data for chemistry transport models. In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*, International Scientific Secretariat, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, München. GENEMIS – EUROTRAC2.
- Seinfeld, J. H. und Pandis, S. N. (1998). *Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution*. John Wiley & Sons, New York.
- Slemr, F., Friedrich, R. und Slemr, J. (1999). Validation of emission inventories of a city area against field measurements. In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*, International Scientific Secretariat, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, München. GENEMIS – EUROTRAC2.

- Smiatek, G. (1999). Land use data for modelling anthropogenic and biogenic emissions. In Friedrich, R., editor, *GENEMIS Annual Report 1998*, International Scientific Secretariat, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, München. GENEMIS – EUROTRAC2.
- Statistisches Bundesamt (1996). *Statistisches Jahrbuch für die Bundesrepublik Deutschland*. Statistisches Bundesamt, Wiesbaden.
- Stern, R. (1994). *Meteorologische Abhandlungen, Neue Folge Serie A Monographien*. Verlag von Dietrich Reimer, Berlin.
- Tarrasón, L. und Schaug, J. (1999). *Transboundary Acid Deposition in Europe, EMEP Summary Report*. Norwegian Meteorological Institute, Research Report no. 83, ISSN 0332-9879.
- Tulet, P., Crassier, V. und Rosset, R. (1998). *Air Pollution Modelling at a Regional Scale*. Laboratoire d'Aéorologie, 14 av. Ed Belin, 31400 Toulouse, France.
- TÜV (1992). *Konzeptstudie zur Umweltsituation des Rhein-Main-Flughafens Frankfurt/Main*. TÜV Rheinland Gruppe, AvioPlan, Luftverkehrsplanungs- und -projektgesellschaft, Prof. Hüttig & Co. mbH, 10787 Berlin.
- UNECE (1979). *Convention on Long-range Transboundary Air Pollution*. United Nations Economic Commission for Europe (UN/ECE), Environment and Human Settlements Division, Palais des Nations, CH-1211 Geneva 10, Switzerland.
- UNECE (1985). *Protocol to the 1979 Convention on Long-range Transboundary Air Pollution on the Reduction of Sulphur Emissions or their Transboundary Fluxes by at least 30 per cent ('Helsinki Protocol')*. United Nations Economic Commission for Europe (UN/ECE), Environment and Human Settlements Division, Palais des Nations, CH-1211 Geneva 10, Switzerland.
- UNECE-Task-Force (1998). *Annual Meeting of the UNECE Task Force on Emission Inventories*. 2.-3. Juni, Wismar, Germany.
- Wayne, R. P. (1991). *Chemistry of Atmospheres, Kap. 5*. Clarendon Press, Oxford.

Anhang

SNAP1	Bezeichnung der Quellgruppe
1	Kraft- und Heizwerke
2	Kommerzielle u.a. Verbrennungsanlagen
3	Industrielle Verbrennung
4	Produktionsprozesse
5	Gewinnung und Verarbeitung von Brennstoffen
6	Lösemittleinsatz
7	Straßenverkehr
8	Andere mobile Quellen (Landwirtschaft, Schiff-, Flugverkehr, etc.)
9	Abfallbehandlung
10	Landwirtschaft
11	Natur

**Emissionswerte im Jahr 1998, über die Koeffizienten der Regressionsanalyse bestimmt
[t/a]**

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Albanien	1	7.487	289	44.510	1.311	0
Albanien	2	888	1.738	7.615	10.470	0
Albanien	3	3.421	0	12.591	12.861	0
Albanien	4	628	2.988	1.132	4.440	5.312
Albanien	5	0	1.464	0	0	0
Albanien	6	0	5.803	0	0	0

Land	SNAPI	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Albanien	7	10.970	19.028	1.567	60.276	0
Albanien	8	2.437	1.274	907	1.222	0
Albanien	9	168	271	0	888	3.941
Albanien	10	0	300	0	0	162.350
Albanien	11	0	1.492	0	0	3.545
Belgien	1	53.578	463	78.421	5.228	0
Belgien	2	15.591	8.110	35.232	104.918	0
Belgien	3	74.906	0	97.989	96.752	0
Belgien	4	6.329	36.049	42.944	3.906	2.993
Belgien	5	0	17.755	0	0	0
Belgien	6	0	80.613	0	0	0
Belgien	7	176.780	152.327	15.073	798.817	0
Belgien	8	3.804	3.664	326	3.199	0
Belgien	9	3.332	132	0	19.780	2.220
Belgien	10	0	1.070	0	0	91.461
Belgien	11	0	4.155	0	0	1.997
Bosnien-Herzegowina	1	28.803	1.051	342.113	4.226	0
Bosnien-Herzegowina	2	4.044	7.724	69.347	47.632	0
Bosnien-Herzegowina	3	11.029	0	81.183	41.460	0
Bosnien-Herzegowina	4	2.022	9.410	7.279	14.272	4.713
Bosnien-Herzegowina	5	0	4.611	0	0	0
Bosnien-Herzegowina	6	0	18.278	0	0	0
Bosnien-Herzegowina	7	36.001	59.233	10.299	198.132	0
Bosnien-Herzegowina	8	8.007	3.961	5.959	4.017	0
Bosnien-Herzegowina	9	539	854	0	2.852	3.497
Bosnien-Herzegowina	10	0	1.209	0	0	144.052
Bosnien-Herzegowina	11	0	4.452	0	0	3.145
Bulgarien	1	58.920	510	1.177.248	6.246	0
Bulgarien	2	4.955	18.459	81.867	270.518	0
Bulgarien	3	31.090	0	186.592	44.548	0

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Bulgarien	4	41.776	17.879	34.342	107.706	2.328
Bulgarien	5	0	3.125	0	0	0
Bulgarien	6	0	27.801	0	0	0
Bulgarien	7	58.348	52.026	5.468	261.118	0
Bulgarien	8	16.430	3.241	13.196	8.466	0
Bulgarien	9	789	6.011	0	35.879	1.727
Bulgarien	10	0	26.016	0	0	71.137
Bulgarien	11	0	176.079	0	0	1.553
Daenemark	1	83.340	1.016	97.393	47.416	0
Daenemark	2	5.187	7.083	7.924	147.963	0
Daenemark	3	12.195	0	18.241	5.239	0
Daenemark	4	709	1.633	1.907	42.080	3.083
Daenemark	5	0	7.382	0	0	0
Daenemark	6	0	30.604	0	0	0
Daenemark	7	78.461	71.793	2.857	400.156	0
Daenemark	8	60.894	16.737	10.914	42.367	0
Daenemark	9	12.220	782	0	0	2.287
Daenemark	10	0	1.631	0	0	94.233
Daenemark	11	0	9.308	0	0	2.058
Deutschland	1	339.671	5.719	1.391.826	165.726	0
Deutschland	2	105.728	63.481	358.081	1.016.720	0
Deutschland	3	441.353	0	1.290.620	844.543	0
Deutschland	4	25.256	140.147	130.200	572.340	19.588
Deutschland	5	0	144.721	0	0	0
Deutschland	6	0	1.097.041	0	0	0
Deutschland	7	1.042.427	682.851	50.423	3.616.206	0
Deutschland	8	230.670	53.981	13.957	161.083	0
Deutschland	9	32.872	1.245	0	12.948	14.532
Deutschland	10	0	3.876	0	0	598.656
Deutschland	11	0	5.463	0	0	13.072

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Estland	1	11.708	74	74.682	1.899	0
Estland	2	931	1.222	2.946	12.303	0
Estland	3	3.944	0	14.991	2.369	0
Estland	4	187	2.947	1.058	146	2.301
Estland	5	0	74	0	0	0
Estland	6	0	1.971	0	0	0
Estland	7	35.708	7.864	3.774	84.280	0
Estland	8	2.052	230	203	644	0
Estland	9	260	46	0	114	1.707
Estland	10	0	212	0	0	70.329
Estland	11	0	653	0	0	1.536
Finnland	1	44.604	115	43.731	5.904	0
Finnland	2	26.110	18.391	8.747	2.406	0
Finnland	3	34.328	0	31.624	9.790	0
Finnland	4	2.543	20.654	24.314	716	1.028
Finnland	5	0	10.318	0	0	0
Finnland	6	0	42.200	0	0	0
Finnland	7	127.555	79.737	2.130	363.320	0
Finnland	8	25.427	6.465	2.566	36.977	0
Finnland	9	3.782	2.129	0	19.856	762
Finnland	10	0	21.987	0	0	31.411
Finnland	11	0	291.943	0	0	686
Frankreich	1	119.547	1.568	334.790	36.455	0
Frankreich	2	97.456	216.670	119.398	2.043.569	0
Frankreich	3	172.574	0	518.105	623.207	0
Frankreich	4	31.329	100.368	114.151	711.336	11.534
Frankreich	5	0	126.285	0	0	0
Frankreich	6	0	659.316	0	0	0
Frankreich	7	1.013.138	914.371	141.612	5.271.813	0
Frankreich	8	123.948	110.893	21.942	433.535	0

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Frankreich	9	25.264	20.638	0	235.525	8.557
Frankreich	10	0	9.647	0	0	352.495
Frankreich	11	0	461.798	0	0	7.697
Griechenland	1	150.475	1.540	304.077	7.001	0
Griechenland	2	2.099	36	35.164	622	0
Griechenland	3	3.982	0	24.908	305	0
Griechenland	4	51.863	26.675	47.019	29.527	7.065
Griechenland	5	0	4.733	0	0	0
Griechenland	6	0	100.405	0	0	0
Griechenland	7	156.043	172.201	12.002	800.109	0
Griechenland	8	260.552	58.413	166.894	74.917	0
Griechenland	9	58.328	430	0	165.223	5.242
Griechenland	10	0	34.991	0	0	215.930
Griechenland	11	0	392.876	0	0	4.715
Großbritannien/Nordirl.	1	597.922	8.541	1.902.797	29.954	0
Großbritannien/Nordirl.	2	114.037	36.057	155.408	230.221	0
Großbritannien/Nordirl.	3	228.530	0	483.785	65.574	0
Großbritannien/Nordirl.	4	5.723	370.329	49.132	46.435	9.764
Großbritannien/Nordirl.	5	0	295.219	0	0	0
Großbritannien/Nordirl.	6	0	680.186	0	0	0
Großbritannien/Nordirl.	7	1.119.903	647.834	54.764	4.063.945	0
Großbritannien/Nordirl.	8	220.310	50.497	59.950	26.124	0
Großbritannien/Nordirl.	9	9.370	39.554	0	131.004	7.244
Großbritannien/Nordirl.	10	0	8.252	0	0	298.404
Großbritannien/Nordirl.	11	0	80.014	0	0	6.516
Irland	1	50.842	235	101.094	3.898	0
Irland	2	8.473	7.563	36.887	73.889	0
Irland	3	10.802	0	36.215	1.293	0
Irland	4	1.746	966	543	954	3.990
Irland	5	0	4.057	0	0	0

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Irland	6	0	25.122	0	0	0
Irland	7	48.366	59.431	7.506	263.943	0
Irland	8	10.352	2.108	595	13.109	0
Irland	9	410	2.606	0	32.847	2.960
Irland	10	0	82.744	0	0	121.948
Irland	11	0	16.600	0	0	2.663
Island	1	0	18	14.815	210	0
Island	2	0	143	53	718	0
Island	3	944	0	2.718	327	0
Island	4	0	238	1.733	289	1.395
Island	5	0	765	0	0	0
Island	6	0	3.015	0	0	0
Island	7	1.769	2.340	2.153	16.566	0
Island	8	18.984	909	1.113	5.006	0
Island	9	0	98	0	918	1.035
Island	10	0	687	0	0	42.634
Island	11	0	129	0	0	931
Italien	1	458.008	4.005	557.577	22.777	0
Italien	2	65.345	25.502	93.005	305.630	0
Italien	3	335.645	0	513.885	410.460	0
Italien	4	12.889	100.653	103.785	494.546	8.352
Italien	5	0	152.444	0	0	0
Italien	6	0	541.109	0	0	0
Italien	7	1.018.279	1.095.918	70.793	5.514.074	0
Italien	8	301.842	195.923	43.167	524.380	0
Italien	9	29.718	104.707	0	1.509.509	6.196
Italien	10	0	341.256	0	0	255.251
Italien	11	0	152.182	569.584	0	5.574
Jugoslawien	1	47.256	480	375.732	3.059	0
Jugoslawien	2	2.991	4.055	39.529	34.233	0

Land	SNAPI	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Jugoslawien	3	4.233	0	18.000	29.988	0
Jugoslawien	4	2.876	4.942	876	10.257	5.405
Jugoslawien	5	0	2.419	0	0	0
Jugoslawien	6	0	9.595	0	0	0
Jugoslawien	7	112.867	24.101	85.353	110.259	0
Jugoslawien	8	23.976	1.612	23.865	2.236	0
Jugoslawien	9	987	447	0	2.050	4.010
Jugoslawien	10	0	1.582	0	0	165.195
Jugoslawien	11	0	1.234	0	0	3.607
Kroatien	1	7.040	133	28.495	696	0
Kroatien	2	3.343	5.732	5.304	89.721	0
Kroatien	3	7.074	0	21.531	899	0
Kroatien	4	1.489	6.777	321	5.754	725
Kroatien	5	0	5.168	0	0	0
Kroatien	6	0	20.877	0	0	0
Kroatien	7	21.349	26.865	5.229	301.971	0
Kroatien	8	6.103	763	2.603	23.870	0
Kroatien	9	145	60	0	2.067	538
Kroatien	10	0	219	0	0	22.172
Kroatien	11	0	314	0	0	484
Lettland	1	13.274	310	47.550	12.097	0
Lettland	2	1.677	2.943	2.535	37.497	0
Lettland	3	2.447	0	1.486	1.352	0
Lettland	4	1.956	10	86	835	2.666
Lettland	5	0	221	0	0	0
Lettland	6	0	1.534	0	0	0
Lettland	7	19.471	10.696	330	139.832	0
Lettland	8	10.337	2.056	1.565	5.311	0
Lettland	9	833	22	0	964	1.978
Lettland	10	0	1.257	0	0	81.489

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Lettland	11	0	51.706	0	0	1.779
Litauen	1	25.432	720	67.780	3.913	0
Litauen	2	8.454	2.288	42.311	2.645	0
Litauen	3	8.761	0	30.334	12.942	0
Litauen	4	1.904	14.388	3.667	5.914	1.058
Litauen	5	0	3.524	0	0	0
Litauen	6	0	6.587	0	0	0
Litauen	7	38.617	33.775	4.568	296.291	0
Litauen	8	16.065	3.333	1.516	16.975	0
Litauen	9	137	139	0	936	785
Litauen	10	0	2.123	0	0	32.335
Litauen	11	0	4.127	0	0	706
Luxemburg	1	277	29	297	86	0
Luxemburg	2	707	386	709	4.927	0
Luxemburg	3	6.870	0	6.864	33.953	0
Luxemburg	4	181	998	159	12.329	2.582
Luxemburg	5	0	1.308	0	0	0
Luxemburg	6	0	2.981	0	0	0
Luxemburg	7	9.658	6.742	512	32.776	0
Luxemburg	8	966	825	104	1.983	0
Luxemburg	9	218	25	0	8	1.915
Luxemburg	10	0	114	0	0	78.908
Luxemburg	11	0	1.712	0	0	1.723
Macedonien	1	12.194	65	65.682	2.143	0
Macedonien	2	2.662	723	20.677	31.491	0
Macedonien	3	5.572	0	18.580	21.024	0
Macedonien	4	1.024	676	1.669	7.259	5.360
Macedonien	5	0	331	0	0	0
Macedonien	6	0	1.314	0	0	0
Macedonien	7	14.094	3.291	1.824	77.723	0

Land	SNAP1	NO _x	NMVOG	SO ₂	CO	NH ₃
Macedonien	8	3.130	221	1.055	1.576	0
Macedonien	9	273	61	0	1.451	3.977
Macedonien	10	0	104	0	0	163.815
Macedonien	11	0	306	0	0	3.577
Moldavien	1	7.916	28	62.455	2.364	0
Moldavien	2	1.855	101	15.124	26.720	0
Moldavien	3	5.046	0	17.667	23.189	0
Moldavien	4	927	294	1.587	8.006	4.022
Moldavien	5	0	144	0	0	0
Moldavien	6	0	571	0	0	0
Moldavien	7	9.352	182	1.134	84.536	0
Moldavien	8	2.077	25	656	1.714	0
Moldavien	9	247	27	0	1.600	2.984
Moldavien	10	0	20	0	0	122.925
Moldavien	11	0	156	0	0	2.684
Niederlande	1	66.905	971	23.075	5.878	0
Niederlande	2	46.063	9.335	5.640	72.982	0
Niederlande	3	68.368	0	78.166	138.082	0
Niederlande	4	12.286	142.542	31.966	114.126	4.383
Niederlande	5	0	34.266	0	0	0
Niederlande	6	0	58.425	0	0	0
Niederlande	7	252.164	126.335	12.128	504.315	0
Niederlande	8	69.079	7.150	13.024	22.799	0
Niederlande	9	5.100	2.651	0	2.495	3.252
Niederlande	10	0	4.363	0	0	133.958
Niederlande	11	0	3.400	0	0	2.925
Norwegen	1	956	258	241	247	0
Norwegen	2	2.666	10.384	2.274	145.877	0
Norwegen	3	33.651	0	6.763	11.433	0
Norwegen	4	8.618	20.949	24.199	51.113	786

Land	SNAP1	NO _x	NMVOG	SO ₂	CO	NH ₃
Norwegen	5	0	184.545	0	0	0
Norwegen	6	0	47.113	0	0	0
Norwegen	7	71.116	71.209	2.759	555.445	0
Norwegen	8	90.543	16.445	3.732	52.583	0
Norwegen	9	8.439	840	0	751	583
Norwegen	10	0	305	0	0	24.020
Norwegen	11	0	2.404	0	0	524
Oesterreich	1	10.831	638	16.292	10.675	0
Oesterreich	2	12.415	97.208	22.846	935.199	0
Oesterreich	3	47.449	0	47.252	324.933	0
Oesterreich	4	2.433	13.090	196	24.545	2.267
Oesterreich	5	0	17.195	0	0	0
Oesterreich	6	0	133.550	0	0	0
Oesterreich	7	100.742	78.148	8.149	587.005	0
Oesterreich	8	12.935	2.367	2.876	5.800	0
Oesterreich	9	684	25.237	0	291	1.682
Oesterreich	10	0	15.415	0	0	69.289
Oesterreich	11	0	236.877	0	0	1.513
Polen	1	386.961	8.563	1.343.890	34.575	0
Polen	2	103.626	157.556	696.903	2.327.252	0
Polen	3	221.681	0	700.034	2.692.988	0
Polen	4	37.703	54.516	86.701	54.170	10.580
Polen	5	0	31.317	0	0	0
Polen	6	0	196.345	0	0	0
Polen	7	444.199	306.866	44.448	1.516.460	0
Polen	8	149.211	75.320	57.788	93.579	0
Polen	9	78.266	174.589	0	708.358	7.849
Polen	10	0	35.315	0	0	323.348
Polen	11	0	290.101	0	0	7.061
Portugal	1	63.624	577	245.863	2.381	0

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Portugal	2	3.778	12.314	5.045	142.068	0
Portugal	3	32.216	0	99.110	381.448	0
Portugal	4	6.014	25.674	12.252	14.758	5.872
Portugal	5	0	10.468	0	0	0
Portugal	6	0	77.291	0	0	0
Portugal	7	148.231	108.543	19.399	661.379	0
Portugal	8	23.636	5.722	2.917	11.625	0
Portugal	9	5.475	3.730	0	357	4.357
Portugal	10	0	4.112	0	0	179.471
Portugal	11	0	438.097	0	0	3.919
Rumaenien	1	121.881	1.987	609.219	9.263	0
Rumaenien	2	18.298	23.217	160.108	275.928	0
Rumaenien	3	46.771	0	84.250	556.565	0
Rumaenien	4	9.424	53.719	20.069	100.665	7.231
Rumaenien	5	0	95.269	0	0	0
Rumaenien	6	0	169.319	0	0	0
Rumaenien	7	25.791	54.394	3.451	368.957	0
Rumaenien	8	136.614	13.080	28.672	20.696	0
Rumaenien	9	19.055	70.983	0	1.042.831	5.365
Rumaenien	10	0	42.395	0	0	221.000
Rumaenien	11	0	150.333	0	0	4.826
Rußland	1	522.040	14.140	887.842	53.454	0
Rußland	2	70.009	1.767	61.460	52.644	0
Rußland	3	168.527	0	715.687	1.186.590	0
Rußland	4	186.190	497.570	239.698	489.772	22.067
Rußland	5	0	599.511	0	0	0
Rußland	6	0	251.320	0	0	0
Rußland	7	678.850	1.291.267	100.760	6.654.808	0
Rußland	8	127.897	82.395	88.615	783.876	0
Rußland	9	3.955	2.987	1.876	37.276	16.371

Land	SNAPI	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Rußland	10	0	3.865	2.517	0	674.411
Rußland	11	0	94.372	69.717	0	14.726
Schweden	1	11.347	3.802	11.976	8.694	0
Schweden	2	12.038	151.163	12.781	114.699	0
Schweden	3	36.052	0	29.773	32.103	0
Schweden	4	18.472	65.589	30.635	5.184	1.935
Schweden	5	0	11.526	0	0	0
Schweden	6	0	61.632	0	0	0
Schweden	7	143.123	154.439	5.187	851.740	0
Schweden	8	152.397	38.391	21.247	102.078	0
Schweden	9	1.635	55	0	12.108	1.435
Schweden	10	0	7.926	0	0	59.126
Schweden	11	0	270.447	0	0	1.291
Schweiz	1	919	38	948	123	0
Schweiz	2	10.515	8.032	13.069	145.169	0
Schweiz	3	14.967	0	10.348	22.807	0
Schweiz	4	1.141	14.799	3.518	27.730	2.146
Schweiz	5	0	11.274	0	0	0
Schweiz	6	0	131.003	0	0	0
Schweiz	7	76.420	52.809	2.201	287.670	0
Schweiz	8	21.885	11.982	749	81.097	0
Schweiz	9	5.587	2.607	0	9.024	1.592
Schweiz	10	0	11.476	0	0	65.593
Schweiz	11	0	606	0	0	1.432
Slovenien	1	16.545	880	149.664	984	0
Slovenien	2	1.758	1.014	12.355	5.380	0
Slovenien	3	3.509	0	15.306	1.167	0
Slovenien	4	1.133	4.203	4.219	221	756
Slovenien	5	0	2.532	0	0	0
Slovenien	6	0	7.515	0	0	0

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Slovenien	7	46.749	18.076	2.816	89.381	0
Slovenien	8	2.967	1.780	765	2.194	0
Slovenien	9	145	40	0	376	561
Slovenien	10	0	1.168	0	0	23.096
Slovenien	11	0	4.876	0	0	504
Slowakei	1	49.954	12.498	134.977	7.073	0
Slowakei	2	10.038	62.049	65.638	85.411	0
Slowakei	3	50.660	0	127.114	133.724	0
Slowakei	4	18.478	7.888	26.011	16.285	1.511
Slowakei	5	0	16.791	0	0	0
Slowakei	6	0	41.030	0	0	0
Slowakei	7	38.243	36.082	2.152	148.451	0
Slowakei	8	3.818	1.602	523	3.105	0
Slowakei	9	239	2.522	0	23.676	1.121
Slowakei	10	0	12.874	0	0	46.193
Slowakei	11	0	27.550	0	0	1.009
Spanien	1	280.942	10.156	1.048.870	21.048	0
Spanien	2	20.836	48.869	65.730	742.527	0
Spanien	3	165.615	0	447.031	340.386	0
Spanien	4	8.068	64.374	39.872	203.677	10.717
Spanien	5	0	54.082	0	0	0
Spanien	6	0	272.909	0	0	0
Spanien	7	459.755	443.461	71.270	2.341.428	0
Spanien	8	154.636	36.948	36.593	98.385	0
Spanien	9	11.255	54.028	0	272.855	7.951
Spanien	10	0	65.490	0	0	327.549
Spanien	11	0	775.489	0	0	7.152
Tschechische Republik	1	229.403	4.897	871.164	27.958	0
Tschechische Republik	2	72.384	42.841	315.376	375.579	0
Tschechische Republik	3	93.533	0	138.195	251.852	0

Land	SNAP1	NO _x	NMVOG	SO ₂	CO	NH ₃
Tschechische Republik	4	5.036	72.431	35.676	51.797	2.448
Tschechische Republik	5	0	4.230	0	0	0
Tschechische Republik	6	0	138.744	0	0	0
Tschechische Republik	7	128.761	30.887	12.983	150.996	0
Tschechische Republik	8	11.435	12.296	608	12.683	0
Tschechische Republik	9	711	283	0	4.833	1.817
Tschechische Republik	10	0	2.497	0	0	74.832
Tschechische Republik	11	0	40.180	0	0	1.634
Tuerkei	1	57.842	1.808	237.315	10.423	0
Tuerkei	2	10.867	15.321	57.467	128.149	0
Tuerkei	3	29.561	0	67.131	111.218	0
Tuerkei	4	5.433	18.664	6.031	38.401	11.114
Tuerkei	5	0	9.144	0	0	0
Tuerkei	6	0	36.259	0	0	0
Tuerkei	7	65.292	84.940	6.289	359.061	0
Tuerkei	8	14.501	5.683	3.639	7.280	0
Tuerkei	9	1.295	1.694	0	7.057	8.246
Tuerkei	10	0	2.875	0	0	339.688
Tuerkei	11	0	11.193	0	0	7.417
Ukraine	1	223.636	1.566	1.143.298	37.122	0
Ukraine	2	85.256	10.926	129.563	13.765	0
Ukraine	3	110.063	0	182.711	1.270.391	0
Ukraine	4	975	14.101	7.969	822	14.156
Ukraine	5	0	372	0	0	0
Ukraine	6	0	3.085	0	0	0
Ukraine	7	166.985	386.099	154.875	2.370.326	0
Ukraine	8	43.865	32.678	87.765	253.536	0
Ukraine	9	11.965	23.870	0	43.874	10.502
Ukraine	10	0	43.896	0	0	432.632
Ukraine	11	0	110.876	0	0	9.447

Land	SNAP1	NO _x	NMVOC	SO ₂	CO	NH ₃
Ungarn	1	48.084	996	433.673	18.817	0
Ungarn	2	18.670	25.560	135.359	60.987	0
Ungarn	3	16.418	0	148.179	7.739	0
Ungarn	4	8.704	3.244	9.344	257.611	2.297
Ungarn	5	0	18.185	0	0	0
Ungarn	6	0	41.793	0	0	0
Ungarn	7	88.088	73.809	8.350	496.358	0
Ungarn	8	4.594	2.851	548	3.758	0
Ungarn	9	209	14	0	987	1.704
Ungarn	10	0	988	0	0	70.213
Ungarn	11	0	6.006	0	0	1.533
Weißrußland	1	61.538	4.849	308.121	27.279	0
Weißrußland	2	9.889	27.925	52.831	260.682	0
Weißrußland	3	28.117	0	87.153	263.461	0
Weißrußland	4	5.166	34.023	5.545	81.958	4.512
Weißrußland	5	0	16.672	0	0	0
Weißrußland	6	0	66.079	0	0	0
Weißrußland	7	75.645	173.472	7.171	757.988	0
Weißrußland	8	16.054	9.490	2.449	15.379	0
Weißrußland	9	1.378	2.824	0	14.650	3.347
Weißrußland	10	0	11.957	0	0	137.899
Weißrußland	11	0	21.157	0	0	3.011

Koeffizienten der Regressionsanalyse

Aus der Regressionsanalyse ermittelter funktionaler Zusammenhang zwischen europäischen Emissionen und emissionsrelevanten Eingangsgrößen.

Man beachte, daß nicht alle Quellgruppen alle Substanzen emittieren. Demzufolge gibt es auch zu den einzelnen Schadstoffen nicht für jede Quellgruppe Regressionsgleichungen.

Schadstoff SO₂, Quellsektor Nr. 1 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,91$)

$$\hat{E}_{SO_2,1} = -0,290 \cdot Desox + 1,131 \cdot Brenn_{SO_2} \quad (1)$$

Schadstoff SO₂, Quellsektor Nr. 2 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,86$)

$$\hat{E}_{SO_2,2} = -0,773 \cdot BIP - 1,251 \cdot Electr + 1,348 \cdot En_{Ind} + 1,467 \cdot Brenn_{SO_2} \quad (2)$$

Schadstoff SO₂, Quellsektor Nr. 3 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,81$)

$$\hat{E}_{SO_2,3} = -0,733 \cdot BIP - 0,656 \cdot Electr + 1,337 \cdot En_{Ind} + 0,900 \cdot Brenn_{SO_2} \quad (3)$$

Schadstoff SO₂, Quellsektor Nr. 4 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,77$)

$$\hat{E}_{SO_2,4} = 1,119 \cdot Pop - 0,296 \cdot Brenn_{SO_2} \quad (4)$$

Schadstoff SO₂, Quellsektor Nr. 7 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,94$)

$$\hat{E}_{SO_2,7} = 0,136 \cdot FL_{Lkw} - 0,704 \cdot FL_{Pkw} + 0,582 \cdot KAT_{SO_2} + 0,891 \cdot Lkw \quad (5)$$

Schadstoff SO₂, Quellsektor Nr. 8 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,47$)

$$\hat{E}_{SO_2,8} = 2,486 \cdot KAT_{SO_2} - 1,921 \cdot Pkw \quad (6)$$

Schadstoff NO_x, Quellsektor Nr. 1 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,97$)

$$\hat{E}_{NO_x,1} = 0,355 \cdot Electr - 0,464 \cdot Denox + 0,891 \cdot Brenn_{NO_x} \quad (7)$$

Schadstoff NO_x, Quellsektor Nr. 2 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,93$)

$$\hat{E}_{NOx,2} = 0,729 \cdot BIP - 0,279 \cdot Denox - 0,194 \cdot Pop + 0,629 \cdot Brenn_{NOx} \quad (8)$$

Schadstoff NO_x, Quellsektor Nr. 3 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,94$)

$$\hat{E}_{NOx,3} = 0,790 \cdot En_{Ind} + 0,469 \cdot Denox + 0,324 \cdot T2 \quad (9)$$

Schadstoff NO_x, Quellsektor Nr. 4 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,54$)

$$\hat{E}_{NOx,4} = 2,394 \cdot Pop - 1,776 \cdot BIP \quad (10)$$

Schadstoff NO_x, Quellsektor Nr. 7 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,99$)

$$\hat{E}_{NOx,7} = -0,465 \cdot FL_{Lkw} - 0,208 \cdot FL_{Pkw} + 1,291 \cdot KAT_{NOx} + 0,340 \cdot Lkw \quad (11)$$

Schadstoff NO_x, Quellsektor Nr. 8 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,85$)

$$\hat{E}_{NOx,8} = 0,477 \cdot En_{Ind} + 0,471 \cdot Lkw \quad (12)$$

Schadstoff NO_x, Quellsektor Nr. 9 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,5$)

$$\hat{E}_{NOx,9} = 0,709 \cdot En_{Ind} \quad (13)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 1 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,42$)

$$\hat{E}_{NMVOC,1} = 0,810 \cdot Electr - 0,419 \cdot Denox \quad (14)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 2 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,83$)

$$\hat{E}_{NMVOC,2} = -1,928 \cdot Electr + 0,144 \cdot GTZ + 1,769 \cdot Pop + 0,807 \cdot Brenn_{NMVOC} \quad (15)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 4 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,8$)

$$\hat{E}_{NMVOC,4} = 0,546 \cdot Electr - 0,582 \cdot En_{Ind} + 0,933 \cdot Pop \quad (16)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 5 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,70$)

$$\hat{E}_{NMVOC,5} = 0,417 \cdot Electr + 0,439 \cdot Pop \quad (17)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 6 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,97$)

$$\hat{E}_{NMVOC,6} = 1,869 \cdot BIP + 1,663 \cdot En_{Ind} - 2,087 \cdot Pop \quad (18)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 7 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,99$)

$$\hat{E}_{NMVOC,7} = 0,197 \cdot Mot + 0,692 \cdot KAT_{NMVOC} + 0,256 \cdot Lkw - 0,152 \cdot FL_{Pkw} \quad (19)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 8 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,91$)

$$\hat{E}_{NMVOC,8} = 0,573 \cdot FL_{Lkw} + 0,399 \cdot KAT_{NMVOC} \quad (20)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 9 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,52$)

$$\hat{E}_{NMVOC,9} = -1,059 \cdot BIP + 1,685 \cdot En_{Ind} \quad (21)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 10 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,73$)

$$\hat{E}_{NMVOC,10} = 0,362 \cdot Forest + 7,818 \cdot Sqr_T + 5,925 \cdot T2 - 13,038 \cdot TEMP \quad (22)$$

Schadstoff NMVOC, Quellsektor Nr. 11 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,5$)

$$\hat{E}_{NMVOC,11} = 0,517 \cdot Farm + 0,268 \cdot Forest \quad (23)$$

Schadstoff CO, Quellsektor Nr. 1 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,74$)

$$\hat{E}_{CO,1} = 0,979 \cdot Electr - 0,255 \cdot T2 \quad (24)$$

Schadstoff CO, Quellsektor Nr. 2 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,68$)

$$\hat{E}_{CO,2} = -0,773 \cdot Electr + 1,484 \cdot En_{Ind} \quad (25)$$

Schadstoff CO, Quellsektor Nr. 3 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,55$)

$$\hat{E}_{CO,3} = -2,358 \cdot BIP - 0,517 \cdot Electr + 1,736 \cdot En_{Ind} + 1,668 \cdot Pop \quad (26)$$

Schadstoff CO, Quellsektor Nr. 4 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,84$)

$$\hat{E}_{CO,4} = 0,576 \cdot BIP - 0,849 \cdot Electr + 1,065 \cdot En_{Ind} \quad (27)$$

Schadstoff CO, Quellsektor Nr. 7 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,99$)

$$\hat{E}_{CO,7} = -0,509 \cdot FL_{Pkw} + 0,702 \cdot KAT_{CO} + 0,390 \cdot Lkw + 0,397 \cdot Pkw \quad (28)$$

Schadstoff CO, Quellsektor Nr. 8 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,8$)

$$\hat{E}_{CO,8} = 2,626 \cdot FL_{Lkw} + -2,112 \cdot Lkw + 0,502 \cdot Pkw \quad (29)$$

Schadstoff CO, Quellsektor Nr. 9 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,39$)

$$\hat{E}_{CO,9} = -0,974 \cdot BIP + 1,515 \cdot En_{Ind} \quad (30)$$

Schadstoff NH₃, Quellsektor Nr. 4 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,95$)

$$\hat{E}_{NH3,4} = 0,974 \cdot Pop \quad (31)$$

Schadstoff NH₃, Quellsektor Nr. 9 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,95$)

$$\hat{E}_{NH_3,9} = 0,910 \cdot Pop + 0,109 \cdot Temp \quad (32)$$

Schadstoff NH₃, Quellsektor Nr. 10 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,84$)

$$\hat{E}_{NH_3,10} = 0,727 \cdot Farm + 0,315 \cdot Temp \quad (33)$$

Schadstoff NH₃, Quellsektor Nr. 11 (Bestimmtheitsmaß $R^2 = 0,84$)

$$\hat{E}_{NH_3,11} = 0,739 \cdot Farm + 0,315 \cdot T2 \quad (34)$$

Tabelle 1: Regressionsparameter

Parameter	Bedeutung
<i>BIP</i>	Bruttoinlandsprodukt
<i>Brenn_{SO2}</i>	mit SO ₂ -Emissionsfaktoren gewichteter Brennstoffeinsatz für Feuerungen
<i>Brenn_{NOx}</i>	mit NO _x -Emissionsfaktoren gewichteter Brennstoffeinsatz für Feuerungen
<i>Brenn_{CO}</i>	mit CO-Emissionsfaktoren gewichteter Brennstoffeinsatz für Feuerungen
<i>Brenn_{NMVOC}</i>	mit NMVOC-Emissionsfaktoren gewichteter Brennstoffeinsatz für Feuerungen
<i>Denox</i>	Index der Minderungstechnik für NO _x bei Kraftwerken
<i>Desox</i>	Index der Minderungstechnik für SO ₂ bei Kraftwerken
<i>Electr</i>	Stromerzeugung
<i>En_{Ind}</i>	Energieverbrauch Industrie
<i>En_{Lps}</i>	Energieverbrauch Großkraftwerke
<i>En_{Tra}</i>	Energieverbrauch Transportbereich
<i>Farm</i>	Agrarfläche
<i>Forest</i>	Waldfläche
<i>FL_{Lkw}</i>	Gesamtfahrleistung Lkws
<i>FL_{Pkw}</i>	Gesamtfahrleistung Pkws
<i>GTZ</i>	Gradtagszahl
<i>KAT_{SO2}</i>	Index der Kfz-Minderungstechnik für SO ₂
<i>KAT_{NOx}</i>	Index der Kfz-Minderungstechnik für NO _x
<i>KAT_{CO}</i>	Index der Kfz-Minderungstechnik für CO
<i>KAT_{NMVOC}</i>	Index der Kfz-Minderungstechnik für NMVOC
<i>Lkw</i>	Bestandszahl Lkws
<i>Mot</i>	Bestandszahl Motorräder
<i>Pkw</i>	Bestandszahl Pkws
<i>Pop</i>	Bevölkerungszahl
<i>Sqr.T</i>	$\sqrt{\text{Temperatur}}$
<i>Temp</i>	Temperatur
<i>T2</i>	Temperatur ²