



**Berichte des Deutschen Wetterdienstes**

**207**

**Verfahren zur Analyse von Messungen atmosphärischer  
Spurengase mit dem Ziel der Assimilation in  
Chemie-Transportmodellen**

von  
Stefan Tilmes



Zitationsvorschlag:

Tilmes, Stefan: Verfahren zur Analyse von Messungen atmosphärischer Spurengase mit dem Ziel der Assimilation in Chemie-Transportmodellen. - Offenbach am Main: Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes, 1999.

(Berichte des Deutschen Wetterdienstes ; 207)

ISSN der Onlineausgabe: 2194-5969

ISSN der Druckausgabe: 0072-4130

---

## Nutzungsbedingungen



Dieses Dokument steht unter folgender Creative Commons-Lizenz

Sie dürfen das Werk bzw. den Inhalt unter folgenden Bedingungen vervielfältigen, verbreiten und öffentlich zugänglich machen: Sie müssen den Namen des Autors/Rechteinhabers in der von ihm festgelegten Weise nennen. Dieses Werk bzw. dieser Inhalt darf nicht für kommerzielle Zwecke verwendet werden und es darf nicht bearbeitet, abgewandelt oder in anderer Weise verändert werden.

Mit der Verwendung dieses Dokumentes erkennen Sie die Nutzungsbedingungen an.

---

Herausgeber und Verlag: :

Deutscher Wetterdienst  
Frankfurter Straße 135  
D- 63067 Offenbach am Main

Internet: [www.dwd.de](http://www.dwd.de)

Mail: [bibliothek@dwd.de](mailto:bibliothek@dwd.de)

**Deutscher Wetterdienst**



**Berichte des Deutschen Wetterdienstes**

**207**

**Verfahren zur Analyse von Mes-  
sungen atmosphärischer Spurengase  
mit dem Ziel der Assimilation in  
Chemie-Transportmodellen**

von  
Stefan Tilmes

Zur Herstellung dieses Buchers wurde chlor- und säurefreies Papier verwendet.

Von der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität zu Köln angenommene Dissertation, die im Rahmen des EURAD-Projektes erstellt wurde.

Die Referenten waren  
Professor Dr. Adolf Ebel  
Professor Dr. Michael Kerschgens  
Der Tag der Disputation war der 22. 12. 1998.

ISSN 0072-4130  
ISBN 3-88148-349-7

---

Alle Rechte vorbehalten. Nachdruck, auch auszugsweise, verboten. Kein Teil dieses Werkes darf ohne schriftliche Einwilligung des Deutschen Wetterdienstes in irgendeiner Form (Fortokopie, Mikrofilm, oder ein anderes Verfahren), auch nicht für Zwecke der Unterrichtsgestaltung, reproduziert oder unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden. Für den Inhalt ist der Autor verantwortlich.

---

Herausgeber und Verlag:

Deutscher Wetterdienst  
Frankfurter Str. 135  
63067 Offenbach am Main

Anschrift der Autoren:

Dr. Stefan Tilmes  
Deutscher Wetterdienst  
GB Forschung und Entwicklung  
Frankfurter Str. 135  
63067 Offenbach am Main

*Ich staune immer, wenn ich irgend etwas zu Ende bringe. Ich staune und bin deprimiert. Mein Sinn für Vollkommenheit müßte mich daran hindern, irgend etwas zu Ende zu bringen; er müßte mich sogar daran hindern, irgend etwas in Angriff zu nehmen. Doch daran denke ich nicht und mache mich ans Werk. Was ich zustandebringe, ist bei mir nicht das Ergebnis einer Willensanspannung, sondern einer Willensschwäche. Ich beginne, weil ich keine Kraft habe, um nachzudenken; ich führe zu Ende, weil ich nicht genug Seelenkraft habe, um zu unterbrechen. Dieses Buch ist meine Feigheit. Der Grund dafür, weshalb ich so oft einen Gedanken mit einem Landschaftsbild unterbreche, das irgendwie in das wirkliche oder angenommene Schema meiner Eindrücke paßt, liegt darin, daß diese Landschaft eine Tür ist, durch welche ich der Einsicht in meine schöpferische Ohnmacht entfliehe.*

aus Fernando Pessoa,  
„Das Buch der Unruhe“

# Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung

Abstract

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Beobachtungen</b>	<b>5</b>
2.1	Allgemeine Datenlage . . . . .	6
2.2	Fehlerquellen . . . . .	8
2.3	Ozon-Bodendaten . . . . .	16
2.4	$NO_x$ -Bodendaten . . . . .	23
2.5	$SO_2$ -Bodendaten . . . . .	29
2.6	Meßdaten im Zusammenhang mit Modellrechnungen . . . . .	29
<b>3</b>	<b>Modellierte Daten</b>	<b>32</b>
3.1	Das EURAD-Modellsystem . . . . .	33
3.2	Die Sommersmogepisode 19. – 30. Juli 1994 . . . . .	34
3.2.1	Die Wetterlage . . . . .	34
3.2.2	Die Entwicklung der Ozonepisode . . . . .	35
3.3	Auswertung der Ozon-Bodendaten . . . . .	37
<b>4</b>	<b>Die Hauptkomponentenanalyse</b>	<b>47</b>
4.1	Einführung in die PCA . . . . .	48
4.2	PCA der Ozon-Bodendaten . . . . .	53
4.3	PCA der $NO_x$ - und $SO_2$ -Bodendaten . . . . .	60
4.4	PCA der simulierten Bodenverteilungen von Ozon . . . . .	62
4.5	Ein quantitatives Maß für das aktuelle Regime . . . . .	66
<b>5</b>	<b>Die Objektive Analyse</b>	<b>77</b>

5.1	Ein allgemeiner Algorithmus . . . . .	79
5.2	Die Optimale Interpolation . . . . .	82
5.3	Die Methode Sukzessiver Korrekturen . . . . .	85
5.4	Ein Analyseverfahren für chemische Spurenstoffe . . . . .	86
5.4.1	Beschreibung des Verfahrens . . . . .	87
5.4.2	Zwei Beispiele . . . . .	91
5.4.3	Diskussion . . . . .	92
<b>6</b>	<b>Modellevaluierung und Kontrolle von Messungen</b>	<b>98</b>
6.1	Direkter Vergleich Messung/Modell . . . . .	100
6.2	Vergleich mittels statistischer Maße . . . . .	109
6.3	Untersuchung postprozessierter Daten . . . . .	116
6.4	Diskussion der Evaluierung . . . . .	117
<b>7</b>	<b>Zum Problem der Anfangs- und Randwerte</b>	<b>119</b>
7.1	Der Einfluß von Anfangswerten . . . . .	120
7.2	Klimatologische Anfangs- und Randwerte . . . . .	122
7.3	Assimilation von Messungen des bodennahen Ozons . . . . .	128
7.3.1	Beschreibung des Assimilationsverfahrens . . . . .	129
7.3.2	Auswertung der Assimilationsexperimente . . . . .	131
7.4	Diskussion des Anfangswertproblems . . . . .	139
<b>8</b>	<b>Schlußfolgerungen</b>	<b>141</b>
<b>A</b>	<b>Datenquellen</b>	<b>147</b>
A.1	Meßnetzbetreiber . . . . .	147
A.2	Meßstationen . . . . .	149
<b>B</b>	<b>Klimatologische Anfangs- und Randwerte von Spurengasen</b>	<b>161</b>
B.1	Klimatologische Profile . . . . .	161
B.2	Aktualisierung der klimatologischen Profile . . . . .	165
<b>C</b>	<b>Farbige Abbildungen</b>	<b>168</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>177</b>

# Zusammenfassung

Die Vorhersage des Zustandes der Atmosphäre ist mathematisch gesehen ein Anfangswertproblem; eine möglichst genaue Kenntnis des Zustandes der Atmosphäre zum Ausgangszeitpunkt ist eine notwendige Bedingung für eine realistische Prognose. Die vorliegende Arbeit hat die Bereitstellung von Anfangswerten atmosphärischer Spurenstoffe für Chemie-Transportmodelle (CTMs) mittels Datenassimilation zum Thema.

Die Datenassimilation spielte im Bereich der Chemie-Transport-Modellierung im Gegensatz zur numerischen Wettervorhersage (NWV) bisher eine untergeordnete Rolle. Dies hat zwei grundlegende Ursachen. Erstens ist die Datenlage wesentlich schlechter als in der Meteorologie. Dies bezieht sich sowohl auf die Verfügbarkeit von Meßdaten und deren Qualität als auch auf die chemischen und physikalischen Eigenschaften der beobachteten Spurenstoffe. Die Untersuchungen in dieser Arbeit unter anderem von Daten von über 430 europäischen Stationen ergeben, daß derzeit nur die Beobachtungen des bodennahen Ozons die Kriterien erfüllen. Zweitens ist das Problem der Repräsentativität chemischer Daten komplexer als für die meteorologischen Größen. In der NWV ist dies hauptsächlich eine Frage der räumlichen Übertragbarkeit der Werte. Die Vergleichbarkeit von Daten atmosphärischer Spurengase hängt auch bei räumlicher Nähe der Meßorte und ähnlichen meteorologischen Bedingungen stark vom chemischen Regime der entsprechenden Luftmassen ab. Es muß somit quantifiziert werden können, inwieweit Messungen und modellierte Daten vergleichbaren Regimen angehören. Dafür wird in dieser Arbeit mit Hilfe der Hauptkomponentenanalyse (PCA) ein Index entwickelt, der das aktuelle Regime bestimmt. Dieser ist sowohl für Meß- als auch für Modelldaten gültig, so daß durch den Vergleich der Maßzahlen für verschiedene Orte — Meßstationen oder Modellgitterpunkte — die gegenwärtige chemische Repräsentativität der Daten füreinander quantifiziert werden kann.

Die Assimilation baut auf analysierten Verteilungen des bodennahen Ozons auf. Nach der Methode der optimalen Interpolation wird ein Verfahren für die Erstellung der Analysen entwickelt. Algorithmen dieser Art nutzen modellierte Daten als Hintergrundfelder und berücksichtigen die Fehler der Meß- und Modelldaten sowie die Repräsentativitätsfehler. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Simulationen mit dem EURAD-CTM (EUropäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell) auf einem europaweiten Gitter und einem Deutschland überdeckenden Nest durchgeführt. Die Auswertungen dieser modellierten und der beobachteten Daten ergeben einen Erwartungswert für die Fehlervarianz der Ozonmessungen von ca.  $50 \text{ ppbv}^2$  und einen um etwa einen Faktor sechs größeren Wert für die Daten aus dem Modell. Die physikalische und chemische Konsistenz der resultierenden Analysen ist insbesondere auf die Wichtung mit dem Maß für die chemische Repräsentativität zurückzuführen. Ein Assimilationsverfahren wird entwickelt, mit dem die Analysen periodisch in das Modell eingebracht werden. Das Resultat ist eine konsistente Anfangsverteilung, mit der eine signifikante Verbesserung der Kurzfristvorhersage für das bodennahe Ozon erreicht wird.

Ein zweiter Schwerpunkt der Arbeit ist zwangsläufig die Diskussion der Evaluierung, da die Methoden und Ergebnisse der Datenassimilation für diesen Zweck übertragbar sind. Zum Beispiel liefern die Untersuchungen der Daten, insbesondere mit der PCA, Informationen über die Messungen und die Meßnetze. Die Repräsentativität von Daten ist das zentrale Problem auch der Evaluierung, dazu ermöglicht die Quantifizierung der aktuellen Regime eine Bewertung der Vergleichbarkeit von Beobachtungen und modellierten Daten. Die Aussagen über das klimatologische Verhalten des Modelles und der Meßdaten sind ein wichtiger Beitrag zur Modellevaluierung, und die Analysen von Schadstoffverteilungen sind u. a. für die Qualitätssicherung von Messungen von Nutzen. Eine parallele Betrachtung beider Problemkreise — Assimilation und Evaluierung — ist für beide Bereiche vorteilhaft.

## Abstract

From the mathematical point of view predicting the state of the atmosphere is an initial value problem; the thorough knowledge of the present state of the atmosphere is necessary for a realistic forecast. This paper aims at providing initial values of atmospheric trace gases for use in chemistry transport models (CTMs) by data assimilation.

This task mainly suffers from two fundamental problems. The first one concerns the availability and quality of the underlying observations. Investigations — besides others of data from more than 430 European sites — were carried out within the frame of this work showing that at present only the observations of ground level ozone concentrations fulfill the desired criteria. The second obstacle is the problem of the representativeness of the data which is much more complex than for meteorological parameters. The comparability of atmospheric trace gas data not only is a question of spatial distances, but also depends on the regime or state of the air masses. It is necessary to quantify how far data — measured or modelled — belong to comparable regimes. For this purpose an index will be developed that is based on a principal component analysis (PCA) quantifying the present regime of measured and modelled data. By comparing the index values determined for different locations — observation sites or model gridpoints — the mutual specific representativeness of the data is measurable.

The proposed data assimilation scheme is based on an optimal interpolation algorithm for the analysis of ground level ozone. This kind of scheme is able to include modelled data as a first guess and to consider errors in the observed and modelled data and also the errors of representativeness. The model applied in the studies is the EURAD-CTM (EUROPEAN Air pollution Dispersion model) of the University of Cologne. The evaluation of modelled and measured data gives an expected error variance for the ozone observations of circa 50  $ppbv^2$  and a value about six times as high for the model. The physical and chemical consistency of the analysed fields is especially achieved by including the measure of representativeness in the calculation of the analysis weights. An assimilation algorithm will be developed where the objective analyses are intermittently assimilated into the model. Consistent initial values are the result which lead to a significant improvement of the forecast skill of the CTM.

A second focus of this paper inevitably is a discussion of model evaluation, since many methods and results from data assimilation are transferable to this topic. Especially investigations with the PCA lead to information on measurements and observation networks. The representativeness of data is a central problem of model evaluation, too. For that purpose the quantification of the current regime allows for an evaluation of the comparability of observations and modelled data. The derived statements on the climatological behaviour of models and measured data are an important contribution to the evaluation of models. In addition, the spatial objective analyses of air pollutants are helpful in terms of quality control of measurements. A parallel view of these areas — assimilation and evaluation — is of great advantage for both of them.

# Kapitel 1

## Einleitung

Das Thema der vorliegenden Arbeit ist die Bestimmung von Anfangsdaten mittels der Assimilation von Messungen atmosphärischer Spurengase in dreidimensionale regionale Chemie-Transportmodelle (CTMs). Laut Duden- und Bertelsmann-Wörterbuch versteht man unter Assimilation eine „Angleichung“, „Verschmelzung“ oder „Überführung“. Hier bezieht sich dies auf die Angleichung einer Modellvorhersage an die tatsächliche Entwicklung des Zustandes der Atmosphäre, wie sie durch Messungen beschrieben wird. Wie bei der Kohlendioxidassimilation in Pflanzen werden Meßdaten in die Modellsimulation überführt. Das Resultat ist ein dreidimensionales Bild der Atmosphäre, eine Analyse, die als Anfangszustand einer Prognose mit einem CTM benutzt werden kann.<sup>1</sup> Wie Bjerknes (1911) bemerkte, ist eine Grundvoraussetzung für eine Prognose die möglichst genaue Kenntnis des aktuellen Zustandes der Atmosphäre. Heutzutage ist es z. B. so, daß man sich durch die Forschung im Bereich der Assimilation am ehesten Fortschritte bei der Verbesserung der Wettervorhersage verspricht (Wergen, 1998), also eine Steigerung der Prognosegüte ohne eine Modifikation des Modelles selbst.

1911 bezeichnete Bjerknes die Vorhersage zukünftiger atmosphärischer Zustände als das „ultimative Problem“ in der Meteorologie. Seit damals ist dies nicht nur das Ziel der Meteorologen sondern u. a. ebenso das der Atmosphärenchemiker und auch von allgemeinem Interesse. Zum Beispiel sieht das geltende Gesetz (die Sommersmogverordnung nach § 40 BImSchG) vor, daß die Bundesländer ein Fahrverbot verhängen können, wenn folgende Bedingungen erfüllt sind: Es müssen mindestens drei Stationen, die mindestens 50 km und maximal 250 km auseinanderliegen, einen Ozonstundenmittelwert von mindestens  $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$  messen. Mindestens zwei der drei Stationen müssen im betreffenden Bundesland liegen (für die Stadtstaaten und das Saarland gelten Ausnahmen). Für den nächsten Tag müssen ähnlich hohe Konzentrationen im Bereich dieser Stationen „erwartet“ werden. Wie die Prognose erfolgt, ist genauso wie die Entscheidung, ob tatsächlich Maßnahmen ergriffen werden, Sache der einzelnen Bundesländer. Für den 12. August 1998 wurde zum ersten Mal ein Fahrverbot nach der Sommersmogverordnung verhängt, da weiträumig Ozonkonzentrationen von über  $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$  erwartet wurden. Für diesen Tag zeigt die Abbildung 1.1 links eine vom Umweltbundesamt (UBA) am 12. August im Internet veröffentlichte Prognose und rechts die am 13. August veröffentlichte Diagnose der maximalen Ozonkonzentrationen über Deutschland. Die Grundlage für beide Bilder sind Werte an den Meßorten der Bundesländer und des UBA. Für die Prognose sind dies mittels einer statistischen Methode (Reimer et al., 1996) vorhergesagte Daten, für die Diagnose sind es Beobachtungen. Eine flächendeckende Ozonverteilung wurde mittels eines einfachen Interpolationsverfahrens erstellt.

<sup>1</sup>Laut Bertelsmann-Wörterbuch ist das Resultat einer Assimilation ein Assimilat, als Beispiel wird Zucker genannt, entsprechend wäre die Analyse als das „Bonbon“ aus Modellvorhersage und Meßwerten zu bezeichnen.

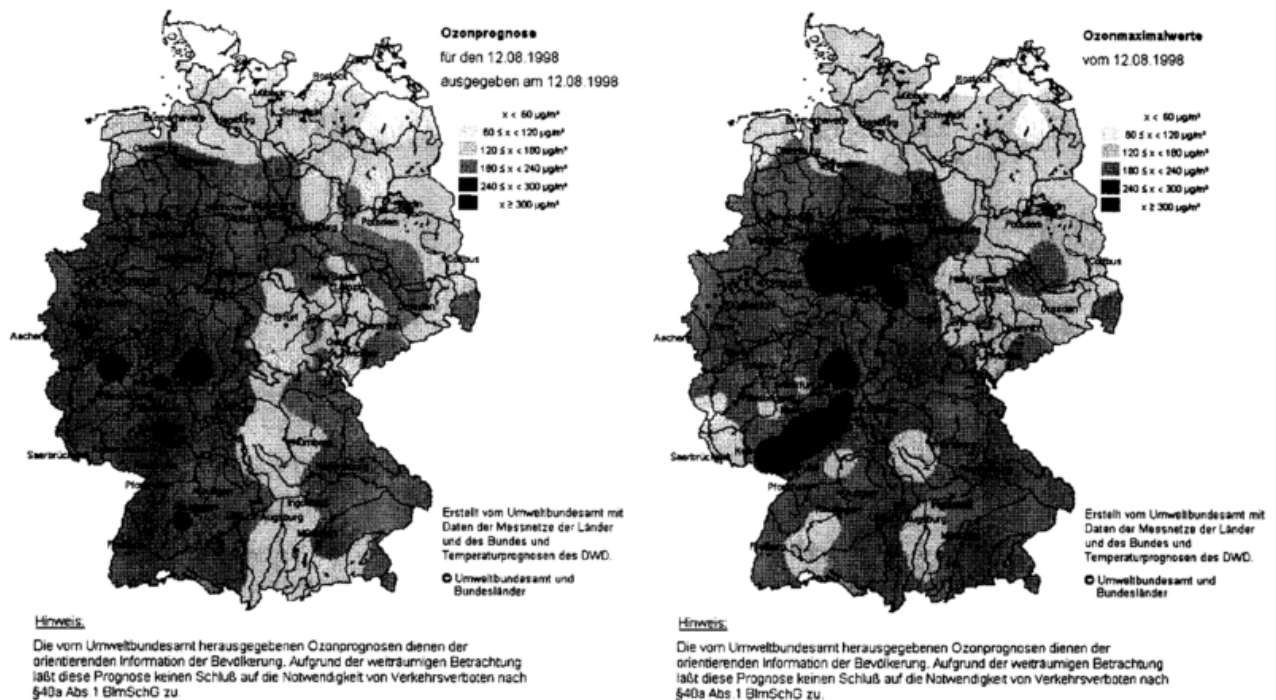


Abbildung 1.1: Ozonprognose (links) und -diagnose (rechts) für den 12. August 1998 herausgegeben vom Umweltbundesamt (Quelle: <http://www.umweltbundesamt.de/cgi-local/ozon-heute.sh> und <http://www.umweltbundesamt.de/cgi-local/ozon-gestern.sh>).

tionsverfahrens von den unregelmäßig verteilten Stationen auf ein reguläres Gitter erstellt.

Das Problem bei punktuellen Ozonmessungen, die in die einfachen Interpolationsverfahren eingehen, ist die Repräsentativität der Daten. Die Werte können über große Distanzen repräsentativ sein, wenn sich das Regime der Luftmassen (etwa ein ländlich geprägter Charakter) nicht ändert. Daten sind aber nur sehr eingeschränkt übertragbar, wenn das Regime nicht übereinstimmt (z. B. auch bei dicht beieinanderliegenden ländlichen und verkehrsnahen Stationen). In Abbildung 1.1 wird deutlich, daß man dem Problem der Repräsentativität mit diesen dort angewandten einfachen Methoden nicht gerecht werden kann. Die fleckenhafte Struktur der dargestellten Karten ist in dieser Beziehung unphysikalisch. Eine flächenhafte physikalisch und chemisch konsistente Darstellung ist nur mit einem regionalen Eulerschen CTM mit einer möglichst vollständigen Behandlung der relevanten Prozesse zu erreichen. Es ist dabei die Aufgabe der Datenassimilation, dafür zu sorgen, daß sich eine Modellsimulation — z. B. aufgrund ungenauer Eingangsdaten, vereinfachter Modellgleichungen oder einer groben Auflösung — nicht zu weit von den tatsächlich gemessenen Daten entfernt.

Die Datenassimilation beschränkt sich somit nicht alleine auf den Algorithmus, der auf eine bestimmte Art Meßdaten interpoliert, vielmehr ist die Problematik wesentlich weitreichender. Vorbedingungen sind z. B. die Überprüfung der Eignung verfügbarer Meßdaten für die Assimilation und die Untersuchung der klimatologischen Eigenschaften von Beobachtungen und Modell. Von großer Wichtigkeit ist die Frage nach der Repräsentativität der Daten. Neben der räumlichen Übertragbarkeit muß auch die chemische Repräsentativität untersucht und quantifiziert werden können. Der nächste Schritt ist die Konstruktion eines Analyseverfahrens, das in der Lage ist, all diese Informationen bei der Erstellung konsistenter Karten der Schadstoffverteilungen zu berücksichtigen. Schließlich muß der Assimilationsalgorithmus sicherstellen können, daß die Assimilation der Analysen verträglich zum Modellverhalten erfolgt. Im Folgenden wird

der Aufbau dieser Arbeit zusammengefaßt, mit dem versucht wird, der Problemstellung der Assimilation atmosphärischer Spurengasmessungen in ein CTM, hier ist es das EURAD-CTM (EUropäisches Ausbreitungs- und Depositionsmodell, Ebel et al., 1997), gerecht zu werden.

Für eine Prognose können nur operationell erhobene Daten bei der Assimilation berücksichtigt werden. Neben der Verfügbarkeit und Qualität der Messungen sind für die Eignung zur Assimilation besonders die chemischen und physikalischen Eigenschaften der Stoffe wichtig. In Kapitel 2 werden Schadstoffmessungen dahingehend diskutiert. Im Rahmen dieser Arbeit wurden für den Zeitraum Juni – August 1994 europaweit Daten von ca. 430 Meßstationen (siehe Anhang A) gesammelt und statistisch ausgewertet. Es zeigt sich, daß zur Zeit nur die Messungen des bodennahen Ozons den Anforderungen der Assimilation zur Modellierung des Sommersmogs entsprechen. Die Zeitreihen der Ozonkonzentrationen von Stationen in Ballungsräumen unterscheiden sich grundsätzlich von solchen, die auf dem Land gemessen wurden, so daß eine Klassifizierung der Meßstandorte notwendig für die statistische Interpretation der Daten ist. Kriterien zur Beschreibung der mittleren Regime, des vorherrschenden Zustandes oder Verschmutzungsgrades der Luft an den Meßstationen, werden dazu in Kapitel 2 entwickelt.

Die Simulation der Sommersmogepisode vom 19. – 31. Juli 1994 (jeweils 00 UTC) mit dem EURAD-Modell erfolgt auf einem europaweiten Gitter (Gitterweite 54 km) und einem Deutschland überdeckenden Nest (Gitterweite 18 km). Eine Beschreibung des Modelles und des simulierten Zeitraumes findet sich in Kapitel 3. Dort wird auch die simulierte Verteilung des bodennahen Ozons diskutiert. Dabei interessiert insbesondere, inwieweit das mittlere Modellverhalten mit den Statistiken der Messungen im Einklang ist, ob eine Vergleichbarkeit der beobachteten mit den simulierten Daten gegeben ist und inwieweit dies von der betrachteten Episode abhängt. Dies sind Voraussetzungen für die Assimilation, um eine Störung des Modellgleichgewichtes durch die Assimilation zu vermeiden.

Diese beiden Kapitel zeigen zweierlei: Erstens sind die Ozonwerte der verschiedenen Regime von unterschiedlicher räumlicher Repräsentativität. Außerdem sind die Regime an Stationen und auch im Modell zeitlich variabel, abhängig z. B. von der meteorologischen Situation oder den Emissionen. In Kapitel 4 wird die Hauptkomponentenanalyse (Preisendorfer, 1988) eingeführt, eine algebraische Methode zur Analyse der Varianzstruktur in Datensätzen mittels empirischer orthogonaler Funktionen. Mit dieser Methodik wird die Vergleichbarkeit und Repräsentativität der verschiedenen Datenarten untersucht. Aus den Ergebnissen wird ein quantitatives Maß zur Beschreibung des aktuellen und klimatologischen Regimes abgeleitet, und es wird gezeigt, daß dieses sowohl für Messungen als auch für Modellwerte gültig ist. Damit wird die quantitative Bestimmung der Vergleichbarkeit von Beobachtungen und Modelldaten ermöglicht. Desweiteren liefern die Untersuchungen wichtige Hinweise über das Modellverhalten sowie die Beobachtungen und die Meßnetze. Die Hauptkomponentenanalyse wird auch für andere gemessene Komponenten angewandt.

Der nächste Schritt in Richtung Datenassimilation ist die Analyse der Daten auf das regelmäßige Modellgitter. Da diese Analysen dem Modell als Anfangsverteilungen dienen sollen, müssen sie soweit wie möglich im Einklang mit den Modellgleichungen sowie dem Modellklima sein. Das Beispiel der Analyse aus Abbildung 1.1 ist aus folgenden Gründen nicht geeignet. Das angewandte Interpolationsverfahren wichtet die Beobachtungen bei der Bestimmung der Werte an den Gitterpunkten nur nach ihrem räumlichen Abstand zum Gitterpunkt, eine Berücksichtigung der chemischen Repräsentativität findet nicht statt. Erkennbar ist dies an den runden Strukturen im Ozonfeld, die oft nur den vorgegebenen Einflußbereich einzelner Stationen markieren. Das ist unphysikalisch, da weder die meteorologischen Strukturen noch die Einflüsse anderer, die Konzentrationen bestimmender Größen (Emissionen, Orographie, etc.) — also das

vorherrschende Regime — berücksichtigt werden. Für die Anwendung als Anfangsdaten des Modelles müssen die Analysen also mit einem ausgereifteren Verfahren bestimmt werden. Dazu bietet sich die statistische oder optimale Interpolation (OI, Daley, 1991) an, die für ähnliche Zwecke in der Meteorologie weit verbreitet ist. Dieses Analyseverfahren berücksichtigt neben den Meßdaten und einem aus vorangegangenen Modellprognosen gewonnenen „Hintergrundfeld“ Informationen über die zu erwartenden Fehler der Beobachtungen und des Modelles. Über lange Zeiträume gemittelt ist das Verfahren optimal, es minimiert die mittleren quadratischen Fehler der Analyse, allerdings nur dann, wenn die nötigen Eingangsgrößen korrekt bestimmt sind — näherungsweise ist dies möglich. In dem in dieser Arbeit entwickelten Verfahren (Kapitel 5) werden die Fehlergrößen der Meß- und Modelldaten statistisch abgeschätzt. Das aus der Hauptkomponentenanalyse bestimmte Maß für das aktuell vorherrschende Ozonregime, die Repräsentativität der Daten, wird in dem Verfahren berücksichtigt, um eine weitgehende chemische und physikalische Konsistenz der Analysen zu gewährleisten.

Die ersten Kapitel dieser Arbeit ermöglichen vielfältige Aussagen über das Modellverhalten des EURAD-CTMs. Dies geschieht nahezu zwangsläufig, denn die Evaluierung eines Modelles verfolgt in diesem Sinne die gleichen Ziele wie die Assimilation, die Eigenschaften der Daten müssen möglichst exakt beschrieben werden können. Ebenso lassen sich die Analysen zu Zwecken der Verifikation nutzen. Aus diesen Gründen faßt Kapitel 6 die bis dahin erzielten Ergebnisse aus dem Blickwinkel der Modellevaluierung zusammen. Für diese Arbeit ist dies wichtig, da ein so umfangreicher Datensatz aus routinemäßig erhobenen Messungen zusammengetragen wurde, neue Ansätze zur Verifizierung der Prognosen müssen gesucht werden.

Das Problem der Anfangs- und Randdaten für Chemie-Transportmodelle wird in Kapitel 7 behandelt. Begonnen wird dies mit der Untersuchung der generellen Einflüsse von Anfangsdaten auf die Prognose. Dazu stehen die Ozonbeobachtungen der Bodenstationen sowie einiger Stationen, die regelmäßig Vertikalprofile mittels Sondenaufstiegen messen, zur Verfügung. Die Simulation einer Episode mit dem CTM geht von einem „Kaltstart“ des Modelles aus, also von klimatologischen Verteilungen der Schadstoffe. Als zweiter Schritt wird ein neues Verfahren (siehe Anhang B) entwickelt, in dem klimatologische Verteilungen an die aktuellen Werte meteorologischer Parameter gekoppelt werden. Im weiteren Verlauf der simulierten Episode werden jeweils Prognosen für 48 Stunden berechnet, die die vorangegangene Vorhersage als Anfangszustand nutzen. Hier ist die eigentliche Aufgabe der Datenassimilation zu sehen, die aus der Verbindung der vorangegangenen Simulation und den aktuellen Beobachtungen neue Anfangsdaten für die nachfolgende Kurzfristvorhersage erstellt. Es wird ein neuer Algorithmus vorgestellt, der auf den in Kapitel 5 beschriebenen Analysen aufbaut. Diese werden mit zusätzlichen aktuellen Informationen über die Dicke der planetaren Grenzschicht in der Vertikalen ausgewertet und dem Modell als Anfangswerte zur Verfügung gestellt. Das Verfahren wird anhand von Sensitivitätsuntersuchungen und Meßdaten auf seinen Einfluß auf die Prognose der bodennahen Ozonverteilung hin untersucht. Es wird gezeigt, daß eine signifikante Verbesserung der Vorhersage erzielt wird.

## Kapitel 2

# Beobachtungen

Gegenstand dieses Kapitels sind die Messungen der Verteilung atmosphärischer Spurengase. Eine möglichst genaue Untersuchung der zugrundeliegenden Daten ist eine wesentliche Vorbedingung für die Assimilation von Beobachtungen und Modelldaten. Dazu gehört die Diskussion der Verfügbarkeit und der Meßunsicherheiten genauso wie die Kenntnis der chemischen und physikalischen Eigenschaften der beobachteten Stoffe und der Repräsentativität der Messungen. Dies alles sind notwendige Informationen, die in die Verfahren zur Analyse und Assimilation einfließen müssen, wenn diese unter realitätsnahen Bedingungen eingesetzt werden sollen.

Es gibt auffällige Parallelen zwischen den Entwicklungen meteorologischer und atmosphärenchemischer Beobachtungen, nur daß die der chemischen Seite eine große zeitliche Verzögerung aufweist.<sup>1</sup> Ein Grund dafür ist, daß — anders als bei meteorologischen Phänomenen — sich die luftchemischen Vorgänge in der Regel der direkten Beobachtung entziehen. Die Effekte lassen sich meist nur indirekt und langfristig nachweisen, während Wetterphänomene zum direkten Erfahrungsschatz gehören. Zum Beispiel wurde das Ozon erst 1840 von Christian Friedrich Schönbein entdeckt und damals für einen dem Chlor oder dem Brom verwandten Stoff gehalten. Schönbein (1840, 1854) gab dem Stoff aufgrund des auffälligen Geruches den Namen Ozon (nach dem Griechischen Wort für „riechen“). Gemessen hat er das Ozon, indem er mit Stärke-Jodid-Lösung gesättigte Papierstreifen der Luft aussetzte. Die Oxidation des Jodids zu Jod führt zu einer charakteristischen Blaufärbung des Papiers, die typisch für den Stärke-Jod-Komplex ist (Warneck, 1988). Die Annahme, daß Ozon wegen seiner desinfizierenden Wirkung auch gut für die Gesundheit sei, machte diese Meßmethode in der Mitte des letzten Jahrhunderts in Europa sehr populär. Erste regelmäßige Ozonmessungen wurden — angefangen von dem Chemiker Albert-Lévy (siehe z. B. Albert-Lévy, 1878) — zwischen 1876 und 1910 am Observatoire de Montsouris in Paris durchgeführt. Diese Meßreihe wurde von Volz und Kley (1988) mit dem Ergebnis evaluiert, daß in Zentraleuropa vor 100 Jahren das Ozonmischungsverhältnis im Mittel ca. 10 *ppbv*, also weniger als die Hälfte des heutigen Wertes, betrug. Eine verlässliche quantitative Meßtechnik, beruhend auf Kaliumjodid, wurde relativ spät entwickelt (Cauer, 1935). Ehmert (1949, 1951) führte eine Methode ein, die den bei der Ozon-Jodid Reaktion in einer elektrochemischen Zelle entstehenden Strom nutzt. Dieses Signal wird verstärkt, und kontinuierliche Meßreihen können aufgenommen werden. Brewer und Milford (1960) übernahmen dieses Konzept und konstruierten daraus eine Ozonsonde, die auch heute noch bei Aufstiegen zur Messung des stratosphärischen Ozons genutzt wird. Querempfindlichkeiten der Kaliumjodid-Methode gegen andere Oxidantien spielen in sauberen Gegenden und der freien

<sup>1</sup>Der größte Unterschied liegt wohl darin, daß die Fortschritte im Bereich der Luftchemie nicht durch militärische Bedürfnisse bedingt waren, sondern durch die Erkenntnis, daß der Mensch so stark in die bestehenden Gleichgewichte eingreift, daß dadurch seine eigene Gesundheit bedroht wird.

Troposphäre nur eine geringe Rolle. Moderne kommerzielle Instrumente bestimmen das Ozonmischungsverhältnis mittels ultravioletter Absorption oder Chemolumineszenz. Diese Geräte sind relativ unempfindlich gegen Interferenzen mit anderen Spurengasen und besitzen einen größeren Meßbereich.

In diesem Zusammenhang eröffnen sich einige Probleme, wenn es um die Vergleichbarkeit von Messungen geht. Einerseits muß die Querempfindlichkeit der Geräte gegen andere Spurengase genau bekannt sein, besonders, da in der Regel Daten vorliegen, die mit unterschiedlichen Methoden ermittelt wurden. Andererseits werden die Schadstoffgehalte üblicherweise als Dichten (z. B. in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) angegeben, u. a. aus dem Grund, daß auch die Schwellwerte, die von offiziellen Stellen, wie der EU oder den Umweltämtern der einzelnen Staaten, festgelegt werden, in eben diesen Einheiten vorliegen. Gemessen werden aber Mischungsverhältnisse (z. B. in *ppbv*)! Es gibt EU-Richtlinien, die zu einer Vereinheitlichung der Daten führen sollen, aber bis zu global konsistenten Datensätzen ist es noch ein weiter Weg.

Im nächsten Abschnitt wird ein Überblick über die gegenwärtigen Meßnetze atmosphärischer Spurenstoffe gegeben. Darauf folgt eine Diskussion möglicher Fehlerquellen, soweit sie sich aus der Sicht des Modellierers noch erschließen lassen. Schließlich soll in den folgenden Abschnitten der Versuch unternommen werden, die für den Zeitraum Juni – August 1994 vorliegenden Messungen von Ozon,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$  und  $\text{SO}_2$  auszuwerten und ihre Verwertbarkeit im Hinblick auf eine Assimilation der Daten zu beurteilen. Das Hauptaugenmerk liegt auf Ozon, da sich herausstellt, daß dessen Eigenschaften und Messungen es für die weiteren Untersuchungen am besten geeignet erscheinen lassen. Eine Klassifizierung der Ozonmeßstationen im Hinblick auf mittlere beobachtete Verläufe der Ozonzeitreihen ist der erste Schritt in Richtung der Beschreibung der Repräsentativität der Daten.

## 2.1 Allgemeine Datenlage

An existing meteorological station in the British Isles has been either an outgrowth from an astronomical or magnetic observatory, or it has adjoined the house of an enthusiast who lived there for reasons unconnected with meteorology, or it has been placed in charge of coastguards because they are on duty at night, or it has been set on a mountain to test the upper air. Excellent practical reasons all these, but it is remarkable that the properties of the atmosphere, which are expressed by its dynamical equations of continuity, appear to have no influence on the selection. (Richardson, 1922, S. 217)

Ähnlich, wie 1922 Richardson, der zu dieser Zeit den ersten Versuch einer numerischen Wettervorhersage (mit „Papier und Bleistift“!) unternahm, die Lage sah, stellt sie sich heute bezüglich der Messungen von Luftschadstoffen dar. Messungen werden mit meist sehr inhomogenen Beobachtungsnetzen durchgeführt, und es gibt viele Gründe, nach denen die Stationen verteilt sind, aber nicht immer sind es die zugrundeliegenden physikalischen Gesetze (oft sind es eher politische Gründe).

Soll etwas über Messungen von Spurengasen gesagt werden, so müssen einige Aspekte angesprochen werden, um abschätzen zu können, inwieweit Daten für die Modellierung zur Verfügung stehen und wie sie am sinnvollsten genutzt werden können:

- was wird gemessen im Hinblick auf die im Modell behandelten Spezies bzw. Stoffklassen;
- wie wird gemessen, dabei interessieren hier weniger die konkreten Methoden als die verschiedenen Arten von Beobachtungssystemen;

- wo wird gemessen im Hinblick auf die horizontale und vertikale räumliche Verteilung der Messungen;
- wann wird gemessen, d. h. wie ist die zeitliche Verteilung der Beobachtungen;
- wer nimmt (warum) die Messungen vor; obwohl dieser Punkt auf den ersten Blick etwas unsachlich scheinen mag, ist er doch von besonderer Wichtigkeit.

Da am Schluß dieses Abschnittes stehen soll, welche Daten im weiteren benutzt werden, muß mit der Diskussion der einzelnen Punkte die Auswahl begründet werden. Man unterscheidet die Beobachtungssysteme danach, ob sie In-Situ- bzw. Punktmessungen sind oder „remote“ bzw. aus der Ferne messen. Mit Punktmessungen sind Messungen gemeint, bei denen das Instrument bzw. das Luftvolumen, aus dem der Wert bestimmt wird, viel kleiner als die Skalen der zu beobachtenden Phänomene sind. In-Situ-Meßgeräte finden sich in Bodenstationen und in Flugzeugen, Schiffen oder auch Bojen und bei Ballonaufstiegen (oder z. B. der Trans-Sibirischen Eisenbahn, Crutzen et al., 1998). Je nach Spezies wird der Meßwert direkt bestimmt oder es werden Luftproben genommen, die später im Labor analysiert werden, was natürlich einen Einfluß auf die Meßhäufigkeit hat.

Aus der Ferne messende Systeme nutzen die variierenden Übertragungseigenschaften der Atmosphäre in bezug auf verschiedene Frequenzen des elektromagnetischen Spektrums und bestimmen Mittelwerte über Flächen oder Volumina, die im Vergleich zu den interessierenden Skalen nicht mehr klein sind. Ein Beispiel sind die Geräte auf Satelliten. Für Messungen troposphärischer Spurengaskonzentrationen ist diese Anwendung noch am Anfang der Entwicklung. Die ersten troposphärischen Beobachtungen werden von dem GOME(Global Ozone Monitoring Experiment)-Sensor, der auf dem Satelliten ERS2 (European Remote Sensing Satellite) montiert ist, seit Anfang 1996 geliefert. Aus der gemessenen wellenlängenabhängigen Strahlungsdichte des von der Erde zurückgestreuten Sonnenlichtes können Ozonprofile mit einer vertikalen Auflösung von 3 – 5 km und einer horizontalen Auflösung von ca.  $40 \times 320 \text{ km}^2$  bei einer Überdeckung der gesamten Erde alle drei Tage (in Anwesenheit von Wolken nur oberhalb von diesen) berechnet werden (Balzer et al., 1996). Für die Simulation von Ozonverteilungen in der unteren Troposphäre sind diese Daten z. Z. noch von untergeordneter Bedeutung, da nur ca. 10 % des atmosphärischen Ozons in der Troposphäre zu finden sind und das ungefähr der Meßunsicherheit entspricht. Auch z. B. mit DIAL(Differential Absorption Lidar)-Geräten kann aus der Ferne gemessen werden. Dabei wird mittels pulsierender Laser-Strahlung zweier verschiedener Wellenlängen, die Absorptionslinien des zu messenden Gases entsprechen, der Partialdruck des Gases bestimmt. Diese Geräte liefern Daten mit hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung, werden aber i. allg. nur zu Kampagnen eingesetzt und sind noch nicht sehr verbreitet. Das heißt also, daß zunächst nur mit in situ vorgenommenen Beobachtungen zu rechnen ist.

Wann wird wo gemessen? Regelmäßige In-Situ-Beobachtungen chemischer Konstituenten werden bis auf wenige meist wöchentliche Ozonaufstiege nur am Boden vorgenommen. In der freien Troposphäre und über den Ozeanen wird gegenwärtig nur sporadisch gemessen. Die übrigen, in der Literatur zugänglichen Daten sind zum größten Teil nicht ausreichend, um allgemeine oder klimatologische Aussagen über die Verteilung von Spurengasen in der freien Troposphäre oder der maritimen Atmosphäre zuzulassen (siehe z. B. Schell, 1996).

Wer nimmt Messungen vor? Die meisten Stationen — zumindest in Deutschland und Österreich — werden von Landesämtern (oder den entsprechenden Stellen in anderen Staaten) vorgenommen. Da der Grund für die Messungen in der Regel in der Verpflichtung der Länder zur Smogüberwachung zu suchen ist, sind die Stationen zum größten Teil in den dicht besiedelten, von Emissionen stark beeinflussten städtischen Regionen aufgestellt. Historisch gesehen lag der Schwerpunkt in der Messung von  $\text{SO}_2$ , der Überwachung des Wintersmogs. Dabei

sind in Deutschland Unterschiede zwischen den einzelnen Bundesländern zu beobachten, auf die in den nächsten Abschnitten noch einzugehen sein wird. Des Weiteren werden eine große Anzahl von Stationen von Bundesbehörden (Umweltämtern oder Wetterdiensten) betrieben. Dabei liegt der Schwerpunkt eher in der Bestrebung, räumlich repräsentative Aussagen über die Luftqualität zu erhalten. Auch die finanzielle Ausstattung der verantwortlichen Stellen hat Auswirkungen auf die Qualität der Messungen (Qualität der Geräte, Personal, Häufigkeit der Kalibrationen, usw.). Da die Überwachung der Luftgüte das Hauptziel offizieller Betreiber von Meßstationen ist, werden an deren Stationen meist nur Ozon, Stickoxide, Schwefeldioxid und eventuell Kohlenmonoxid in stündlicher oder halbstündiger Auflösung gemessen. Für die Anwendungen in dieser Arbeit sind die *CO*-Messungen aufgrund der langen Lebensdauer von *CO* jedoch nur von geringem Interesse. *CO*-Daten liegen zum größten Teil für stark belastete Stationen vor. Die dort beobachteten hohen Konzentrationen sind aber nicht repräsentativ und geben nur qualitative Auskunft über die gesamte lokale Belastung der Luft. Bisweilen wird auch Methan oder die Gesamtmenge an Kohlenwasserstoffen gemessen. Auch diese Daten sind hier nur von untergeordnetem Wert, da besonders Methan eine lange Lebensdauer hat und Angaben über die Kohlenwasserstoffkonzentrationen ohne eine Aufteilung in einzelne Komponenten oder Stoffklassen nur qualitative Aussagen über den allgemeinen Verschmutzungsgrad der Luft zulassen. Zusätzlich dazu gibt es wenige, meist von Forschungsinstituten betriebene Stationen, die darüber hinaus Spezies wie einzelne Kohlenwasserstoffe und zusätzliche Stickstoffkomponenten messen. Einige internationale Programme, wie TOR (Tropospheric Ozone Research) oder EMEP (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long Range Transmission of Air Pollutants in Europe), verwalten Datenbanken, in denen solche Messungen gesammelt und verschiedenen Nutzergruppen zur Verfügung gestellt werden. Nachteile dabei sind, daß zum einen auf die Daten erst nach mehreren Jahren zugegriffen werden kann. Zum anderen sind die Datenbanken zur Zeit noch sehr lückenhaft und eine Qualitätskontrolle findet nicht statt bzw. ist für den Nutzer nur schwer nachvollziehbar.

Die nächste Frage, die sich stellt, ist die nach der Verfügbarkeit der Daten. Die offiziellen Stellen sind gesetzlich verpflichtet, die Daten zu veröffentlichen. Es ist also in der Regel „nur“ eine Frage der Zeit und Geduld, um Zugang zu diesen Daten zu bekommen. Sind wissenschaftliche Institutionen die Betreiber der Meßstationen, ist es meist erst nach einigen Jahren möglich, die Daten zu nutzen, da Auswertungen verständlicherweise zuerst vor Ort vorgenommen werden.

Für die vorliegende Arbeit wurden Daten für den Zeitraum Juni – August 1994 von ca. 440 Stationen gesammelt. Tabelle A.1 listet die Stationen und die gemessenen Spurenstoffe auf. Aus den oben genannten Gründen werden nur die Spezies  $O_3$ ,  $NO$ ,  $NO_2$  und  $SO_2$  betrachtet. Im Anhang A.1 werden auch die verschiedenen Datenquellen genannt. Abbildung 2.1 zeigt als Beispiel die Verteilung der Ozon-Bodenmessungen auf den in dieser Arbeit genutzten Simulationsgebieten.

## 2.2 Fehlerquellen

Modelle haben die Aufgabe, physikalische Phänomene zu simulieren und zwar auf der Basis theoretischer Beziehungen. Der wichtigste Weg, die „Wirklichkeit“, die damit beschrieben werden soll, zu definieren, geht über die Beobachtungen der Wirklichkeit. So ist es nicht möglich zu beurteilen, wie gut oder vollständig ein Modell die Wirklichkeit wiedergibt, ohne abschätzen zu können, wie gut Beobachtungen der Wirklichkeit entsprechen. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, daß der Begriff „Fehler“ hier eine besondere Bedeutung innehat. Er bezieht sich auf eine Wahrheit, die nicht objektiv oder absolut ist (also eigentlich auch nichts mit der gängi-

### Daten von Ozonmessstationen, die für den Zeitraum Juni – August 1994 vorliegen

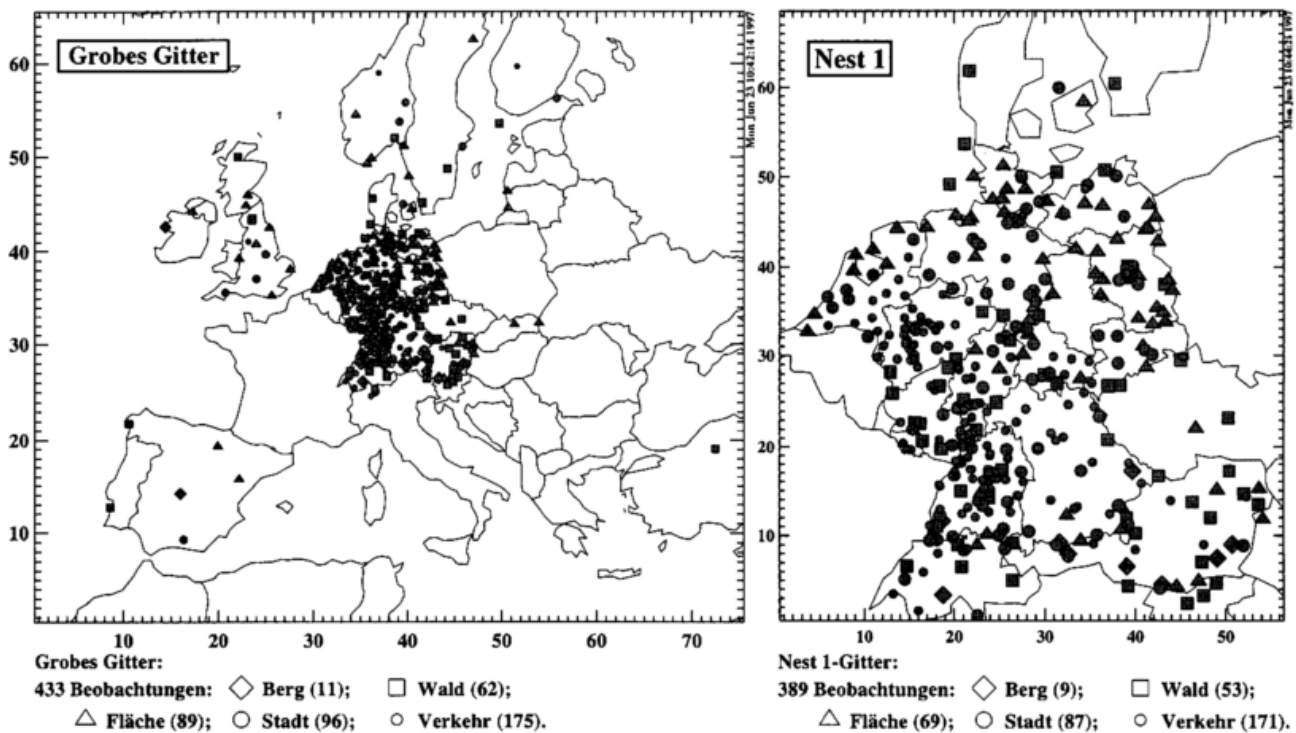


Abbildung 2.1: Stationen, für die für den Zeitraum Juni – August 1994 Ozon-Bodenmessungen vorliegen. Gezeigt ist die Verteilung der Stationen für das grobe und das Nest 1-Gitter (Erklärungen dazu finden sich im folgenden Kapitel). Auf die Klassifizierung der Stationen wird in Abschnitt 2.3 eingegangen.

gen Definition von „Wahrheit“ gemein hat). Im Gegenteil, die Wahrheit oder Wirklichkeit (wie in Kapitel 5 nocheinmal ausgeführt) wird vielmehr abhängig von der aktuellen Aufgabe. Die objektive Analyse untersucht Meßdaten und modellierte Daten, um so eine Verteilung auf einem regelmäßigen Gitter zu erhalten. Es sollen zeitliche und räumliche Mittel so dargestellt werden, daß dabei Effekte, die auf kleinen Skalen stattfinden, unter das Rauschen der Daten fallen — also in gewisser Weise zu den Meßfehlern gehören —, während sie unter einem anderen Blickwinkel durchaus zum Signal zählen würden. Im allgemeinen wurde in der Vergangenheit diesem Aspekt bei dem Vergleich von gemessenen und modellierten Spurenstoffkonzentrationen zu wenig Beachtung geschenkt.

Einige Gedanken, soweit sie für ein Eulersches Ausbreitungsmodell bedeutsam sind, sollen hier dargestellt werden. Bei der Nutzung von Meßdaten hat man sich mit folgenden Fehlerquellen auseinanderzusetzen:

- Bearbeitungsfehler beim Nutzer;
- Instrumentenfehler;
- Systematische Ungenauigkeiten einzelner Meßverfahren;
- Übertragungsfehler auf dem Weg zum Nutzer (nicht nur bei der Übertragung der Meßwerte, sondern auch der nötigen Zusatzinformationen);
- Umrechnung von Einheiten;
- Positionsangaben der Meßstation;
- Zeitangaben für die Messungen;
- Höhenabhängigkeit der Konzentrationen bei „Bodenmessungen“;
- Rauschen in den Daten;

- Repräsentativität der Messungen.

Nun geht es darum zu diskutieren, inwieweit Fehler verhindert, beseitigt oder, falls das nicht möglich ist, quantitativ abgeschätzt werden können.

Bearbeitungsfehler beim Umgang mit den Daten können nur durch weitgehende Automatisierung und Standardisierung der Anwendungen minimiert werden. Ansonsten muß mit häufigem Auftreten dieser Fehlerquelle, die im übrigen völlig unsystematisch in Erscheinung tritt, gerechnet werden. Allerdings können sie, sobald sie auffallen, durch — allerdings ebenso manuelle — Konsistenzprüfungen beseitigt und oft richtiggestellt werden. In der Natur dieser Fehler liegt es, daß sie meist recht gravierend sind und so leicht auffallen.

Bei Instrumentenfehlern muß unterschieden werden. Einerseits gibt es die üblichen Meßunsicherheiten, die abhängig vom Gerät sind und bei jedem Meßwert mit angegeben werden sollten (aber nur selten angegeben sind), so daß sie bei der Verwendung der Daten quantitativ berücksichtigt werden können. Andererseits gibt es Fehler, die durch defekte Geräte, Funktionsstörungen bei Messung oder Aufzeichnung der Daten oder durch ungenau oder zu selten kalibrierte Instrumente entstehen. Solche inkonsistenten Daten sind nicht weiter benutzbar. Ein Beispiel zeigt Abbildung 2.11. Gegen Ende des gezeigten Zeitraumes am 30.07.94 treten an der Station Hunsrück untypische  $NO_2$ -Konzentrationen konstant nahe null auf. Kurze Zeit später (in der Abbildung nicht gezeigt) gibt die Reihe vermehrt Meßausfälle an. Das Gerät scheint offensichtlich schon vor den Ausfällen fehlerhaft gearbeitet zu haben. In diesem Zusammenhang bietet die  $NO$ -Meßreihe der Station Gülzow in Abbildung 2.12 ein weiteres Beispiel. Bis auf einige Anstiege liegt ein nahezu konstanter Meßwert von  $3 \mu g/m^3$  vor. Sporadisch tauchen kleinere Werte auf, es sollte sich somit nicht um eine Meßuntergrenze handeln. Da keine physikalischen Gründe für ein solches Verhalten auf der Hand liegen, sind Zweifel an der Richtigkeit der gesamten Meßreihe angebracht. Ein anderes Beispiel ist die Zeitreihe der Station Schwarzwald.Sued (Kälbelescheuer). Dort fehlte, zumindest im Jahr 1994, die Druckkalibrierung, was bei einer so hoch gelegenen Station (920 m üNN) Fehler von ca. 15% zur Folge hat (Wallasch, pers. Mitteilung, 1997). Solche Konsistenzüberprüfungen sind nur teilweise automatisierbar, auf eine subjektive Prüfung der Meßdaten „von Hand“ kann deshalb vorerst nicht verzichtet werden.

In der Einleitung zu diesem Kapitel wurde bereits auf systematische Ungenauigkeiten der Meßverfahren eingegangen. Bei der Messung der kleinen Größen für Mischungsverhältnisse atmosphärischer Spurengase spielen Querempfindlichkeiten eine große Rolle, besonders da sie teilweise schwer zu entdecken sind. Als Beispiel soll hier die Kaliumjodid-Methode zur Ozonmessung genannt werden. Aufgrund von Querempfindlichkeiten sind die damit erzielten Werte um ca. 8% zu hoch. Diese Zahl ist wiederum abhängig vom Verschmutzungsgrad der Luft. Nach einer EU-Richtlinie (92/72/EWG) sind Ozonwerte bezogen auf die UV-Meßmethode anzugeben, so daß von den mittels der KJ-Methode gemessenen Werten pauschal 8% abgezogen wird. Soweit festzustellen war, daß diese Meßmethode benutzt wurde, ist auch mit den dieser Arbeit zugrundeliegenden Daten so verfahren worden. Für andere Spurenstoffe wird dieser Fehler bedeutend größer und vor allem noch weniger nachvollziehbar sein. Insbesondere sind die Benutzer der Daten auf die (meist fehlenden) Angaben der für die Daten verantwortlichen Stellen angewiesen.

Auch bei der Übertragung der Werte vom Meßgerät bis zum Nutzer bietet eine noch unzureichende Automatisierung genug Möglichkeiten zum Auftreten von Fehlern. Abbildung 2.2<sup>2</sup> enthält ein Beispiel für die vom IFU (Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung)

<sup>2</sup>In allen Abbildungen, die wie diese Zeitreihen über mehrere Tage darstellen, steht der vertikale Balken für den Zeitpunkt 00 UTC des darunter angegebenen Tages.

**Differenzen der Ozonkonzentrationen an der Station Wank  
für verschiedene Datenquellen:  $O_3^{\text{Wank}}(\text{LÜB}) - O_3^{\text{Wank}}(\text{IFU})$  [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] für  
den Zeitraum 19.07. – 30.07.1994**

(der Mittelwert über den Zeitraum Juni – August 1994 beträgt  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ )

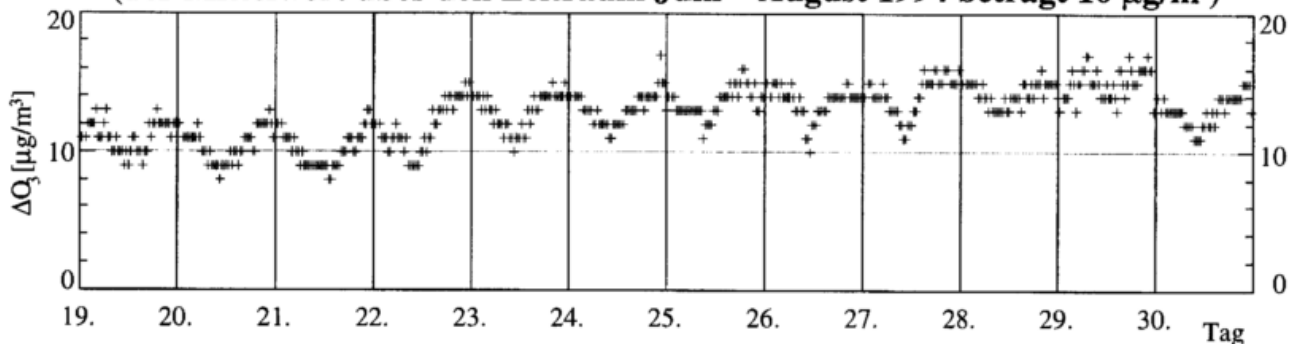


Abbildung 2.2: Ozonkonzentrationen für die Station Wank liegen aus zwei verschiedenen Quellen vor, dem Bayerischen Landesamt für Umweltschutz (LÜB: Lufthygienisches LandesÜberwachungssystem Bayern) und dem IFU (Fraunhofer-Institut für Atmosphärische Umweltforschung), die die Daten erhoben haben. Gezeigt sind die Differenzen beider Meßreihen in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  für den Zeitraum 19. – 30.07.94; die LÜB-Zeitreihe für denselben Zeitraum ist in Abbildung 2.8 zu sehen.

betriebene Station Wank. Diese Meßreihe stand zweimal zur Verfügung, einmal vom IFU sowie als Teil des LÜB (Lufthygienisches LandesÜberwachungssystem Bayern). In der Abbildung sind die Differenzen zwischen beiden Datensätzen gezeigt (Abbildung 2.8 zeigt zum Vergleich die LÜB-Meßreihe selbst). Zuvor wurde allerdings schon ein Fehler beseitigt, der darin bestand, daß die vom LÜB gelieferten Daten angeblich in *MESZ* (MittelEuropäische Sommerzeit) vorliegen sollten, diese aber offensichtlich doch nicht von den ursprünglich in *MEZ* (MittelEuropäische Zeit) angegebenen Messungen umgerechnet worden sind. Über die drei Monate Juni – August 1994 gemittelt, zeigt sich eine systematische absolute Abweichung von  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  zwischen beiden Reihen. Überlagert ist eine systematische relative Abweichung von ca. 2%, die auf die Umrechnung der Einheiten von *ppbv* in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  zurückzuführen ist. Wie bereits gesagt, liegen die Rohdaten (so auch die vom IFU vorliegenden) in *ppbv* vor. Der Umrechnungsfaktor in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  ist proportional zur Temperatur in *K*, wird aber i. allg. konstant gewählt. Für die IFU-Reihe betrug er  $1.96 \text{ ppbv}/(\mu\text{g}/\text{m}^3)$ , für die LÜB-Daten wurde offensichtlich  $2 \text{ ppbv}/(\mu\text{g}/\text{m}^3)$  gewählt. Diese Unsicherheit ist in der Regel noch größer. Bisher wurde als Referenztemperatur oftmals  $0^\circ\text{C}$  benutzt, die besagte EU-Richtlinie schreibt nun eine Referenztemperatur von  $20^\circ\text{C}$  vor, und traditionell wird bei EURAD von  $25^\circ\text{C}$  ausgegangen. Da die Umsetzung solcher Vorschriften nur sehr schleppend vonstatten geht, wurde 1994 teilweise noch der alte Wert zur Umrechnung benutzt, was zu um ca. 7% höheren Ozonkonzentrationen führt. In der vorliegenden Arbeit wurde versucht nachzuvollziehen, welche Referenztemperatur den Messungen zugrunde liegt, und die Daten weitestgehend zu vereinheitlichen. Da im CTM mit Mischungsverhältnissen gerechnet wird, mußten die Werte wieder in *ppbv* zurückgerechnet werden.

Die Art der Einheitenumrechnung ist ein Beispiel für Zusatzinformationen, die mit den Daten mitgeliefert werden müßten. In dieser Beziehung sind die Daten von EMEP sicherlich die Vollständigsten. Aber laut Hjellbrekke (pers. Mitteilung, 1996) fehlen auch dort viele Informationen, da diese nicht bekannt oder fehlerhaft sind. Ein weiteres Beispiel ist die Angabe einer Meßuntergrenze, die i. allg. bei jeder Datenquelle anders sein kann. In Nordrhein-Westfalen ist sie bei vielen Stationen für verschiedene Konstituenten z. B.  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . In Abbildung 2.18 ist die  $\text{SO}_2$ -Meßreihe der Station Soest zu sehen. Der niedrigste auftretende Wert beträgt  $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , der

zweitniedrigste  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , höhere Werte sind dagegen besser aufgelöst. Ähnliches tritt auch für die anderen Spurenstoffe auf. Da aber Konzentrationen in dieser Größenordnung für  $\text{SO}_2$  oder  $\text{NO}$  bzw.  $\text{NO}_2$  durchaus normal sind (siehe die entsprechenden Abbildungen in den folgenden Abschnitten), ist die Verwertbarkeit solch ungenauer Daten stark eingeschränkt. Insbesondere zeigt sich, daß das Fehlen der nötigen Zusatzinformationen den Wert der Daten stark beeinträchtigt.

Neben dem Meßwert und seinen möglichen Unsicherheiten ist es ebenso wichtig, die genaue zeitliche und räumliche Lage des Meßpunktes zu kennen. Für dreidimensionale Modelle ist eine genaue Kenntnis der geographischen Lage der Station für einen Vergleich modellierter und gemessener Daten unumgänglich. Allerdings sind die Angaben der Meßnetzbetreiber teilweise recht grob. In Gauß-Krüger-Koordinaten ist eine Positionsangabe mit einer Genauigkeit von  $1 \text{ km}$  keine Seltenheit, und in geographischen Koordinaten ist es üblich, Angaben auf eine Bogenminute genau zu machen. Dies entspricht einer maximalen Unsicherheit von ca.  $1.9 \text{ km}$ . Für die vorliegende Arbeit ist diese vernachlässigbar. Aber für zukünftige Anwendungen bei Auflösungen im  $\text{km}$ -Bereich und feiner sind genauere Angaben notwendig.

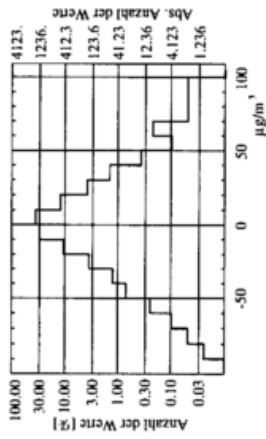
Im gegenwärtigen Fall bedeutender sind Unsicherheiten in der Bestimmung des Zeitpunktes, für den die Messung repräsentativ ist. Da die modernen Geräte mehr oder weniger kontinuierlich messen, sind die in halbstündiger oder stündlicher Auflösung vorliegenden Daten zeitlich gemittelt. Allerdings existiert keine einheitliche Regelung (noch ist es für die Nutzer immer nachvollziehbar), wie das Zeitfenster, in dem die Mittelung erfolgt, über dem mit den Meßwerten angegebenen Zeitpunkt liegt. Also ist z. B. der mit 0:30 Uhr angegebene Wert das Mittel des Intervalls 0:00 – 0:30, 0:15 – 0:45 oder 0:30 – 1:00? In der Praxis tauchen sämtliche Variationen auf. Zusammen mit der Unsicherheit der Bezugszeitzone sind Fehler in der Zeitangabe von einer Stunde durchaus vorstellbar. Um den daraus in den Konzentrationen resultierenden Fehler abschätzen zu können, sind für Abbildung 2.3 am Beispiel der Station Neubrandenburg Differenzen der ursprünglichen und der um eine bzw. eine halbe Stunde verschobenen Zeitreihe dargestellt. Es zeigt sich, daß dabei große Unterschiede auftreten. Die von Modellen angegebenen Werte sind in der Regel keine zeitlichen Mittel sondern Werte, die das Modell für einen bestimmten Zeitpunkt vorhersagt. Dazu ist in Abbildung 2.3 (unten) der Fehler dargestellt, der durch zeitliche Interpolation entsteht. Gezeigt sind die Differenzen zwischen zeitlich interpolierten Stundenmitteln und den Originaldaten (Halbstundenmitteln zu den entsprechenden Zeiten). Dies dürfte für den Fehler Stundenmittel minus nicht gemittelter Wert vergleichbar sein, wenn man zeitlich subskalige Fluktuationen vernachlässigt. Der Fehler ist im Vergleich mit der darüber gezeigten Unsicherheit klein.

Für dreidimensionale Modelle spielt die Vertikale eine besondere Rolle. Insbesondere besteht große Unsicherheit, wie die vertikalen Variationen in bezug auf die Vergleichbarkeit zwischen simulierten Werten und Meßdaten einzuschätzen sind. Die eine Seite des Problems ist die Differenz zwischen Modelltopographie und der tatsächlichen Geländehöhe. Nicht nur, daß an den Gitterpunkten eine gemittelte Höhe angenommen wird — wobei noch nicht einmal die Art der Mittelung unumstritten ist —, sondern aufgrund numerischer Anforderungen werden z. B. Gebirgszüge im Modell nur sehr geglättet repräsentiert. Dadurch können in Bodennähe im Modell physikalisch andere Verhältnisse vorherrschen als in der Realität. Während also der Modellwert an einem Gitterpunkt einer Konzentration innerhalb der planetaren Grenzschicht entspricht, kann der Meßwert einer Bergstation die freie Troposphäre repräsentieren und müßte deshalb mit dem Modellwert einer höheren Schicht verglichen werden. Dabei können die unterschiedlichen Verhältnisse von der Tageszeit und der allgemeinen meteorologischen Situation abhängen. Die andere Seite der Schwierigkeiten in bezug auf die Vertikale ist die Zuordnung eines Wertes zu

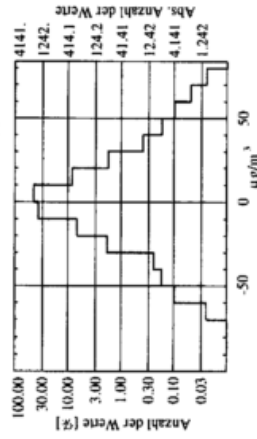
**Station: Mecklenburg-Vorpommern/Neubrandenburg; Differenzen von Ozonkonzentrationen**

**Häufigkeitsverteilung der Ozondifferenzen für die Episode 19.07. – 30.07.1994**  
**Juni – August 1994**

**Halbstundenwerte, zeitlich um eine Stunde gegeneinander verschoben.**



**Halbstundenwerte, zeitlich um eine halbe Stunde gegeneinander verschoben.**



**Differenzen von Original-Halbstundenwerten und interpolierten Stundenmitteln.**

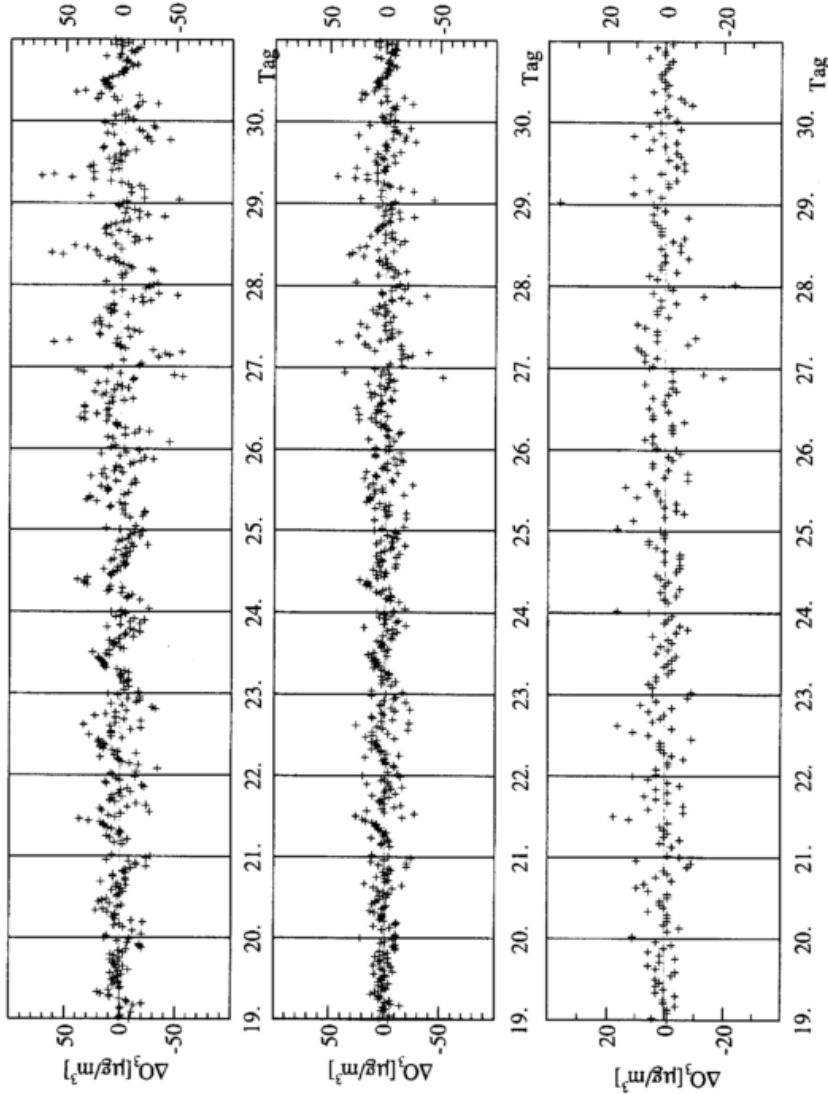
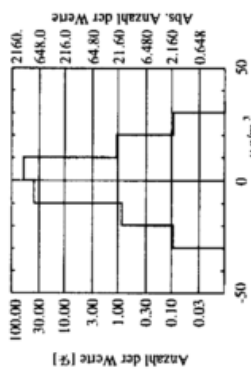


Abbildung 2.3: Fehler in den Ozonkonzentrationen, die durch ungenaue Zeitangaben entstehen können. Dazu ist die Meßreihe der Station Neubrandenburg um eine Stunde (oben) bzw. eine halbe Stunde (Mitte) zeitlich verschoben und von den ursprünglichen Daten subtrahiert worden. Unten ist die Differenz zwischen interpolierten Stundenmitteln und den Originaldaten zu den entsprechenden Zeitpunkten dargestellt. Die Einheit ist  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

### Differenzen der gemessenen Ozonmischungsverhältnisse an der Station Berlin/Grünwald: $O_3(25\text{ m ü. Grund}) - O_3(3.5\text{ m ü. Grund})$

Angaben für Juni – August 1994:

Min. = -15. [ppb]; Max. = 53. [ppb];

Mittelwert = 5. [ppb]; Median = 4. [ppb].

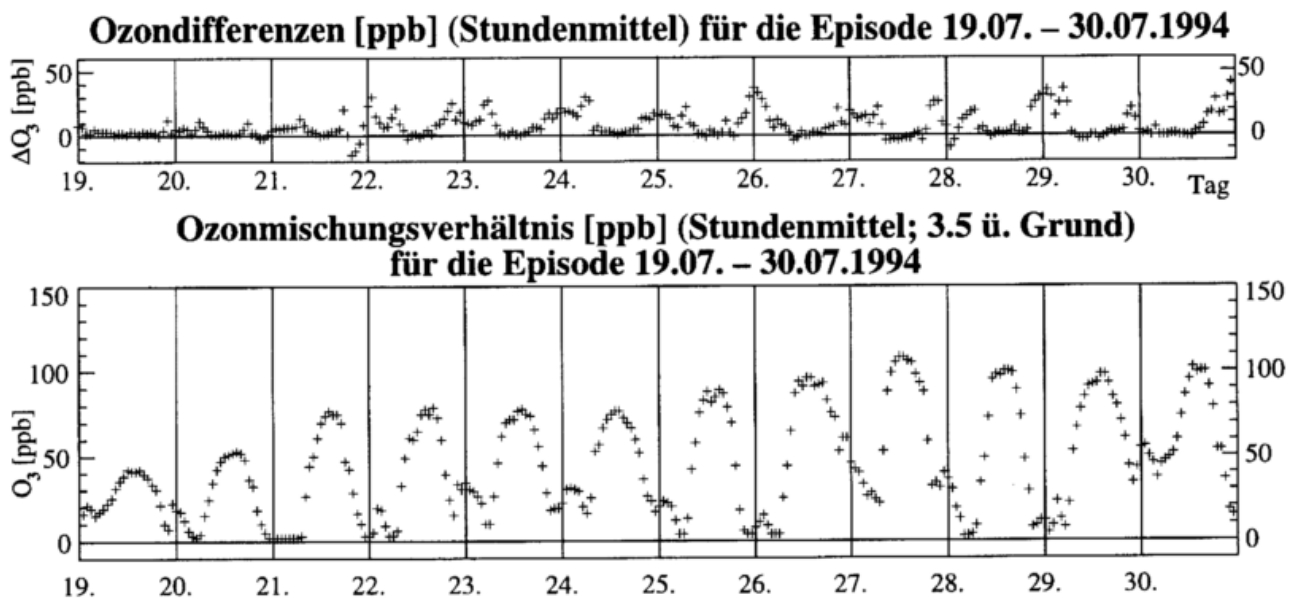
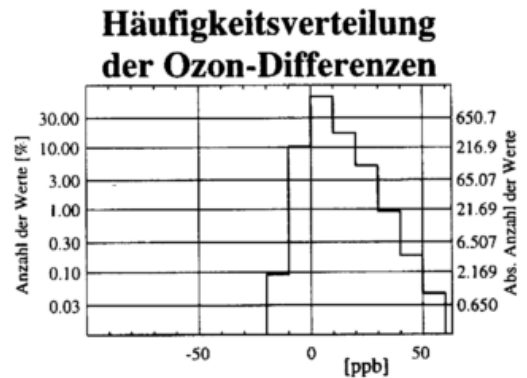


Abbildung 2.4: Ozonmischungsverhältnisse für die Station Grünwald liegen aus zwei verschiedenen Höhen vor (25 m bzw. 3.5 m über Grund). Gezeigt sind die Differenzen beider Meßreihen und die 3.5 m über Grund gemessenen Mischungsverhältnisse in *ppbv* (Ausfälle sind als Werte kleiner null dargestellt) für den Zeitraum 19. – 30.07.94 und einige Angaben für den gesamten vorliegenden Zeitraum Juni – August 1994.

einer bestimmten Höhe über Grund. Zwar gibt es Standardmeßhöhen über Grund, aber diese sind uneinheitlich bzw. werden nicht konsequent durchgesetzt. Beispielsweise sind für die EMEP-Daten Höhen zwischen 0 m und 8 m über Grund angegeben. Die Meßhöhe über Grund gehört auch zu den Zusatzinformationen, die den Daten oft fehlen. An der Station Grünwald wird Ozon in zwei unterschiedlichen Höhen gemessen, 25 m und 3.5 m über dem Boden. Die Differenz beider Meßreihen ist in Abbildung 2.4 zu sehen (zu beachten ist, daß die ursprünglichen Halbstundenwerte nur jeweils abwechselnd für beide Meßpunkte vorlagen, der Vergleich also nur nach einer zeitlichen Verschiebung der beiden Reihen gegeneinander möglich war). Es zeigt sich eine systematische Abweichung. Die Werte des unteren Meßpunktes sind nachts deutlich niedriger, was auf trockene Deposition zurückzuführen ist. Tagsüber ist die Grenzschicht gut durchmischt, und die Werte für beide Höhen stimmen gut überein. Dies muß im Vergleich mit simulierten Daten, die Mittelwerten über unterschiedlich dicke vertikale Schichten entsprechen, berücksichtigt werden.

Ein weiterer Punkt in der Diskussion der Meßunsicherheiten ist das zeitliche und räumliche Rauschen in den Daten. In Abbildung 2.5 sieht man anhand der Ozon-Messungen an der Sta-

### Ozon-Halbstundenmittel [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] gemessen an der Station Nordrhein-Westfalen/ Essen.Bredenezy für die Episode 19.07 – 30.07.1994

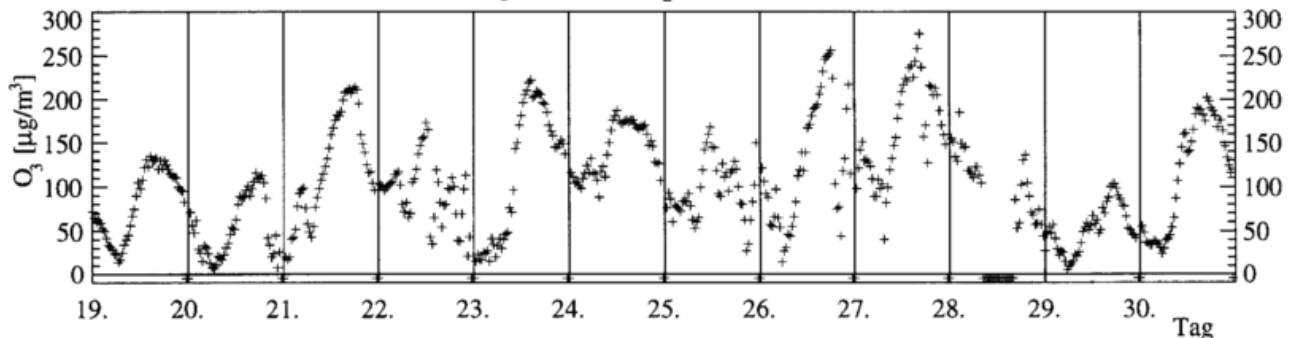


Abbildung 2.5: Ozonkonzentrationen gemessen an der Station Essen-Bredenezy für den Zeitraum 19. – 30.07.94 (in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ; Meßausfälle sind als Werte kleiner null angezeigt).

tion Essen-Bredenezy<sup>3</sup> ein Beispiel für starke zeitliche Fluktuationen in den Beobachtungen und die Zeitabhängigkeit dieser Fluktuationen. An einigen Tagen, wie dem 25.07.94, werden Schwankungen gemessen, die vom Modell nicht wiederzugeben sind. Zurückzuführen sind diese — wenn nicht auf fehlerhafte Instrumente — auf sehr lokal begrenzte Besonderheiten, wie die Nähe zu Emissionsquellen, die Landnutzung in der Umgebung oder spezielle meteorologische Bedingungen. Daten mit solch großen zeitlichen Variationen können hier nicht benutzt werden und müssen mittels geeigneter Algorithmen oder „von Hand“ herausgefiltert werden.

Das Problem des räumlichen Rauschens oder der Repräsentativität einzelner Standorte ist in Abbildung 2.6 verdeutlicht. Dort werden gemessene Tagesgänge für den 25.07.94 von acht verschiedenen Stationen gezeigt, die maximal 64 km (der Auflösung des groben Gitters entsprechend) voneinander entfernt liegen. Darunter sind Stationen, die unter völlig verschiedenen Einflüssen — von stark städtischen bis zu ländlichen — stehen. Für ein grobes Modellgitter sind dies subskalige und damit nicht auflösbare Unterschiede. Die Frage ist, welches Regime repräsentativ für einen bestimmten Gitterpunkt ist oder welche der gezeigten Kurven modelliert werden kann oder soll. Die nötigen Informationen dazu können nur aus der Untersuchung langer Zeitreihen modellierter und gemessener Daten, also klimatologischer Betrachtungen, gewonnen werden.

Die genannten Beispiele zeigen zusammengefaßt, daß man mit unterschiedlich großen Fehlern in den Beobachtungen rechnen muß. Diese treten systematisch oder zufällig oder räumlich oder zeitlich korreliert oder abhängig von der meteorologischen Situation und der Vorgeschichte der verschiedenen Luftmassen auf. Insbesondere wenn Messungen zur Datenassimilation benutzt werden sollen, sind umfangreiche Kontrollmechanismen notwendig, ähnlich den in der Meteorologie verwendeten Algorithmen zur Qualitätskontrolle (siehe z. B. Gandin, 1988). Dabei sind die Ergebnisse von Analysen sensitiv gegenüber den benutzten Kontrollmethoden (Hollingsworth et al., 1986). Mit Hilfe von modellierten Daten ist es möglich, die Konsistenz von Beobachtungen zu prüfen und zur Qualitätskontrolle oder der sinnvollen Gestaltung von Meßnetzen beizutragen. Sinnvoll nicht nur im Hinblick auf die Überprüfbarkeit von Modellergebnissen, sondern auch um den Aufgaben entsprechend optimierte Meßnetze zu entwerfen. Einige Ansatzpunkte dazu werden im weiteren Verlauf dieser Arbeit aufgezeigt.

<sup>3</sup>Die Station Essen-Bredenezy befindet sich im dichtbesiedelten Ruhrgebiet in einem Waldgebiet in der Nähe einer Autobahn, und, Gerüchten zufolge, zeigen die Aufzeichnungen des in der Nähe des Parkplatzes des Landesumweltamtes Nordrhein-Westfalen postierten Ozonmeßgerätes Signale, die sehr gut mit Beginn und Ende der dortigen Arbeitszeiten korrelieren.

**Gemessene Ozon-Tagesgänge  
vom 25.07.1994 (maximaler  
Abstand der Stationen: ca. 65 km)**

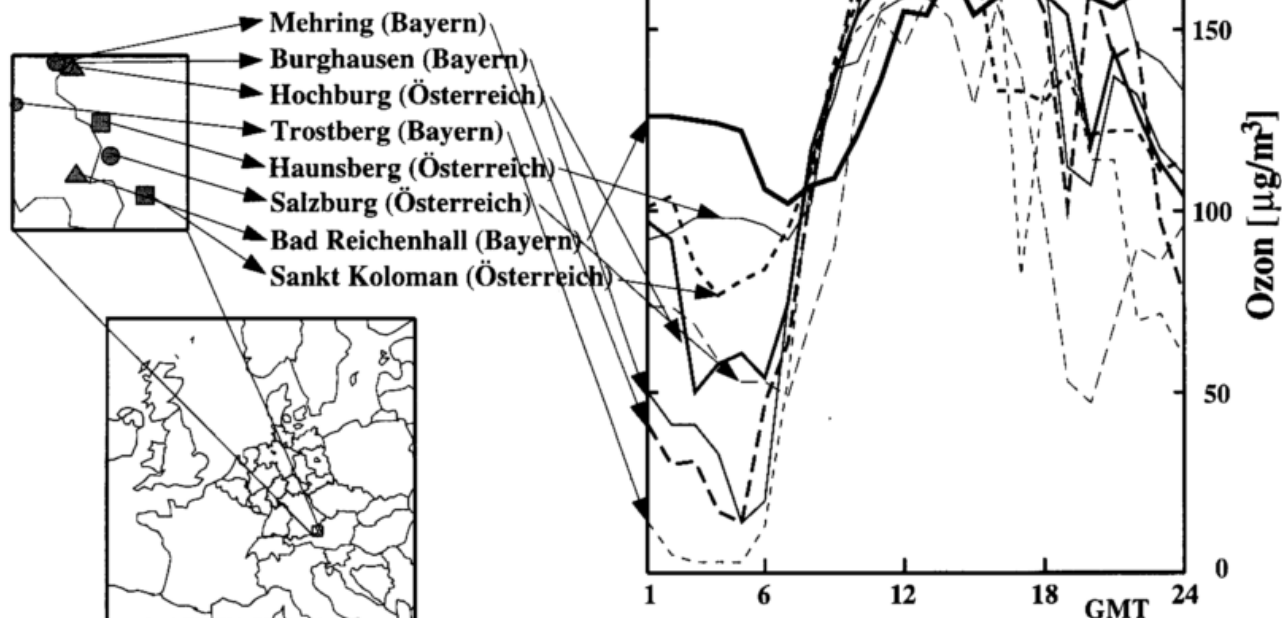
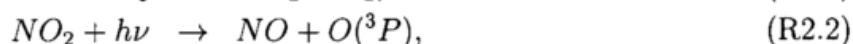


Abbildung 2.6: Ozon-Tagesgänge für den 25.07.94; gemessen an verschiedenen dicht beieinanderliegenden Stationen (in  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

### 2.3 Auswertung und Interpretation von Ozon-Bodendaten

Ozon ist der einzige sekundäre Schadstoff, der an einer größeren Zahl von Stationen kontinuierlich gemessen wird. Für diese Arbeit liegen für den Zeitraum Juni – August 1994 Messungen von über 400 Bodenstationen vor. In diesem Abschnitt wird nun mit Hilfe der Daten eine Klassifizierung verschiedener typischer Regime für eine Charakterisierung des chemischen Zustandes der Luft entwickelt. Es soll nur insoweit auf chemische oder physikalische Zusammenhänge eingegangen werden, als nötig ist, um die aus den Daten abgeleiteten Kriterien auch theoretisch plausibel zu machen. Des weiteren wird anhand von Korrelationsanalysen untersucht, welche in den Daten enthaltenen Informationen geeignet sind, zu einer Validierung des Modelles oder zur Datenassimilation herangezogen zu werden. Es sei betont, daß die getroffenen Aussagen nur aus den vorliegenden Daten abgeleitet werden. Das heißt, sie beziehen sich nur auf Daten aus drei Sommermonaten. Aufgrund der Menge der Daten kann den Resultaten trotzdem eine gewisse Aussagekraft — zumindest für die sommerliche Jahreszeit — zugestanden werden.

Für die Ozonkonzentration ist das photostationäre Gleichgewicht des Ozons mit  $\text{NO}$  und  $\text{NO}_2$  wichtig



Üblicherweise stellt sich dieses Gleichgewicht innerhalb von Minuten ein. Die Reaktion R2.3 ist der einzige signifikante Produktionsmechanismus für Ozon. Die Konzentration von Ozon ist somit stark abhängig von der vorhandenen Menge an Stickoxiden. Zusätzlich spielen die meist

kurzlebigen flüchtigen Kohlenwasserstoffe (VOC: Volatile Organic Compounds; ohne Methan) eine Rolle. Sie greifen in das Gleichgewicht ein, z. B. indem die Reaktionen von Peroxiradikalen mit  $NO$  eine weitere Quelle für  $NO_2$  anstelle von Reaktion R2.1 bilden. Dies verschiebt das Gleichgewicht und resultiert in einer Nettoproduktion von Ozon. Für eine Darstellung der troposphärischen Ozonchemie sei auf die gängige Literatur verwiesen (z. B. Finlayson-Pitts und Pitts, 1986, Seinfeld, 1986, Warneck, 1988, einen kurzen Überblick vermittelt Schell, 1996).

Somit ist die Ozonbildung am Boden zum größten Teil abhängig von den Konzentrationen von  $NO$  und  $NO_2$  einerseits und andererseits von den Konzentrationen und der Zusammensetzung der VOCs. Diese Vorläufersubstanzen sind hauptsächlich auf anthropogene Emissionen der Industrie und aus dem Straßenverkehr zurückzuführen. Für eine erste Charakterisierung von Luftmassen anhand der beobachteten Konzentrationen wäre also die Untersuchung hilfreich, ob ein Einfluß von anthropogenen Emissionen festzustellen ist oder nicht. Im dicht besiedelten Europa findet man nur wenige von anthropogenen Emissionen völlig unbeeinflusste Stationen. Diese befinden sich meistens auf Bergen und sind deshalb, wie im vorigen Abschnitt gesagt, eher repräsentativ für Luft der freien Troposphäre. Solch ein Regime wird in der Literatur als „remote“ bezeichnet. Die Namensgebung der Regime oder Stationstypen ist i. allg. recht willkürlich und uneinheitlich. Nichtsdestoweniger müssen die Klassen irgendwie benannt werden. Sinnvollerweise sollen also Stationen, deren vorherrschendes Regime „remote“ ist, „Bergstationen“ genannt werden.<sup>4</sup>

Ein weiteres Regime ist das ländliche oder „rural“ (oder, wieder aufgrund des dort häufigen Auftretens, als „Wald“ bezeichnet). Es ist gekennzeichnet durch niedrige Werte von  $NO$  und  $NO_2$ . Man spricht von „gealterter“ Luft, da die für „frische“ Emissionen charakteristischen hohen Konzentrationen dieser Stoffe bereits abgebaut wurden. Zusammen sind beide bisher genannten Regime typisch für das, was man üblicherweise als „saubere Luft“ bezeichnet.

Die restlichen Klassen, die hier eingeführt werden sollen, sind sämtlich beeinflusst von frischen Emissionen und daher nicht mehr als sauber zu bezeichnen. Die weitere Unterteilung orientiert sich am Grad des Einflusses der Stickoxide und der räumlichen Repräsentativität. Flächenstationen („suburban“) stehen unter dem Einfluß von städtischen (oder frischen) Emissionen, sind aber trotzdem repräsentativ für größere Gebiete. Diese Klasse bildet den Übergang von der Reinluft zur verschmutzten Luft. Als städtisch (oder „urban“) wird das nächste Regime bezeichnet, es zeigt einen starken Einfluß von Emissionen. Schließlich das Regime „Verkehr“ (oder „traffic“), das in nächster Nähe zu starken Emissionsquellen, wie z. B. vielbefahrenen Straßenkreuzungen, vorherrscht. An dieser Stelle sei betont, daß die Einteilung auf der Sichtung der Daten beruht. Man kann also davon ausgehen, daß man das beobachtete Verhalten der Ozonkonzentrationen zum größten Teil einer dieser fünf Klassen zuweisen kann. Es bleibt, jetzt Kriterien chemisch oder physikalisch genauer („objektiver“) festzulegen und zu begründen. In Abbildung 2.7 sind die Klassen zusammenfassend definiert, und Abbildung 2.8 zeigt typische Beispiele für die verschiedenen Regime.

Das wichtigste Kriterium zur Einteilung der Regime ist die Form des Tagesganges der Ozonkonzentration. Die Nähe zu Emissionsquellen hat — aufgrund der höheren  $NO$ -Konzentrationen — einen sehr großen Einfluß auf den Ozontagesgang. Aufgrund des fehlenden Sonnenlichtes findet Reaktion R2.2 nachts nicht statt, und Ozon wird so lange abgebaut, bis sämtliches  $NO$  in  $NO_2$  umgewandelt oder kein Ozon mehr vorhanden ist. Für Verkehrsstationen ist deshalb typisch, daß nachts die Ozonkonzentration schnell auf null sinkt. Dieser Effekt spielt für städtische und

<sup>4</sup>Es ist anzunehmen, daß auch über weiten Bereichen der Ozeane das Regime „remote“ ist. Da von dort aber keine Messungen vorliegen und auch Stationen auf Inseln immer Landeinflüsse zeigen, kann das nur anhand von Modellergebnissen untersucht werden. Es sei also auf die folgenden Kapitel verwiesen.









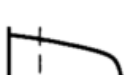

Typ			Charakterisierung	Kriterien			
				Anteil niedriger Werte	Form der Häufigkeitsverteilung	Tagesgänge/ Tagesmittelwerte	
Reinluft	remote (Berg)	b	unbeeinflusst von Emissionen	alle Werte $>40 \mu\text{g}/\text{m}^3$		kaum Tagesgänge; sehr hohe Mittelwerte	
	rural (Wald)	w	Einfluß transportierter, gealterter Emissionen	alle Werte ( $> 99\%$ ) $>10 \mu\text{g}/\text{m}^3$		leichte Tagesgänge; hohe Mittelwerte; evtl. „verspätete“ Maxima	
von „frischen“ Emissionen beeinflusst	suburban (Fläche)	f	repräsentativ trotz Einfluß von Emissionen	nur $\sim 1-3\%$ $<10 \mu\text{g}/\text{m}^3$		mittlere Tagesgänge und Mittelwerte	
	urban (Stadt)	s	starker Einfluß von Emissionen	$\sim 5\%$ $<10 \mu\text{g}/\text{m}^3$		ausgeprägte Tagesgänge; niedrige Mittelwerte	
	traffic (Verkehr)	v	sehr starker Einfluß lokaler, meist verkehrsbedingter Emissionen	$\sim > 7\%$ $<10 \mu\text{g}/\text{m}^3$		sehr starke Tagesgänge; niedrige Mittelwerte	

Abbildung 2.7: Definition verschiedener Regime für eine Charakterisierung der Meßstandorte anhand der Ozonmessungen. Siehe auch Abbildung 2.8 mit Beispielen für die verschiedenen Typen.

noch weniger für Flächenstationen eine geringere Rolle. Aufgrund der nahezu verschwindenden Konzentrationen von *NO* ist es deshalb typisch für Reinluftstationen, daß keine niedrigen Werte der Ozonkonzentration auftreten. Diese hohen Werte entsprechen nicht dem „natürlichen Hintergrund“ (siehe z. B. Volz und Kley, 1988). Nahezu der gesamte europäische „Hintergrund“ ist bereits durch anthropogene Einflüsse angehoben.

Der weitere Verlauf des Ozontagesganges ist durch einen raschen Anstieg der Konzentration gekennzeichnet. Bevor die Photochemie einsetzt, kann ein erster Anstieg auf eine Durchmischung der untersten Luftschichten bedingt durch das Anwachsen der planetaren Grenzschicht zurückgeführt werden. Da nachts die Durchmischung der Luft aufgrund der stabilen Schichtung fehlt, beschränkt sich der Abfall der Ozonkonzentrationen auf die Bodennähe, während sich in den darüberliegenden Luftschichten die Ozonwerte weniger verändern. Die photochemische Produktion bewirkt das weitere Ansteigen der Ozonkonzentration in der Nähe der Emissionsquellen, bis gegen ca. 16 Uhr Ortszeit das Maximum erreicht wird. Je sauberer die Luft oder je ländlicher das Regime, desto größer ist der Einfluß des Transportes von Luftmassen auf die Konzentration von Ozon vor Ort, da in der gealterten Luft chemische Umwandlungen eine geringere Rolle spielen. So findet man bei Waldstationen häufig ein verspätetes, auf den Transport zurückführbares Tagesmaximum. Bei den von Emissionen unbeeinflussten Bergstationen fehlt das typische Maximum. Zusammenfassend gilt: je ausgeprägter der Tagesgang der Ozonkonzentration ist, desto größer ist der Einfluß der Emissionen.

Damit zusammenhängend gilt, je größer der Mittelwert der Ozonkonzentration, desto „reiner“ ist die Luft. Andererseits steigt der Tagesmittelwert während einer Sommersmogepisode — auch an ländlichen Stationen und teilweise sogar an Bergstationen — mehr oder weniger kontinuierlich. Das gleiche gilt für die Tagesmaxima von Ozon. Allgemein hängen sie von der großräumi-

**Ozon-Halbstundenmittel [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]  
für die Episode 19.07. – 30.07.1994**

**Häufigkeitsverteilung  
der Ozon-Messwerte**

**Station/Ozonstatistik  
für Juni – August 1994**

**Stations-  
typ**

**Hessen/Viernheim**  
Max. = 295.0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 0.63 %;  
Mittelwert = 72.2; Median = 63.0;  
Standardabweichung = 58.9

**Niedersachsen/Rinteln**  
Max. = 223.0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 7.26 %;  
Mittelwert = 64.7; Median = 58.0;  
Standardabweichung = 37.9

**Brandenburg/Premnitz**  
Max. = 279.0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 1.92 %;  
Mittelwert = 99.1; Median = 90.0;  
Standardabweichung = 47.1

**Rheinland-Pfalz/Hunsrueck**  
Max. = 222.0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 5.07 %;  
Mittelwert = 98.5; Median = 93.0;  
Standardabweichung = 37.5

**Bayern/Garmisch-P. Wank**  
Max. = 206.0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 2.21 %;  
Mittelwert = 126.; Median = 129.;  
Standardabweichung = 27.3

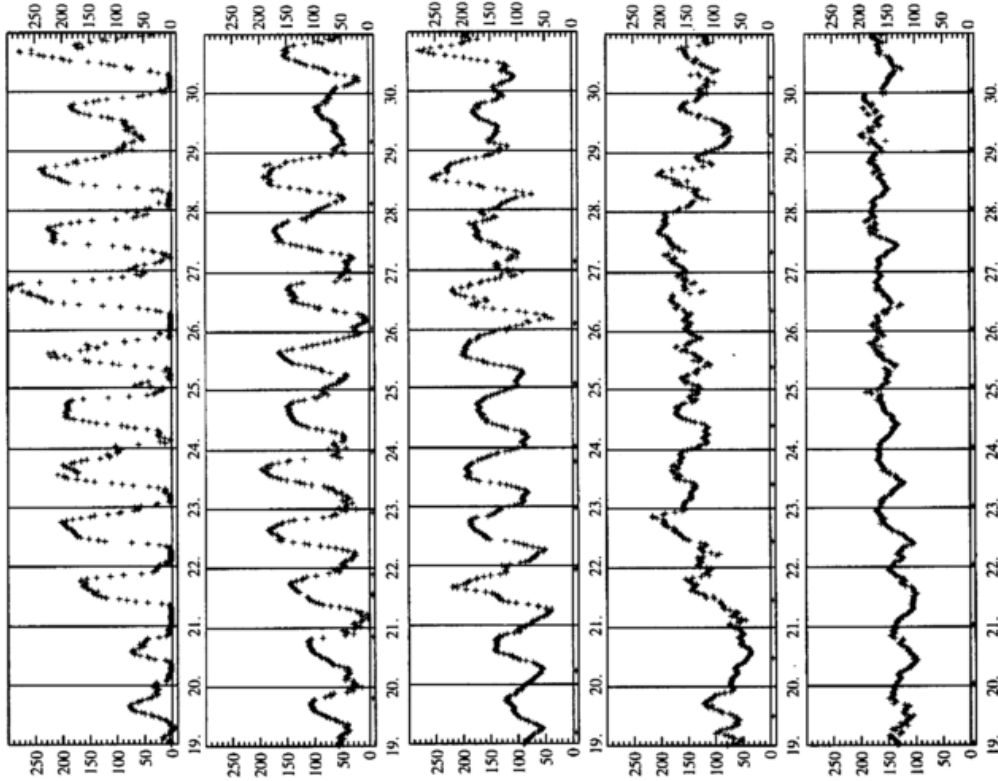
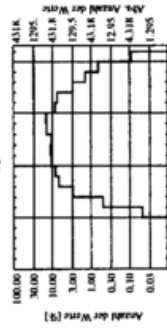
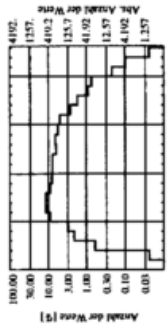
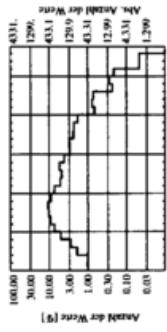
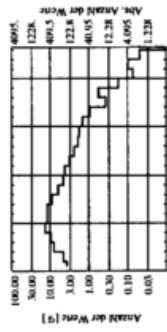
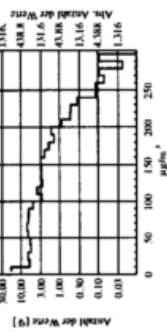


Abbildung 2.8: Beispiele für die verschiedenen Stationstypen (rechts: Meßausfälle sind als Werte kleiner null angezeigt).

gen Wetterlage ab, für Sommersmogepisoden ist eine sommerliche Hochdruckwetterlage mit hohen Lufttemperaturen Vorbedingung. Auf die Regime bezogen sind die Tagesmaxima in verschmutzter Luft am größten. Allerdings findet effektive Ozonproduktion erst ab einem gewissen Abstand von den Emissionsquellen statt (siehe z. B. Derwent und Davies, 1994). Das heißt, daß an extrem belasteten Orten die Ozonwerte allgemein niedriger liegen als in der Umgebung.

Mit den aufgeführten Kriterien ist bereits eine Bewertung der Regime möglich. Tiefergehende Betrachtungen gingen entweder auf Kosten der Einfachheit der Maßstäbe oder sind aufgrund fehlenden Datenmaterials nicht möglich. Anhand der Form und der Amplitude eines beobachteten Tagesganges und des Tagesmittelwertes kann jedoch eine grobe Zuteilung zu einem bestimmten Regime vorgenommen werden. Es ist wichtig, zwischen einem aktuellen und einem mittleren Regime zu unterscheiden. Das aktuell vorherrschende Regime an einem Ort ist natürlich abhängig von den aktuellen Umständen und kann in der Regel stark von dem im Mittel vorliegenden Regime abweichen. Die erwähnten ausgeprägten Tagesgänge sind die Folge längerer sommerlicher Hochdruckwetterlagen, während z. B. Frontendurchgänge solche Ausprägungen abrupt abbrechen können. Für eine Bewertung der Meßstationen ist eine Zuteilung zu einem repräsentativen Regime wichtig. Dazu wird zusätzlich die Häufigkeitsverteilung des Auftretens der beobachteten Werte herangezogen, in der sich die oben genannten Kriterien widerspiegeln. Eine von niedrigen Werten dominierte Ozonverteilung ist typisch für eine Verkehrsstation, das Fehlen niedriger Werte und eine Verschiebung des Maximums in der Verteilung sind dagegen die Kennzeichen einer Bergstation.

In Abbildung 2.1 sind z. B. die Stationstypen in die Darstellung durch unterschiedliche Symbole mitaufgenommen, und in Tabelle A.1 ist für jede Station das mittlere Regime angegeben. Wie bereits erwähnt, haben verschiedene Meßnetze verschiedene Charakteristika. Anhand der Klassifizierung zeigt sich, daß einige Bundesländer, wie besonders Bayern und Nordrhein-Westfalen, den größten Teil ihrer Stationen an stark emissionsgeprägten Orten betreiben, während z. B. in den Meßnetzen des Umweltbundesamtes oder EMEP mehr ländliche Stationen zu finden sind. Da die Einteilung bis zu einem gewissen Grad subjektiv ist, wird für das aktuell vorherrschende Regime in Abschnitt 4.5 ein quantitatives Maß entwickelt.

Im vorigen Abschnitt wurde bereits die Frage der räumlichen Repräsentativität von Messungen angesprochen. Hinweise, die Auskunft über dieses Problem geben, liefert eine Korrelationsanalyse der Meßdaten. Dazu soll hier die lineare Korrelation (d. h. der Pearson-Korrelationskoeffizient)  $r_{ij}$  der Meßreihen  $C_i$  und  $C_j$ ,

$$r_{ij} = \frac{\sum_{t=1}^T (C_i(t) - \bar{C}_i)(C_j(t) - \bar{C}_j)}{\sqrt{\sum_{t=1}^T (C_i(t) - \bar{C}_i)^2} \sqrt{\sum_{t=1}^T (C_j(t) - \bar{C}_j)^2}}, \quad i, j = 1, \dots, N, \quad (2.1)$$

berechnet werden. Dabei beschreibt  $C_i(t)$  den Meßwert zum Zeitpunkt  $t$  und  $\bar{C}_i$  den Mittelwert an der Station  $i$ ,  $T$  ist die Anzahl der Meßpunkte und  $N$  die Anzahl der Stationen. Um eine hohe Signifikanz der Werte zu erreichen, werden nur Korrelationen zwischen Stationen berechnet, für die die Überdeckung der beiden Meßreihen, also der Anteil an den möglichen Zeitpunkten, an denen für beide Reihen Werte vorliegen, mindestens 40 % beträgt.

In Abbildung 2.9 sind die Korrelationskoeffizienten zwischen den Meßreihen der verschiedenen Stationen aufgetragen, mehrere (entfernungs-)benachbarte Werte sind zu einem Balken zusammengefaßt. Neben den Werten für die gesamten Zeitreihen sind die Korrelationen der Tagesmaxima bzw. die Korrelationen für die Smogepisode 19. – 30. Juli 1994 gezeigt. Auch für kleinste Distanzen sind nur wenige Werte größer 0.9. Dies deutet auf Meßfehler und die Unsicherheit bzgl. der Repräsentativität der Meßdaten, wie sie schon in Abbildung 2.6 zu sehen ist, hin, da eine Extrapolation zur Distanz null eine Korrelation kleiner eins ergibt. Daß

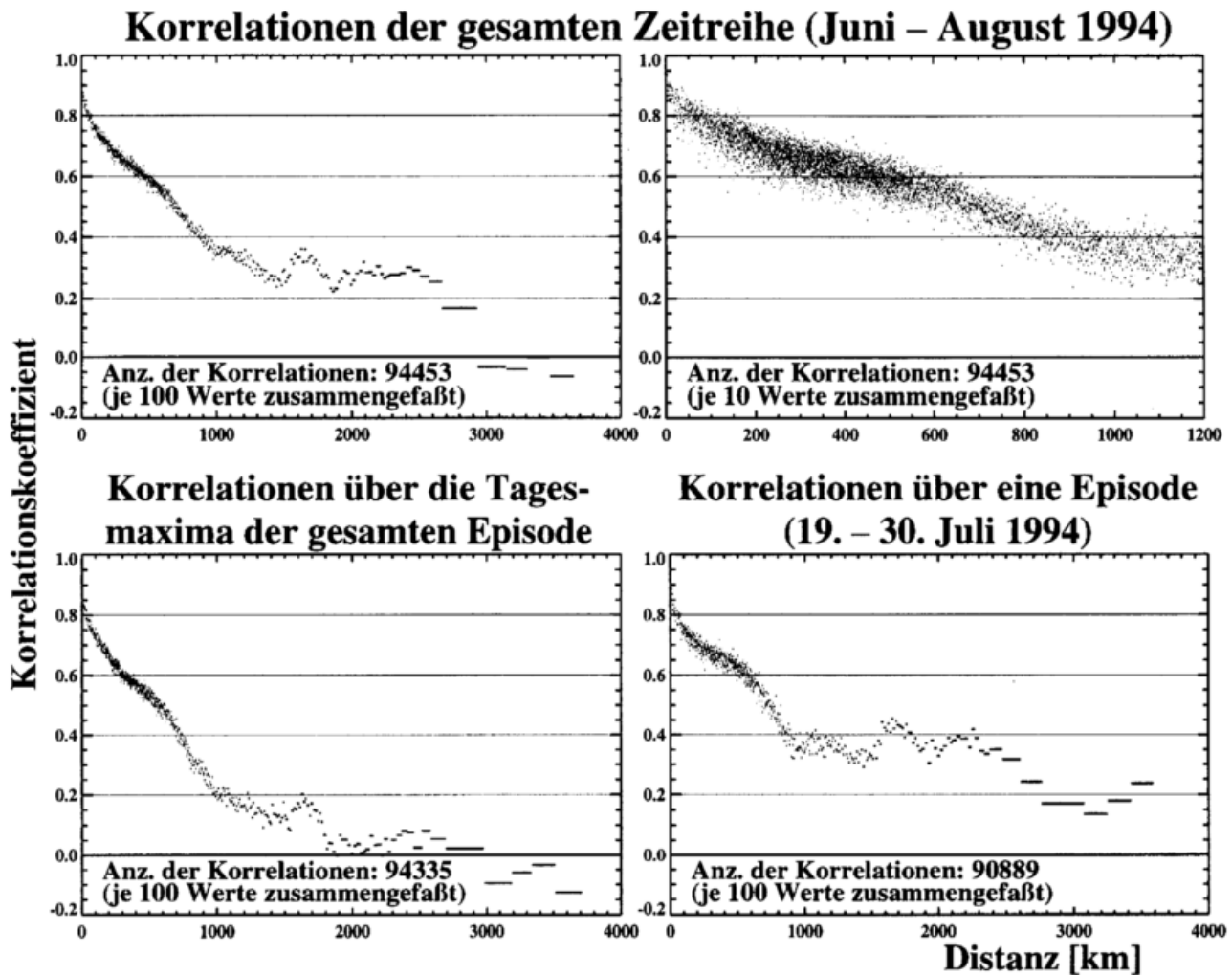


Abbildung 2.9: Korrelationskoeffizienten (siehe Gleichung 2.1) für die Ozonmeßreihen verschiedener Stationen aufgetragen gegen die Entfernung zwischen den Stationen. Oben: Korrelationen zwischen den gesamten Datensätzen (Juni – August 1994); unten: links Korrelationen zwischen den Tagesmaxima der gesamten Datensätze und rechts Korrelationen für die Zeitreihe 19. – 30. Juli 1994; für eine übersichtliche Darstellung wurden jeweils mehrere Punkte zusammengefaßt und der Mittelwert als Balken abgebildet.

während einer großräumigen sommerlichen Hochdruckwetterlage, wie sie während der Smog-episode vom 19. – 30. Juli 1994 vorherrscht, die Ozonkonzentrationen stärker korreliert sind, ist in der Abbildung 2.9 rechts unten zu sehen. Obwohl signifikant, ist der Unterschied jedoch nicht bedeutend. Die insgesamt hohen Korrelationskoeffizienten sind auf die natürliche Ähnlichkeit der Tagesgänge zurückzuführen, so daß die Korrelationslänge (Distanz bis zu der die Korrelationskoeffizienten Werte größer  $1/e \approx 0.37$  besitzen) für die Tagesmaxima in Abbildung 2.9 unten links — also ohne Einfluß der Ähnlichkeit der Tagesgänge — nur noch ca. 800 km, ungefähr 300 km weniger als in Abbildung 2.9 oben links, beträgt. Dieser Effekt wird auch aus Abbildung 2.10 ersichtlich. Dort sind die für den gesamten dreimonatigen Zeitraum ermittelten Korrelationen nach Stationstypen getrennt dargestellt. Je größer der Unterschied zwischen den an den Stationen im Mittel vorliegenden Regimen, desto geringer ist die Korrelation zwischen den Meßreihen. Besonders beim Vergleich der stark belasteten Stationen mit den „remote“-Stationen, bei denen die Tagesgänge kaum noch Ähnlichkeiten aufweisen, sind die Korrelationen sehr klein. Daß sie trotzdem Werte um 0.37 aufweisen, ist ein Indiz dafür, daß Stationen sämtlicher Typen von den großräumigen Sommersmogepisoden betroffen sind.

## Korrelationen zwischen den Stationen (je 10 Einzelwerte zu einem Balken zusammengefaßt)

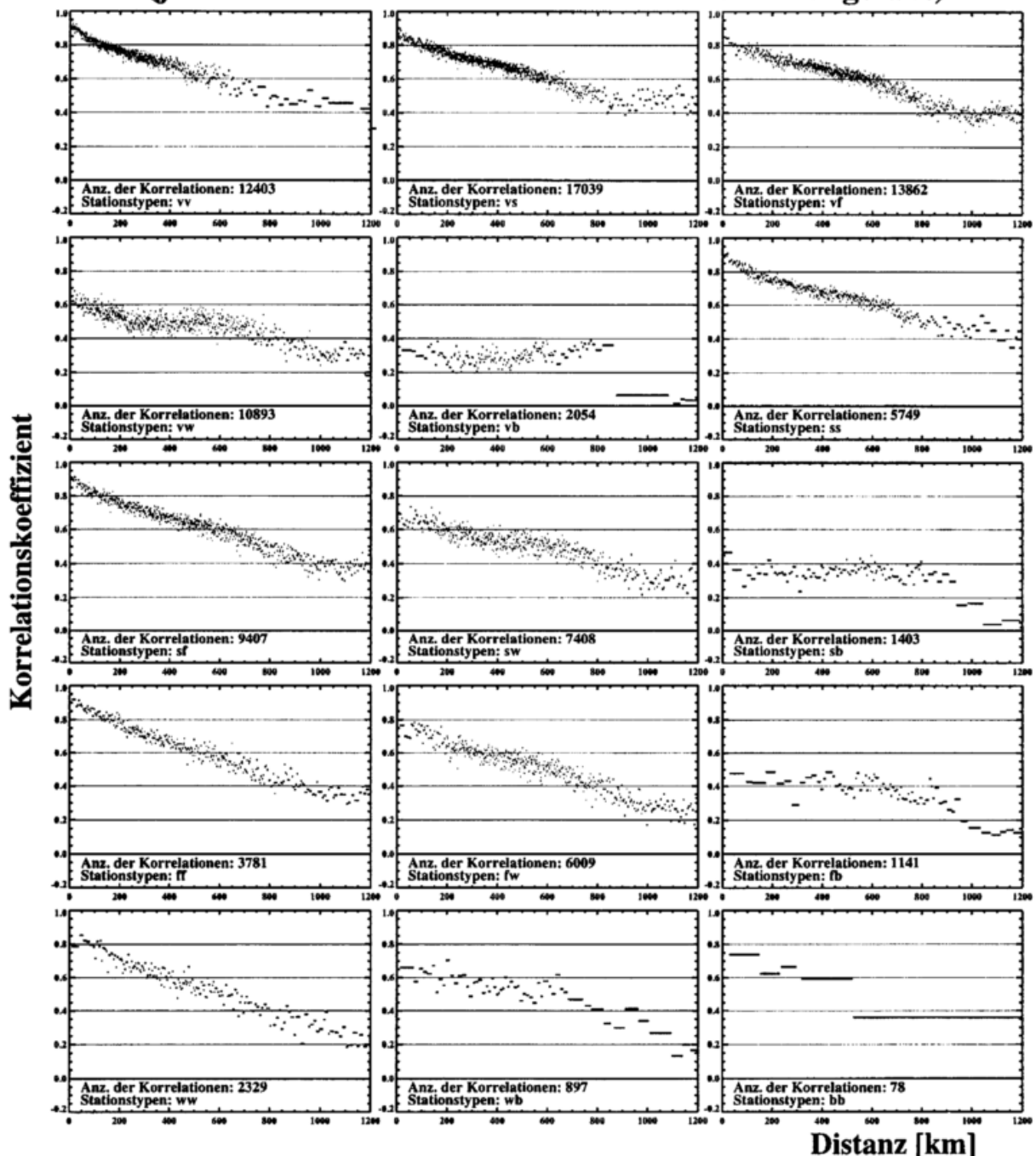


Abbildung 2.10: Korrelationskoeffizienten für die Ozonmeßreihen verschiedener Stationen aufgetragen gegen die Entfernung zwischen den Stationen, getrennt nach den jeweiligen Stationsypen; es wurden jeweils mehrere Punkte zu einem Balken zusammengefaßt; die Bezeichnung der Stationstypen ist wie in Abbildung 2.7.

Anhand dieser Untersuchung (in der Abbildung aber nicht zu sehen) zeigt sich auch, daß die lokalen Maxima der in Abbildung 2.9 gezeigten Korrelationen bei Distanzen größer 1000 km, auf das in bezug auf die räumliche Verteilung der Stationstypen inhomogene Meßnetz zurückzuführen ist. Daten von z. B. Verkehrsstationen liegen hauptsächlich für die Niederlande, Deutschland, die Schweiz und Österreich vor, wohingegen die Reinluftstationen gleichmäßiger

über die Staaten verteilt sind (siehe auch Abbildung 2.1). Des weiteren unterstreicht Abbildung 2.10, daß die oben beschriebene Klassifizierung der Stationen Sinn macht und nützliche Ergebnisse liefert, die für die Interpretation der Daten notwendig sind.

## 2.4 Auswertung und Interpretation von $NO_x$ -Bodendaten

Die primäre Schadstoffklasse  $NO_x$  — die Summe aus  $NO$  und  $NO_2$  — bildet den Hauptanteil an den emittierten Stickstoffkomponenten. Sie entsteht zum überwiegenden Teil bei der Verbrennung fossiler Brennstoffe, und die Hauptquelle stellt der Straßenverkehr dar. Dementsprechend verhalten sich die gemessenen Zeitreihen (Beispiele für  $NO_2$  sind in Abbildung 2.11 und für  $NO$  in Abbildung 2.12 zu sehen). Die Konzentrationen von  $NO_2$  sind in der Regel höher als die von  $NO$ , da, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, das Stickstoffmonoxid sehr schnell in Stickstoffdioxid umgewandelt wird. Ausnahmen sind nur an von Emissionen extrem belasteten Stationen zu beobachten (in den Abbildungen z. B. die Station Ffm.Friedb.Landstrasse; diese Station taucht in der Stationsliste in Anhang A.2 nicht auf, da ihr Standort nicht exakt bekannt ist und dort kein Ozon gemessen wird). Ansonsten spiegeln die Maxima in den  $NO$ -Tagesgängen die täglichen Stoßzeiten im Straßenverkehr wieder. Die  $NO_2$ -Tagesgänge verhalten sich genau umgekehrt zu den Ozontagesgängen — Maxima in der Nacht, Minima am Tag —, auch das wurde bereits im vorigen Abschnitt diskutiert. Da anthropogene Emissionen die Hauptquelle für  $NO_x$  sind und während der „Alterung“ der Luft  $NO_x$  mehr und mehr in komplexere Stickstoffverbindungen umgewandelt wird, ist eine sehr starke Abhängigkeit der Konzentrationen vom Stationstyp zu beobachten. Die Meßwerte reichen z. B. für  $NO$  von mehreren hundert  $\mu g/m^3$  an einigen Verkehrsstationen bis unter ein  $\mu g/m^3$  an Wald- und Bergstationen. Die Repräsentativität von einzelnen Standorten für  $NO_x$  ist somit weit geringer als für Ozon. Dies zeigt sich auch an den Korrelationen zwischen den Stationen, wie sie in den Abbildungen 2.13 und 2.14 zu sehen sind. Dargestellt sind die Korrelationskoeffizienten zwischen den  $NO_2$ - bzw. den  $NO$ -Meßreihen und zusätzlich stationstypenabhängige Korrelationen. Die Korrelationslänge für  $NO$  ist mit ca. 80 km weniger als halb so groß wie die für  $NO_2$  und beide um etwa eine Größenordnung kleiner als die für Ozon. Die typenabhängige Darstellung zeigt, daß die beobachteten Konzentrationen von Reinluftstationen mit denen von unter Emissionseinfluß stehenden Standorten gar nicht korreliert sind.

Kley et al. (1994) weisen darauf hin, daß  $O_x$  — die Summe aus  $NO_2$  und Ozon — aufgrund des photostationären Gleichgewichtes für kurze Zeitskalen eine Erhaltungsgröße ist. Die Ergebnisse einer Korrelationsanalyse von  $O_x$  unterstützen diese Feststellung. In Abbildung 2.15 sind einige Beispiele für die stationstypenabhängigen Korrelationen von  $O_x$  gezeigt. In keinem Fall ist die Korrelation von  $O_x$  schlechter als die von Ozon. Es zeigt sich im Gegenteil, daß z. B. Verkehrsstationen bei der Betrachtung von  $O_x$  wesentlich besser mit Wald- und auch Bergstationen korrelieren als bei der Auswertung der Ozonmessungen. Unter anderem läßt sich auch schließen, wie Kley et al. (1994) schreiben, daß an Waldstationen oft die gealterte Stadtluft beobachtet wird, also an solchen Orten indirekte Effekte von Emissionen zu beobachten sind. Tatsächlich weisen nur Bergstationen „Hintergrundwerte“ für die Konzentration von Spurengasen auf.

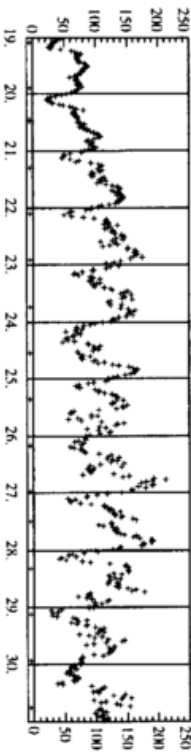
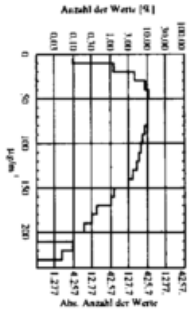
Der Wert der vorliegenden  $NO_x$ -Messungen für eine Verwendung der Daten im Modell ist recht gering. Die große Spanne in den beobachteten Größenordnungen der Konzentrationen, geringe Repräsentativitäten der Stationen bzw. sehr kurze Korrelationslängen sind Gründe dafür. Aber auch meßtechnische Argumente sprechen dagegen. Bei verschiedenen Meßnetzen liegt die aus den Daten ersichtliche Meßuntergrenze wesentlich höher als die an einigen Reinluftstationen beobachteten Konzentrationen (z. B. beim TEMES-Meßnetz in Nordrhein-Westfalen liegt die

**Stations-  
typ**  
**Station/ $NO_2$ -Statistik  
für Juni – August 1994**

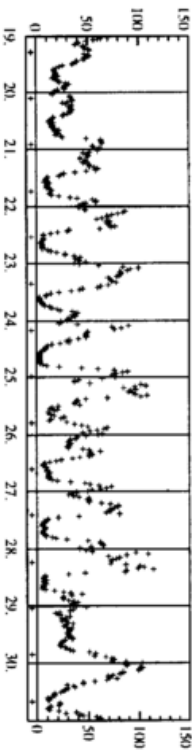
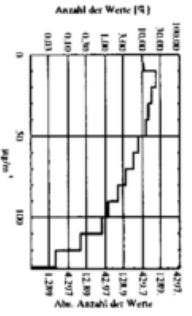
**Häufigkeitsverteilung  
der  $NO_2$ -Messwerte**

**$NO_2$ -Halbstundemittel [ $\mu g/m^3$ ]  
für die Episode 19.07. – 30.07.1994**

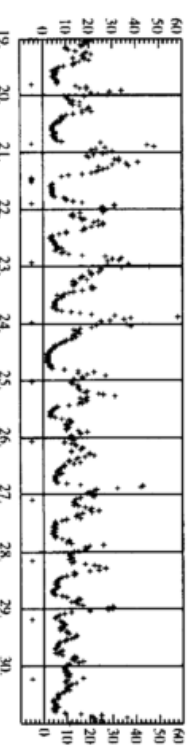
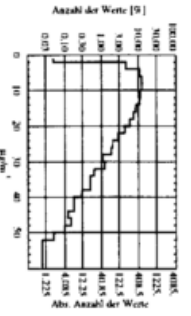
**Verkehr  
(traffic)**  
Hessen/Frn. Friedb. Landstrasse  
Max. = 229.0 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 3.60 %;  
Mittelwert = 78.3; Median = 73.0;  
Standardabweichung = 36.5



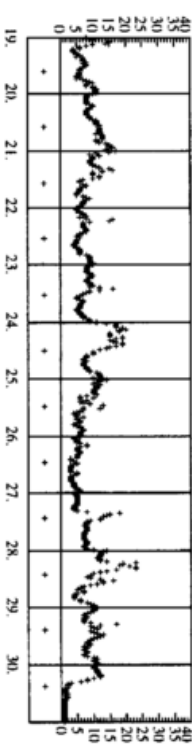
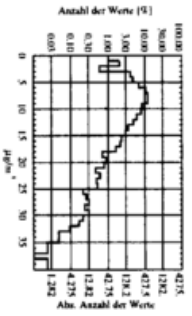
**Verkehr  
(traffic)**  
Hessen/Viernheim  
Max. = 121.0 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 2.69 %;  
Mittelwert = 33.2; Median = 28.0;  
Standardabweichung = 22.3



**Stadt  
(urban)**  
Niedersachsen/Rinteln  
Max. = 58.00 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 7.49 %;  
Mittelwert = 12.7; Median = 11.0;  
Standardabweichung = 7.72



**Wald  
(rural)**  
Rheinland-Pfalz/Hunsrueck  
Max. = 39.00 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 3.19 %;  
Mittelwert = 9.23; Median = 8.00;  
Standardabweichung = 5.16



**Berg  
(remote)**  
Bayern/Garnisch-P. Wank  
Max. = 13.00 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 2.62 %;  
Mittelwert = 2.66; Median = 2.00;  
Standardabweichung = 1.60

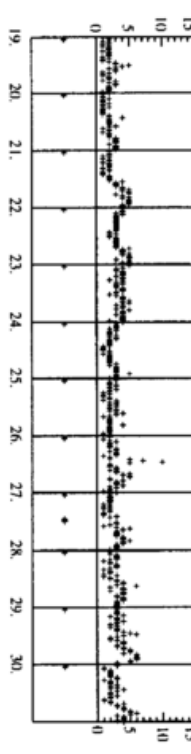
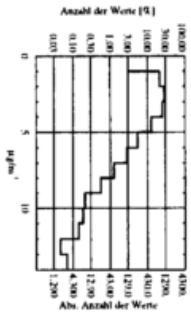


Abbildung 2.11: Beispiele für verschiedene  $NO_2$ -Messungen (rechts: Ausfälle sind als Werte kleiner null dargestellt).

**Stationen/NO-Statistik für Juni – August 1994**

**NO-Halbstundenmittel [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ] für die Episode 19.07. – 30.07.1994**

**Hessen/Ffm.Friedb.Landstrasse**  
 Max. = 528,0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 3,60 %;  
 Mittelwert = 81,4; Median = 57,0;  
 Standardabweichung = 77,4

**Verkehr (traffic)**

**Hessen/Viernheim**  
 Max. = 229,0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 2,69 %;  
 Mittelwert = 8,85; Median = 3,00;  
 Standardabweichung = 16,7

**Verkehr (traffic)**

**Niedersachsen/Rinteln**  
 Max. = 56,00 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 16,1 %;  
 Mittelwert = 1,71; Median = 1,00;  
 Standardabweichung = 3,02

**Stadt (urban)**

**Mecklenburg-Vorpommern/Guelzow**  
 Max. = 143,0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 5,91 %;  
 Mittelwert = 3,26; Median = 3,00;  
 Standardabweichung = 3,35

**Fläche (suburban)**

**Rheinland-Pfalz/Hunsrueck**  
 Max. = 9,000 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]; Ausfallrate = 2,98 %;  
 Mittelwert = 0,02; Median = 0,00;  
 Standardabweichung = 0,26

**Wald (rural)**

**Häufigkeitsverteilung der NO-Messwerte**

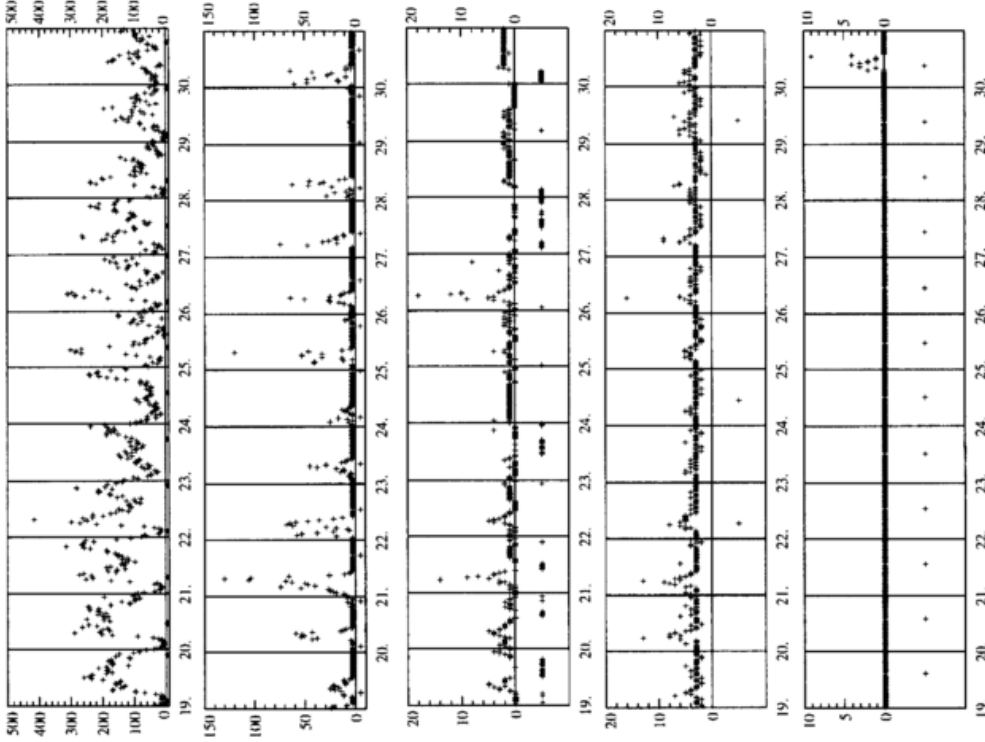
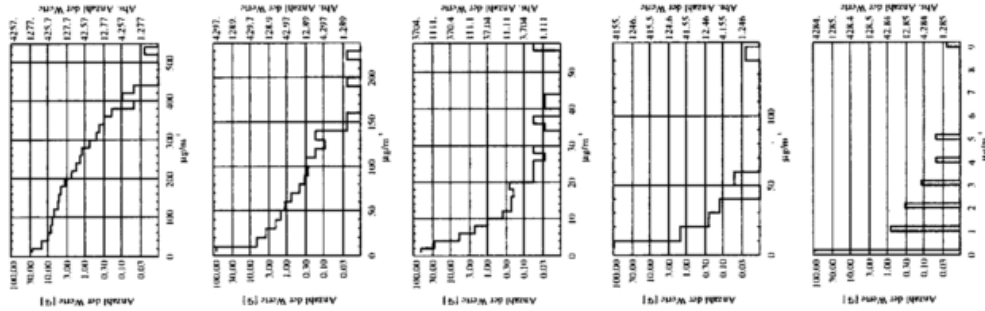


Abbildung 2.12: Beispiele für verschiedene NO-Messungen (rechts: Ausfälle sind als Werte kleiner null dargestellt).

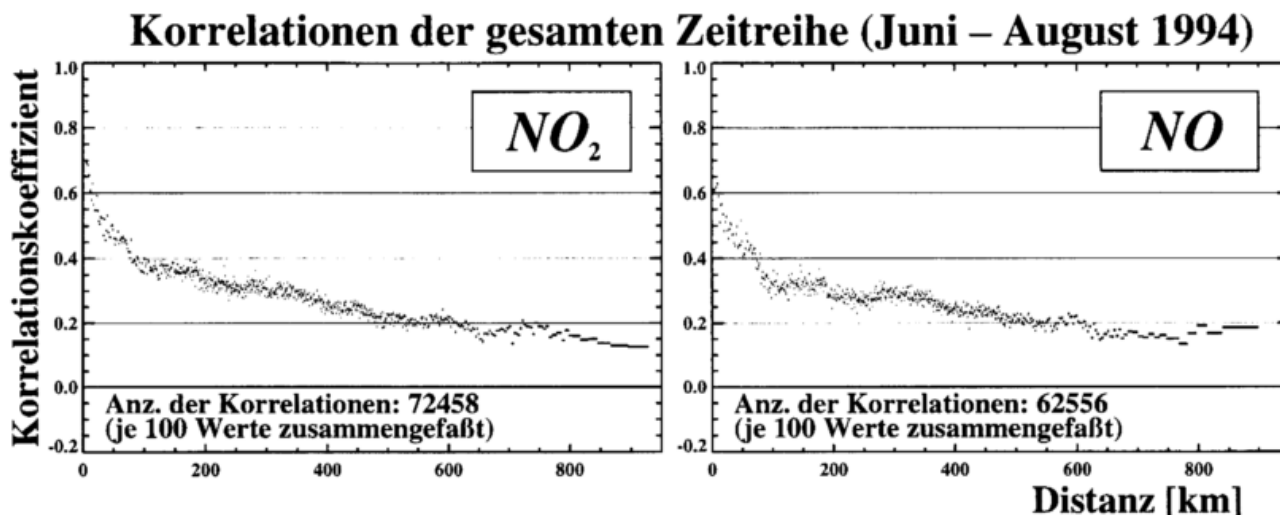


Abbildung 2.13: Korrelationskoeffizienten für die  $NO_2/NO$ -Meßreihen verschiedener Stationen aufgetragen gegen die Entfernung zwischen den Stationen für den Zeitraum Juni – August 1994; links: Korrelationen für  $NO_2$ , rechts: Korrelationen für  $NO$ ; es wurden jeweils mehrere Punkte zu einem Balken zusammengefaßt.

Meßuntergrenze bei  $5 \mu g/m^3$ ). Zusätzlich ist davon auszugehen, daß bei den oxidierten Stickstoffkomponenten große Meßunsicherheiten vorliegen können. Oft werden diese indirekt gemessen, indem sie zuvor mittels eines aufgeheizten Konverters chemisch in  $NO$  umgewandelt werden und dann die  $NO$ -Konzentration mit einem Chemolumineszenzdetektor bestimmt wird (siehe z. B. Schultz et al., 1996). Dabei besteht eine große Unsicherheit in bezug auf die genaue Benennung des Ausgangsstoffes. Bei den von den Umweltämtern üblicherweise benutzten Geräten sind so Querempfindlichkeiten gegenüber  $HNO_3$ ,  $PAN$ , usw. zu erwarten. Vergleichsmessungen zeigen, daß solch ein Fehler systematisch und episodenhaft abhängig vom Verschmutzungsgrad der Luft sein kann (H. Geiß, pers. Mitteilung, 1996). Bei vielen Instrumenten liegt die Meßuntergrenze mindestens bei  $5 \mu g/m^3$ , und der Bereich, in dem die Messungen einigermaßen genau sind, beginnt erst oberhalb von einigen  $5 \mu g/m^3$  (Wallasch, pers. Mitteilung, 1997). Damit sind nur Daten von verkehrsnahen Stationen einigermaßen zuverlässig (wofür die Meßnetze auch ursprünglich ausgelegt sind) und evtl. nutzbar, aber dort von geringer räumlicher Repräsentativität.

An einem Beispiel wird die Repräsentativität von  $NO_x$  im Vergleich zu Ozon an belasteten Stationen demonstriert. Corsmeier und Vogel (1998) stellen eine Meßkampagne vom 8. – 30. Juli 1997 vor, bei der beidseits einer Autobahn u. a.  $NO_x$  und Ozon gemessen wurde. Für die vorliegende Arbeit hat Frau Dr. Vogel freundlicherweise die Zeitreihen von zwei Stationen zur Verfügung gestellt. Station 1 stand 100 m vom einen Rand der Autobahn entfernt, und gegenüber, 25 m vom anderen Rand der Straße befand sich Meßstelle 2. Abbildung 2.16 zeigt in der obersten und dritten Reihe die in zehnminütiger Auflösung vorliegenden Ozon- und  $NO_x$ -Messungen der beiden Meßstationen. Jeweils darunter sind die Differenzen der Kurven der verschiedenen Stationen dargestellt, einmal die Differenzen der Originaldaten und zusätzlich, zum besseren Vergleich mit den übrigen Darstellungen dieses Kapitels, die Differenzen von Zeitreihen aus stündlich gemittelten Werten. An den  $NO_x$ -Reihen ist zu sehen, daß es sich um sehr belastete Standorte handelt (ähnlich belastet wie viele Stationen der Meßnetze der Bundesländer, siehe z. B. die Abbildungen 2.11 und 2.12). Deutlich zeigt sich der Einfluß der Autobahn in der Differenz der  $NO_x$ -Kurven. Je nach Windrichtung (die Effekte der Meteorologie werden hier nicht weiter diskutiert, siehe dazu die Arbeit von Corsmeier und Vogel, 1998) sind Unterschiede von über 50 ppbv keine Seltenheit. Eine gute Übereinstimmung (mit umge-

## Korrelationen zwischen den $NO_2$ -Meßreihen (je 5 Einzelwerte zu einem Balken zusammengefaßt)

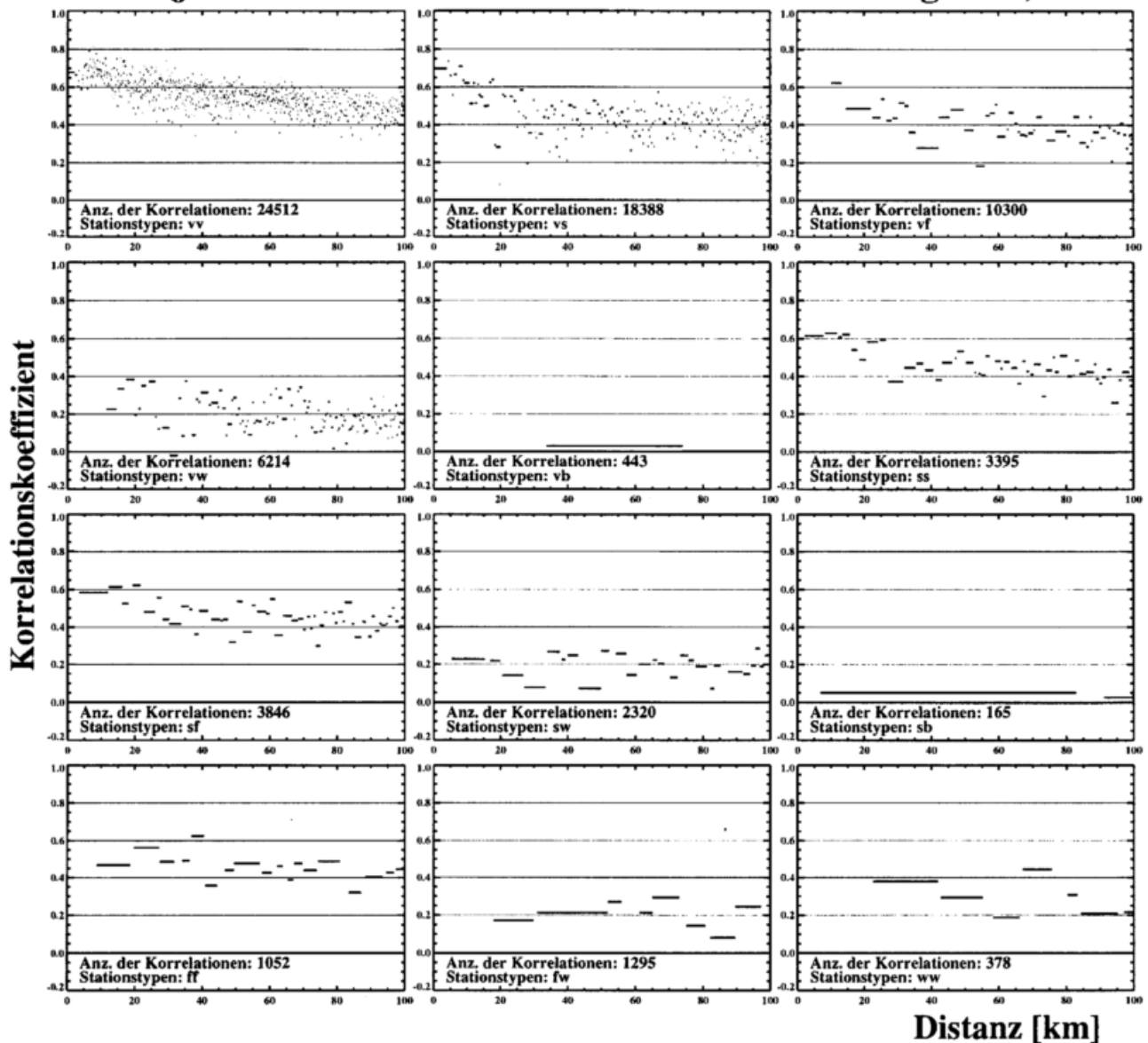


Abbildung 2.14: Korrelationskoeffizienten für die  $NO_2$ -Meßreihen verschiedener Stationen aufgetragen gegen die Entfernung zwischen den Stationen, getrennt nach den jeweiligen Stationsypen (für einige Konstellationen von Typenzusammenstellungen liegen zu wenig Daten vor); es wurden jeweils mehrere Punkte zu einem Balken zusammengefaßt.

kehrtem Vorzeichen) zeigt sich in den Verläufen der Differenzen der Ozon- und  $NO_x$ -Messungen. An der Station mit den jeweils höheren  $NO_x$ -Werten ist das Ozonmischungsverhältnis niedriger. Teilweise ist die Belastung der Luft so groß, daß nahezu das ganze Ozon durch  $NO$  abgebaut wird, oder sich ein Ozontagesgang gar nicht erst ausbilden kann. So zeigen auch die Ozonreihen die Charakteristika von sehr belasteten Stationen. Allerdings sind die Differenzen der Ozonmischungsverhältnisse nur selten größer als 20 *ppbv*. Auf eine wesentlich ausgedehntere Repräsentativität der Ozonmessungen deutet auch hin, daß die aus Stundenmitteln berechneten Korrelationen der Ozonreihen 0.9 und die der  $NO_x$ -Daten nur 0.4 betragen. Dies sind typische Werte, die in guter Übereinstimmung mit den in diesem Kapitel für die Meßnetze bestimmten

### Korrelationen von $O_x$ zwischen den Stationen (je 10 Einzelwerte zu einem Balken zusammengefaßt)

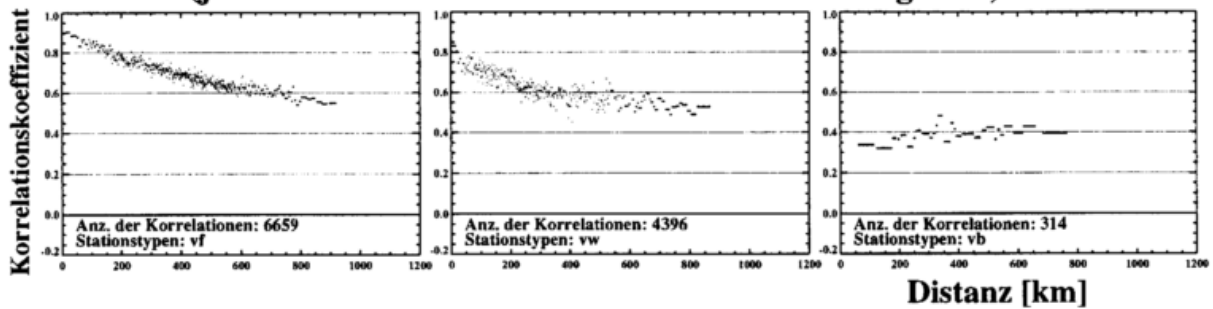


Abbildung 2.15: Korrelationskoeffizienten für die  $O_x$ -Meßreihen verschiedener Stationen aufgetragen gegen die Entfernung zwischen den Stationen, getrennt nach den jeweiligen Stationsypen (nur einige Konstellationen sind gezeigt); es wurden jeweils mehrere Punkte zu einem Balken zusammengefaßt.

Korrelationskoeffizienten sind.

In belasteten Gegenden ist die Schwankung in den  $NO_x$ -Werten somit auf Distanzen von wenigen 100 m eine Größenordnung höher als der übliche Meßfehler oder ein mehrfaches des Meßwertes selber. Für die entsprechenden Ozonreihen liegt hingegen die Variabilität lediglich im Bereich der Meßunsicherheit (Meßunsicherheit, wie sie für die Daten der Meßnetze diskutiert wurden, der Fehler in den Daten von Corsmeier und Vogel, 1998, wird wesentlich geringer sein).

#### Messungen beidseits der Bundesautobahn 656 vom 21. – 28. Juli 1997

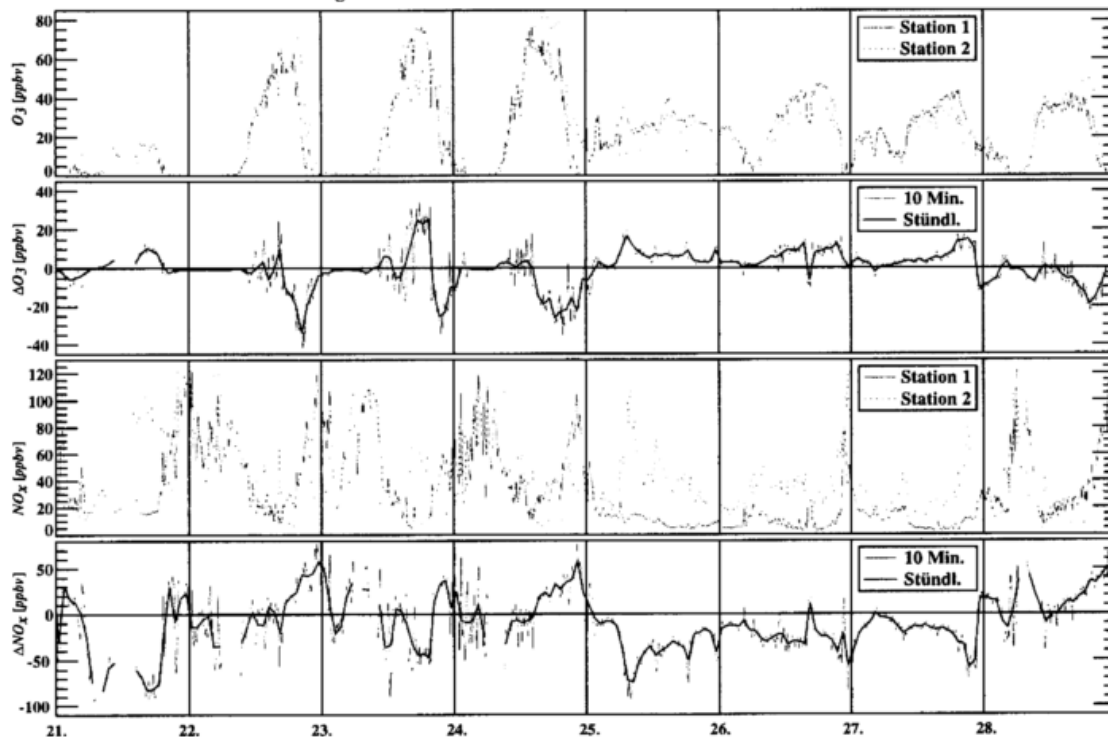


Abbildung 2.16: Ergebnisse einer Meßkampagne im Juli 1997 an der Autobahn 656 (Corsmeier und Vogel, 1998); die Einheit ist *ppbv*; oben: Ozonzeitreihen von zwei Meßstationen, die beiderseits der BAB 656 im Abstand von 25 m (Station 1) bzw. 100 m (Station 2) aufgestellt wurden, die zeitliche Auflösung beträgt zehn Minuten; zweite Reihe: Differenzen der beiden Ozonreihen einmal in der originalen Zeitauflösung, einmal als Stundenmittel; dritte und unterste Reihe: Wie die oberen Reihen nur für  $NO_x$ .

## 2.5 Auswertung und Interpretation von $SO_2$ -Bodendaten

Schließlich soll noch kurz auf die  $SO_2$ -Daten eingegangen werden.  $SO_2$  ist ein primärer Schadstoff, der hauptsächlich von Kraftwerken und Hausbrand emittiert wird. Im Gegensatz zu Photooxidantien wie Ozon zeigt das  $SO_2$  die höchsten Konzentrationen im Winter, die für Juni – August 1994 vorliegenden Daten sind somit nicht sehr aussagekräftig. Abbildung 2.18 zeigt einige Beispiele für die  $SO_2$ -Messungen. Die höchsten Konzentrationen werden morgens beobachtet, auch ist ein episodenhaftes Auftreten höherer Werte typisch. In den neuen Bundesländern sind die  $SO_2$ -Konzentrationen im betrachteten Zeitraum grundsätzlich höher als in den alten. In Abbildung 2.17 ist zu sehen, daß die Konzentrationen an den verschiedenen Stationen sehr schlecht korreliert sind. Die Korrelationslänge beträgt deutlich weniger als 100 km. Dies ist in guter Übereinstimmung mit Ergebnissen von Ebel et al. (1994). Auch für  $SO_2$  gilt, daß oftmals eine hohe Meßuntergrenze angegeben wird. Es gelten somit in noch verstärktem Maß die gleichen Argumente wie bei  $NO_x$ , die gegen eine Nutzung der vorliegenden Beobachtungen zur Datenassimilation sprechen.

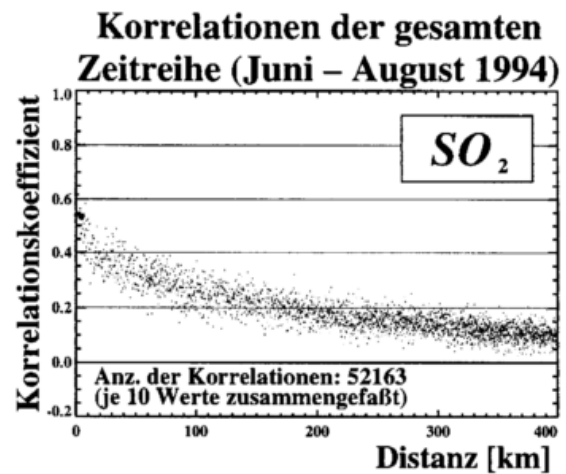


Abbildung 2.17: Korrelationskoeffizienten für die  $SO_2$ -Meßreihen verschiedener Stationen aufgetragen gegen die Entfernung zwischen den Stationen; es wurden jeweils mehrere Punkte zu einem Balken zusammengefaßt.

## 2.6 Meßdaten im Zusammenhang mit Modellrechnungen

Zusammenfassend zeigt dieses Kapitel, daß es große Lücken in der Beurteilung der Qualität von Messungen atmosphärischer Spurengase gibt. Für eine Validierung von Modellen sind Meßnetze zu anisotrop, die Charakteristiken der einzelnen Stationen unzureichend bekannt (siehe auch Hass et al., 1996). Viele der gemessenen Stoffe geben nur qualitative Auskunft über den Grad der Luftverschmutzung, da sie entweder zu kurzlebig oder zu stark von den lokalen Emissionen abhängig sind (bei ausreichender Kenntnis der lokalen Gegebenheiten könnten jedoch auch solche Informationen sinnvoll z. B. zur Beurteilung der modellierten Emissionen genutzt werden, siehe auch Hass et al., 1995), oder die Konzentrationen sind zu gering, um von den üblichen Geräten ausreichend exakt bestimmt werden zu können. Andere als an ortsfesten Stationen in-situ-gemessene Daten, wie Messungen von Ballonaufstiegen oder satellitengestützten Sensoren, sind heutzutage noch sehr selten. Auch die Zahl der gemessenen Spurenstoffe ist aufgrund des heutigen Standes der Technik zu klein. Einzig Ozon als relativ leicht zu messender sekundärer Schadstoff scheint derzeit eine mögliche Größe für die Datenassimilation zu sein. Ozon wird an verhältnismäßig vielen Stationen regelmäßig gemessen und besitzt eine Lebensdauer, die gerade lang genug ist, um nicht ausschließlich von lokalen Verhältnissen beeinflusst zu werden. Da zur Zeit die Automatisierung der Datenerhebung und -verarbeitung noch unzureichend ist, kann auf eine grobe, manuelle Qualitätskontrolle nicht verzichtet werden. Eine quantitative Abschätzung der Beobachtungsfehler ist von dieser Stelle aus nicht durchführbar, so daß in Abschnitt 5.4 zu diesem Zweck eine andere Methode — der Vergleich langer Meßreihen mit simulierten Daten

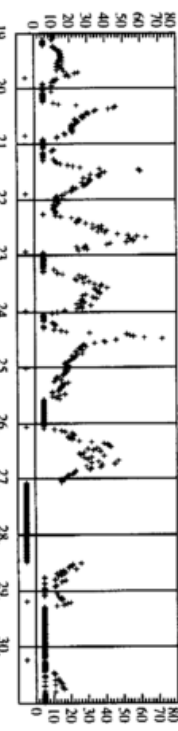
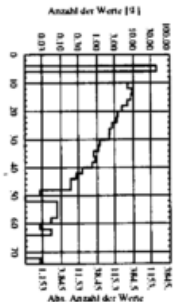
**Stations-  
typ für Juni – August 1994**

**Häufigkeitsverteilung  
der  $SO_2$ -Messwerte**

**$SO_2$ -Halbstundennittel\* [ $\mu g/m^3$ ]  
für die Episode 19.07. – 30.07.1994**

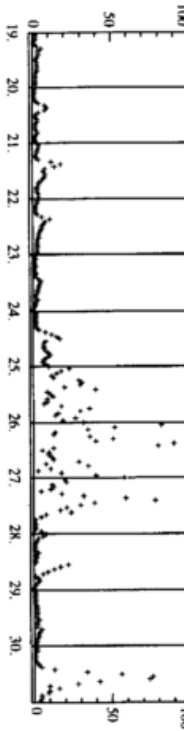
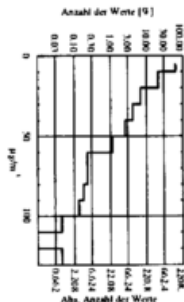
**Verkehr  
(traffic)**

**Nordrhein-Westfalen/Soest**  
Max. = 72.00 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 12.9 %;  
Mittelwert = 12.9; Median = 11.0;  
Standardabweichung = 9.31



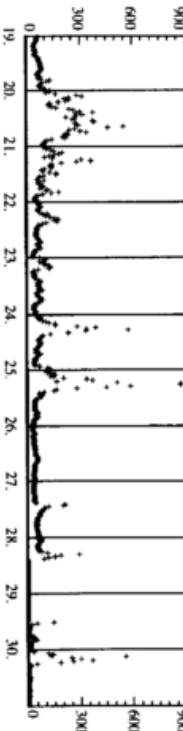
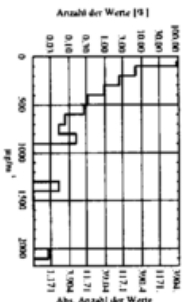
**Stadt  
(urban)**

**Niederlande/Schipluiden**  
Max. = 120.0 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 0.00 %;  
Mittelwert = 10.9; Median = 7.00;  
Standardabweichung = 12.8



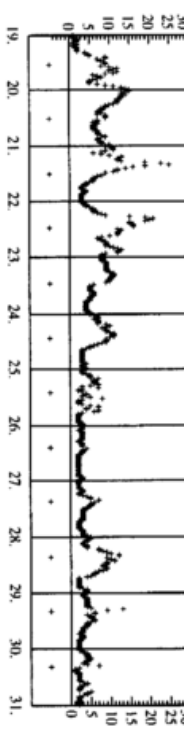
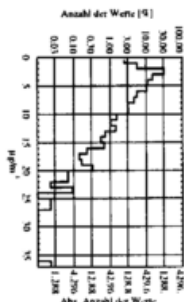
**Fläche  
(suburban)**

**Sachsen/Fichtelberg**  
Max. = 207.5 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 11.5 %;  
Mittelwert = 47.6; Median = 29.0;  
Standardabweichung = 89.1



**Wald  
(rural)**

**Rheinland-Pfalz/Hunsrück**  
Max. = 36.00 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 2.71 %;  
Mittelwert = 4.24; Median = 3.00;  
Standardabweichung = 3.33



**Berg  
(remote)**

**Bayern/Garmisch-P. Wank**  
Max. = 10.00 [ $\mu g/m^3$ ]; Ausfallrate = 3.01 %;  
Mittelwert = 0.56; Median = 0.00;  
Standardabweichung = 0.79

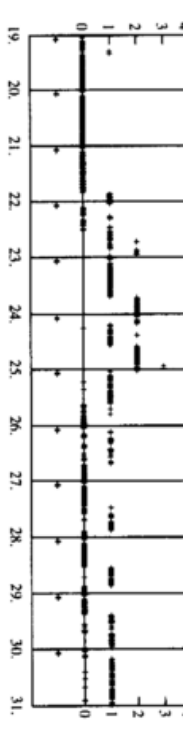
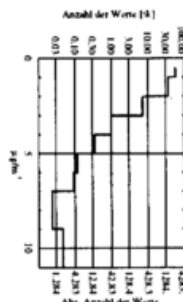


Abbildung 2.18: Beispiele für verschiedene  $SO_2$ -Messungen (rechts: Ausfälle sind als Werte kleiner null dargestellt).

— angewandt werden muß.

Bevor nun Messungen und modellierte Werte verglichen werden, müßte eine ähnliche Untersuchung auch für das Modell durchgeführt werden. Es muß jedem Gitterpunkt ein Regime (aktuell bzw. klimatologisch) zugewiesen werden können. Erst nachdem überprüft ist, inwieweit die Regime übereinstimmen, darf ein direkter Vergleich zwischen Messung und Modell vorgenommen werden. Es ist zu beachten, daß die am Gitterpunkt vorherrschenden Regime zum großen Teil von der Modellstruktur und den Eingabedaten abhängen. Zum Beispiel sind horizontale und vertikale Auflösung und Emissionen wichtig, aber auch Daten wie die Höhe der Modelltopographie oder die vorliegende Landnutzungs-kategorie. Ein Vergleich modellierter und beobachteter Regime kann sowohl in bezug auf eine Validierung des Modelles als auch zur Bewertung von Meßnetzen dienen. Es können Aussagen über eine korrekte Wahl der oben genannten Parameter für einzelne Gitterpunkte sowie über die Repräsentativität der Ortswahl für eine Meßstation getroffen werden. In Abschnitt 5.4 wird ein Verfahren für eine räumliche Analyse der Verteilung von Ozonmischungsverhältnissen vorgestellt, in dem versucht wird, solche Informationen optimal zu nutzen.

## Kapitel 3

# Modellierte Daten

Neben den Beobachtungen gibt es als zweite Datenquelle die Modellsimulationen, die das Thema dieses Kapitels sind. Die numerische Wettervorhersage ist erst ein halbes Jahrhundert alt, und Chemie-Transportmodelle werden erst seit zwei Jahrzehnten entwickelt, so ist die Tradition modellierter Daten wesentlich jünger als die der Messungen. — Wie bereits erwähnt versuchte sich Richardson (1922) als erster an einer numerischen Wetterprognose. Allerdings erwog er, ob seine Methode überhaupt besser sein könne als die damals übliche Form der Wettervorhersage. Diese bestand darin, aktuelle Wetteranalysekarten von Hand mit archivierten Karten zu vergleichen. Hatte man die am besten übereinstimmende Wettersituation gefunden, erwartete man, daß sich das Wetter ähnlich dem dokumentierten Fall entwickeln würde. Bisweilen hat man heutzutage den Eindruck, daß z. B. für die Ozonprognose ähnliche Gedanken angebracht wären, aber die Fortschritte der mittlerweile etablierten numerischen Wettervorhersage seit Richardson lassen auch für diese Aufgabe hoffen.

Die kurze Geschichte der Chemie-Transportmodelle begann in den 70er Jahren im Zusammenhang mit der wachsenden Bedeutung umweltrelevanter Probleme, wie der Verschmutzung der Gewässer und Böden und der Verschlechterung der Luftqualität in Großstädten durch Industrie und Verkehr. Hauptbeschränkungen der Modelle der ersten Generation waren das Fehlen jeglicher Information über Emissionen, mangelnde chemische Beobachtungen für Anfangswerte oder die Modellvalidierung sowie ungenügende Computerressourcen. In den 90er Jahren zeichnen sich die regionalen Modelle der zweiten Generation im wesentlichen durch aufwendigere Chemie-mechanismen (30 – 60 prognostizierte Spezies) und eine detailliertere numerische Behandlung der physikalischen und chemischen Vorgänge in Wolken sowie die Verwendung meteorologischer Felder aus Wettervorhersagemodellen aus. Zur Zeit sind Anforderungen an Modelle der dritten Generation im Gespräch (z. B. Peters et al., 1995, oder Dennis et al., 1996). Im Grunde sind immer noch die Probleme, die schon für die erste Generation von Chemie-Transportmodellen wichtige Schranken waren, aktuell. Hinzu kommen neue Anforderungen, wie z. B. die Fähigkeit, belastbare Ergebnisse zu liefern, nach denen immer öfter politische Entscheidungen getroffen werden müssen. Ebenso sollen die Modelle benutzerfreundlich und modular aufgebaut sowie evaluiert sein. Auch eine direkte Kopplung an die meteorologischen Treibermodelle und eine Rückkopplung z. B. von Aerosoleffekten auf die Meteorologie werden für Modelle der dritten Generation angestrebt. Nicht zuletzt tritt auch die chemische Datenassimilation in den Vordergrund. Über die Zukunft der Entwicklung von Chemie-Transportmodellen ließe sich wohl mehr als über ihre Geschichte sagen, besonders da die Aufgaben eher zunehmen (Klimaeinflüsse, Ozonlöcher, troposphärische Luftqualität, anstehende und zukünftige politische Entscheidungen, etc.). Auch Experimentatoren greifen immer öfter auf Modelle zurück, um mit deren Hilfe

ihre Daten nachvollziehen und erklären zu können.

Auf dem Weg zu einem Modell der dritten Generation ist auch das EURAD-Modell, das im nächsten Abschnitt vorgestellt wird. Im Rahmen dieser Arbeit wurde mit dem EURAD-Modell eine Sommersmogepisode aus dem Jahr 1994 simuliert. Speziell für diesen Zeitraum, 19. – 30. Juli 1994, wurde die große Zahl der im vorigen Kapitel diskutierten Beobachtungen gesammelt. Die Episode ist bereits in früheren Arbeiten der EURAD-Gruppe untersucht worden (Hass et al., 1994, Memmesheimer et al., 1995a), und sie diente als Referenzfall für verschiedene Sensitivitätsstudien mit dem EURAD-Modell (Memmesheimer et al., 1996). In Abschnitt 3.2 wird die Episode beschrieben. Die meteorologische Situation und die Entwicklung der bodennahen Ozonkonzentration werden dargestellt. Im letzten Abschnitt des Kapitels sollen schließlich diese Ozondaten statistisch im Hinblick auf das klimatologische Verhalten des EURAD-Modelles sowie weitgehend in Analogie zur Diskussion der Beobachtungen untersucht werden.

### 3.1 Das EURAD-Modellsystem

Das EURAD-System wird ausführlich in Ebel et al. (1997) vorgestellt. Eine Beschreibung der einzelnen Komponenten des EURAD-Modelles findet man bei Grell et al. (1993) (die Beschreibung des Penn State/NCAR Mesoscale Model, MM5, dem meteorologischen Treiber), Memmesheimer et al. (1991, 1995b) (über das EURAD-Emissionsmodell, EEM) sowie bei Hass (1991) (eine Dokumentation des CTM2). Das EURAD-Modell ist ein regionales Gitterpunktsmodell mit frei wählbarem Integrationsgebiet. Es erlaubt eine sukzessive Verfeinerung der Auflösung in interessanten Teilen des Simulationsgebietes, wobei die horizontale Gitterweite in jedem Schritt um einen Faktor drei verkleinert wird. Im meteorologischen Teil gibt es die Option des Nestings mit Rückkopplung vom feineren zum gröberen Gebiet nach Zhang et al. (1986), im CTM2 ist ein Einweg-Nesting nach Pleim et al. (1991) möglich. Anfangs- und Randwerte erhält das MM5 in der EURAD-Version aus Analysen des EZMW (Europäisches Zentrum für mittelfristige Wettervorhersage). Für das CTM2 wird zur Initialisierung zur Zeit ein zweitägiger Vorlauf ausgehend von klimatologischen Schadstoffverteilungen — ein „Kaltstart“ des Modelles — durchgeführt. Die klimatologischen Daten dienen auch als Randwerte für das am größten aufgelöste Gitter (siehe dazu auch Kapitel 7). Aufbauend auf dem MM5 bestehen für das EURAD-Modell die Optionen einer hydrostatischen sowie einer nicht-hydrostatischen Dynamik. Vertikal wird eine geländefolgende Koordinate benutzt. Die hier benutzte Aufteilung besteht aus 15 Schichten zwischen dem Erdboden und dem Modelloberrand bei 100 hPa, dabei liegen ca. 7 Schichten in der atmosphärischen Grenzschicht. Horizontal rechnen das MM5 auf einem Arakawa-B- und das CTM auf einem Arakawa-C-Gitter (Arakawa und Lamb, 1977). Typische Gebietsgrößen sind ca. 80 × 80 Gitterpunkte, die horizontale Gitteraufteilung für die in dieser Arbeit untersuchte Simulation ist Abbildung 2.1 zu entnehmen. Sowohl das MM5 als auch das CTM bieten diverse Optionen zur Parametrisierung physikalischer Prozesse an, wie z. B. für die implizite und explizite Wolkenberechnung, Prozesse der planetaren Grenzschicht und der Bodenschicht sowie die atmosphärische Strahlung. Das CTM benutzt die Operator-Splitting Methode nach McRae et al. (1982), und die horizontale und vertikale Advektion wird nach Bott (1989a, b) gerechnet. Der chemische Reaktionsmechanismus ist der RADM2 (Stockwell et al., 1990), aber auch andere Mechanismen stehen zur Verfügung.

Das EEM (EURAD Emissionsmodell) berechnet die Emissionsraten für verschiedene anthropogen emittierte Stoffe abhängig von Tageszeit, Wochentag und Jahreszeit (Memmesheimer et al., 1991, 1995b). Dazu stehen z. B. Zahlen für die gesamte Menge an emittierten Stoffen pro Jahr und Staat zur Verfügung. Von EMEP werden Angaben auf einem recht groben Gitter

(ca. 150 km Gitterweite) bereitgestellt. Diese werden vom EEM auf die nötige zeitliche und räumliche Auflösung z. B. mit Hilfe von Angaben über die Bevölkerungsdichte abwärtskaliert. Biogene Emissionen werden abhängig von meteorologischen Parametern wie der Temperatur und dem vorliegenden Landnutzungstyp berechnet.

## 3.2 Die Sommersmogepisode 19. – 30. Juli 1994

Die in dieser Arbeit behandelte Sommersmogepisode gehört zu den — bezogen auf Deutschland — ausgeprägtesten des Jahres 1994, welches sich auch insgesamt durch einen überdurchschnittlich warmen Sommer (besonders die Monate Juli und August) auszeichnete (z. B. Memmesheimer et al., 1995b). Eine ausführliche Darstellung ist sinnvoll, um einerseits ein mehrdimensionales Bild der Episode zu zeigen, anders als es nur mit Punktmessungen möglich ist. Mittels graphischer Verarbeitung lassen sich diese zwar auch zweidimensional darstellen, aber eine physikalische Konsistenz der Daten kann nicht erreicht werden. Zum zweiten ist eine Schilderung der konkreten räumlichen und zeitlichen Entwicklung der Sommersmogepisode für ein Verständnis der Daten ebenso wichtig, wie deren Zusammenfassung in statistischen Maßzahlen. In diesem Abschnitt wird zuerst auf das während dieser Episode in Europa vorherrschende Wetter eingegangen, wie es z. B. in den Berliner Wetterkarten des Instituts für Meteorologie der Freien Universität Berlin oder dem Europäischen Wetterbericht des Deutschen Wetterdienstes dokumentiert ist. Dann wird die mit dem EURAD-Modell simulierte Entwicklung der Strömungsverhältnisse und der Verteilung des bodennahen Ozons beschrieben.

### 3.2.1 Die Wetterlage

Der 48-Stunden-Vorlauf für das CTM ist quasi auch der Vorlauf der Ozonepisode, denn am 19. und 20. Juli waren die Temperaturen mit durchschnittlich 20 – 25 °C zu kalt für hohe Ozonkonzentrationen. Erst in den nächsten Tagen stiegen die Temperaturen großräumig über 27 °C. Die Wettersituation während des Vorlaufes ist charakterisiert durch ein Hochdruckgebiet über Skandinavien zusammen mit einem Tief südlich von Finnland, die ins nördliche Deutschland mäßig warme Luft transportierten. Währenddessen bewegte sich ein Höhentief von der Bretagne in Richtung Italien und brachte dem südlichen Teil Deutschlands feuchtwarme Luft und den Seealpen bzw. später auch der italienischen Riviera kräftige Gewitter. Am 21. befand sich dieses Höhentief über dem Zentrum Italiens, so daß im Süden Deutschlands nur 17 – 23 °C erreicht wurden und die Sonne nur wenig schien. Im Norden betrug dagegen die Sonnenscheindauer um 15 Stunden und die Temperaturen stiegen bereits auf bis zu 27 °C.

Auch am 22. änderte sich nicht viel an der Wetterlage. Das Hoch über Skandinavien verstärkte sich wieder über der Ostsee und der Höhentrog wanderte von Gewittern begleitet langsam nach Osten bis zum Balkan, beeinflusste aber Mitteleuropa kaum, so daß im Südosten Deutschlands Temperaturen um 22 °C, im Norden aber bis zu 30 °C, gemessen wurden. Von Westen näherte sich ein neues Hochdruckgebiet dem Süden Englands, welches das Wetter in den nächsten Tagen mitbestimmte.

Es erreichte am 23. die Nordsee, während das östliche Hoch sein Zentrum über der Danziger Bucht hatte. In ganz Deutschland war es 26 – 32 °C warm. Den Weg des letzten Höhentiefs nahm direkt ein weiteres, dieses wanderte über den Golf von Biscaya, über Südfrankreich und erreichte am 24. Italien. Mitteleuropa war von einem Hochdruckgürtel bedeckt, nachdem sich die beiden Hochs vereinigt hatten, so daß die Temperatur in Deutschland bei sehr trockener

Luft 28 – 33 °C erreichte.

Auch am 25. setzte sich die Hitzewelle mit Temperaturen über 30 °C besonders im Norden Deutschlands fort. Eine nach Westen wandernde Konvergenzlinie ersetzte dort die sehr trockene durch feuchte Luft und führte mittags im Westen vereinzelt zu Gewitterbildung. Dahinter näherte sich über Frankreich und der Westküste Großbritanniens eine zum Frontensystem eines ausgeprägten Tiefs südlich von Island gehörende Okklusion.

Beide Luftmassengrenzen erreichten am 26. Ostdeutschland und brachten im Anschluß bis zum Mittag Gewitter über den Mittelgebirgen. Trotz der Feuchtigkeit stieg der Wärmeinhalt der Luft, in fast ganz Deutschland lagen die Temperaturen über 30 teilweise über 35 °C.

Am 27. war die Situation über Europa und dem östlichen Atlantik unverändert. Das Tief hatte sein Zentrum genau über Island und schob die Kaltfront schnell nach Nordeuropa während sie über dem Festland nur langsam vorwärts kam. An der Vorderseite des Wirbels kam über den Nordatlantik warme Luft nach Nordosten heran, bis über fast ganz Skandinavien. Bedingt durch das Frontensystem gab es eine sehr scharfe Grenze mit deutlich kälteren Temperaturen hinter der Front. In Deutschland war es mit 27 – 31 °C insgesamt etwas kälter.

Am 28. steilte sich der Langwellenhochkeil weiter auf und transportierte warme Luft bis nach Finnland, während sich die Hochdruckzelle über der Ostsee und damit auch das Frontensystem, das sich von Skandinavien über die Norsee bis Frankreich erstreckte, nur langsam nach Osten bewegten. Der Nordwesten von Deutschland wurde erneut von einer schwachen Konvergenzlinie überquert, dahinter lag die Front, in deren Verlauf ein kleiner Tiefdruckwirbel mittags vor der holländischen Küste entstand. Es gab kurze Gewitter, die Temperaturen waren nur im Nordwesten vorübergehend etwas niedriger.

Am 29. kam die Kaltfront zügiger in Richtung Osten voran, zeichnete sich dabei aber nur durch eine Winddrehung aus. Im Norden von Deutschland war es etwas kälter, sonst überall sehr heiß, im Westen gab es einige Gewitter. Derweil zog ein neues Hoch von England nach Osten und bewirkte ein Andauern des schönen Wetters.

Am 30., zum Abschluß der simulierten Episode, waren die Temperaturen insgesamt etwas kälter und erreichten nur im Osten Deutschlands mehr als 30 °C, so daß die Ozonlage sich größtenteils vorübergehend entspannte. Dies hielt aber nur kurz an, und die Sommersmoglage dauerte schließlich bis ungefähr zum 6. August an.

### 3.2.2 Die Entwicklung der Ozonepisode

Nach der Beschreibung der Wetterlage nun zur Entwicklung der Sommersmogepisode, wie sie vom EURAD-Modell simuliert wurde. Diskutiert wird die bodennahe Ozonverteilung, auf Beobachtungen soll in diesem Abschnitt nur nebenbei eingegangen werden. Höhere Konzentrationen traten während der Episode fast ausschließlich über Deutschland und den angrenzenden Ländern auf. Spanien und Portugal sind überhaupt nicht betroffen. Skandinavien wird erst gegen Ende der Episode von aus Zentraleuropa herantransportierten Ozonwolken erreicht. Ausnahmen sind einerseits der Bereich des Golfes von Genua, der nahezu während der ganzen Zeit hohe Werte aufweist, sowie einzelne Küstenstädte, wie Barcelona, Marseille, Athen, Kopenhagen, etc. Im Modell liegen diese Städte aufgrund der groben Auflösung oft in Gitterboxen, deren Landnutzungstyp Wasser ist. Den hohen Emissionswerten stehen dort weniger Senken gegenüber, da das Ozon über Wasser fast nicht trocken deponiert wird, also werden oft lokale Ozonspots über diesen Städten simuliert. Dies sind sehr interessante Effekte, die aber anhand von Messungen validiert werden müssen.

In den ersten Tagen der Episode werden kaum erhöhte Werte simuliert, im Gebiet des Nest 1 werden 70 *ppbv* kaum überschritten. Die Tagesmaxima steigen erst langsam bis zum 23., während sie am 24. wieder etwas schwächer sind. Bis zum Nachmittag des 25. herrscht dabei über Zentraleuropa (dem Nest 1-Gebiet) eine Ostströmung vor. Im groben Gitter finden in dieser Zeit zwei erwähnenswerte Transportereignisse statt. Am 21. zieht eine Ozonwolke vom Ärmelkanal aus entlang der Küste einer Front folgend nach Spanien und am 22. weiter an Portugal vorbei, bis ihre Überreste am Morgen des 24. im Süden das Modellgebiet verlassen. Auch bei den während dieser Tage vorliegenden relativ niedrigen Konzentrationen sind bereits die Abluftfahnen großer Städte wie Berlin zu beobachten. Ein Beispiel am 22. ist die Fahne von Hamburg (Mischungsverhältnisse über 100 *ppbv*), die sich westwärts auf die Nordsee bewegt. In der Nacht zum 23. wird sie wieder auf das Festland gedrückt und wandert bis weit in die Niederlande hinein.

Am 23. werden in Deutschland zum ersten Mal großflächig die 90 *ppbv*, der Grenzwert für die Benachrichtigung der Bevölkerung, überschritten. Maxima über 100 *ppbv* finden sich überwiegend im Nordwesten Deutschlands z. B. in der Abluftfahne von Nordrhein-Westfalen, die sich in Richtung Belgien hinzieht. Hohe Werte liegen auch in Nordfrankreich und den Benelux-Staaten vor. Ein weiteres Transportphänomen ist im Westen von Großbritannien zu beobachten. Eine Abluftfahne zieht von Wales westwärts aufs Meer hinaus und dann Richtung Norden und löst sich erst am Abend des 25. am Nordrand des Modellgebietes auf. Verantwortlich ist dasselbe Frontensystem, das im Süden für den Transport entlang der Küste der Iberischen Halbinsel verantwortlich ist. Damit zusammenhängend ist auch eine Ozonwolke, die ortsfest über der Biscaya liegt. Die Ozonmischungsverhältnisse in Bodennähe liegen in diesen Wolken bei über 70 – 80 *ppbv*.

Die Konzentrationen am 24. sind allgemein etwas niedriger als am 23. Die oben beschriebene Front drückt die ozonreiche Luft nach Osten bis zur Nordseeküste Englands, so daß nun über Großbritannien und der Biscaya niedrige Ozonwerte vorliegen. Im Nest 1-Gebiet sind leichte Abluftfahnen von z. B. Hamburg, Bremen und Rotterdam über der Nordsee zu sehen. Im Laufe des Tages entstehen sie, vereinigen sich (außerhalb des Nest 1-Gebietes) mit einer Fahne aus dem Südosten Englands, und diese zieht dann entlang des Frontensystems nach Norden und in den nächsten Tagen weiter nach Osten.

Ab dem 25. bildet sich die Sommersmogepisode voll aus, besonders hohe Werte liegen im Norden und im Osten Deutschlands vor. Der Wind dreht mit der sich von Westen nähernden Konvergenzlinie. Dort strömen die Abluftfahnen aus den Niederlanden, dem Ruhrgebiet (über Bremen hinweg) und z. B. aus Berlin, die sich über Hamburg weiter anreichert (über 100 *ppbv*), zusammen und vereinigen sich mit der Wolke, die sich am Vortag im Westen gebildet hatte. Die große Wolke zieht in einem Band über die Nordsee nach Norden entlang der Küste von Dänemark, nun nur noch auf dem groben Gitter zu beobachten.

Im Laufe des 26. (siehe Abbildung 3.4) verlagert sich die Konvergenzlinie weiter nach Osten, und die Fahne erstreckt sich über Dänemark und Norwegen. Die dieser Linie folgende Front hinterläßt z. B. über den Niederlanden gereinigte Luft. Dagegen bauen sich am frühen Morgen bereits die vom Vortag noch hohen Ozonwerte über den Mittelgebirgen, wie dem Taunus und dem Westerwald auf. Werte über 90 – 100 *ppbv* werden auch im Saarland und dann von Mannheim über Frankfurt bis zum Osten von Nordrhein-Westfalen erreicht. Dort ist es wieder eine Abluftfahne in der Leelage des Ruhrgebietes, wo jedoch selbst ein relatives Konzentrationsminimum prognostiziert wird, das sich allerdings in Beobachtungen nicht so stark ausgeprägt findet. Seit dem Vortag herrschen in der Nordhälfte von Deutschland hinter der Front leichte Westwinde vor, so daß die Abluftfahnen, z. B. die von Berlin, die Richtung ändern. Im übrigen

Europa bleibt es für die folgenden Tage mit Ausnahme des Nordwestens recht windschwach, bis sich erst am 30. wieder leichte Südostwinde einstellen.

Mit dem 27. erreicht die Sommersmogepisode ihren Höhepunkt. Über dem gesamten Gebiet des Nest 1 ist es windstill, so daß sich großflächig hohe Ozonkonzentrationen aufbauen können. Nur im Norden treibt neuerlich eine schwache Konvergenzlinie eine Ozonfahne aus Richtung Bremen nach Norden. Die Ozonwolke in Nordeuropa gelangt im Bereich des Frontensystems weiter ostwärts über Schweden bis über die Ostsee — dies sind in diesem Gebiet die ersten Auswirkungen der Episode. Die höchsten Werte von Deutschland (über 90 – 100 *ppbv*) werden für die gesamten alten Bundesländer und den südlichen Teil von Brandenburg berechnet. Werte über 60 – 70 *ppbv* treten auch im Osten Frankreichs und über Belgien auf, in den Niederlanden dagegen nur im Bereich der Grenze zu Deutschland, da der Nordosten von Holland unter dem Einfluß sauberer Luftmassen steht. In dieser Nacht gehen die Konzentrationen außer in den städtischen Gebieten nur sehr langsam zurück. In der Eifel z. B. halten sich Mischungsverhältnisse über 100 *ppbv* bis in den Morgen des 28.

Der Rückgang der hohen Ozonwerte hängt mit der erneuten Passage einer Konvergenzlinie mit nachfolgender Front zusammen. Diese erstreckt sich von Nordrhein-Westfalen über Hamburg und Dänemark. Westlich der Front sind die Ozonwerte niedrig, zwischen Front und Konvergenzlinie treten kaum hohe Werte auf. Östlich der Linie sind aber im ganzen Nest 1-Gebiet die Werte hoch und erreichen Maxima westlich von Berlin, in Mecklenburg-Vorpommern und in Rheinland-Pfalz. Den ganzen Tag sind über der Ostsee hohe Ozonkonzentrationen zu sehen.

Am 29. ist das Bild ähnlich, außer daß die Luftmassengrenzen weiter südöstlich vorgerückt sind, sie erstrecken sich nun über Baden-Württemberg, Nord-Bayern und Berlin bis zur Ostküste von Schweden. Westlich davon ist die Luft sauberer als am Vortag mit einem breiten Übergangsbereich zwischen der Konvergenzlinie und dem Frontensystem.

Mit dem Wechsel auf südöstliche Winde treten schließlich am 30. hohe Konzentrationen nur noch im Norden von Baden-Württemberg, in der Linie Mannheim – Frankfurt und im Westen von Nordrhein-Westfalen auf. Eine ostwestlich orientierte Ozonwolke zieht von Süden über Berlin hinweg.

### 3.3 Auswertung der Ozon-Bodendaten

Für die Validierung eines Modelles und den Nachweis seiner Prognosefähigkeit ist die Kenntnis der Modellklimatologie wichtig. Ebenso sind Informationen über die klimatologischen Eigenschaften für die objektive Analyse in Kapitel 5 nötig. Für diese Zwecke soll hier ein Anfang mit der statistischen Auswertung der räumlichen und zeitlichen Entwicklung der Ozonverteilung der untersten Modellschicht (ca. 0 – 70 m über Grund) gemacht werden. Die Untersuchung der Ergebnisse der oben beschriebenen Episode kann allerdings auch nur ein erster Schritt in diese Richtung sein und kann keine umfassende Klimatologie liefern, es können aber Methoden getestet und erste Hinweise auf das mittlere Verhalten des Modelles erzielt werden.

Es ist zu erwarten, daß die Modellklimatologie von der Gitterweite abhängt, da aufgrund der Nichtlinearität der Chemie eine große Abhängigkeit der Ozonkonzentration von dem vorherrschenden *VOC/NO<sub>x</sub>*-Verhältnis besteht. Dieses wiederum hängt in starkem Maße von den Eingangsdaten des Modelles insbesondere den Emissionen ab. Jang et al. (1995a, b) demonstrieren, daß z. B. Transport als Funktion der Gitterweite ein linearer Prozeß, die Chemie in diesem Sinne aber nichtlinear ist. Sie zeigen dies mit dem Vergleich von Rechnungen auf unterschiedlichen

Gitterweiten, wobei die Summenwerte der Emissionen gleich, die  $VOC/NO_x$ -Verhältnisse der feineren Gitter aber von denen der gröberen Gitter abweichen. Zum Beispiel sind Autobahnen in den  $NO_x$ -Emissionen bei Gitterweiten von 18 km (Nest 1) noch nicht aufgelöst, während sie bei einer Gitterweite von 6 km (einem möglichen Nest 2) bereits deutlich hervortreten.

Hier sollen ebenfalls unterschiedliche Auflösungen diskutiert werden. Der Effekt auf das Modellverhalten wird allerdings unrealistisch klein sein, da die dieser Arbeit zur Verfügung stehenden Emissionsdaten interpoliert sind, also auch bei höherer Auflösung, z. B. Autobahnen, aufgrund des Verfahrens nicht erfaßt werden können. Die Wichtung der Emissionen im EEM mittels der Einwohnerdichte läßt trotzdem einen Effekt erwarten, da sie zu stärkeren Gradienten in den Emissionen führt. Es werden dazu immer die verschiedenen Auflösungen des groben und des Nest 1-Gitters nebeneinander betrachtet. Im Hinblick auf die weiteren Anwendungen der Ergebnisse in dieser Arbeit sollen dieselben Untersuchungen, wie im vorigen Kapitel für die Meßdaten, vorgenommen werden. Das sind Zeitreihen an ausgewählten Gitterpunkten, Häufigkeitsverteilungen der aufgetretenen Werte und Korrelationsuntersuchungen.

Eine Charakterisierung der Regime an einzelnen Gitterpunkten ist an dieser Stelle nicht sinnvoll, da die Methode aus Abschnitt 2.3 eine subjektive Betrachtung jedes einzelnen Gitterpunktes erfordern würde. Es wird deshalb auf Abschnitt 4.5 verwiesen, wo eine objektive Klassifizierung in aktueller sowie in klimatologischer Hinsicht vorgestellt wird. Die Untersuchungen von Gitterpunkten über Land werden getrennt von solchen über Wasser vorgenommen. Diese Unterscheidung konnte für die Messungen nicht durchgeführt werden, da ausschließlich Daten landgestützter Meßstationen vorliegen. Ein deutlicher Unterschied ist zu erwarten, da über Wasser sowohl die „frischen“  $NO_x$ -Emissionen fehlen — die Luft ist bereits gealtert —, als auch die trockene Deposition des Ozons verschwindend klein ist. Des weiteren bietet die Episode — zumindest im groben Gitter — an, den Einfluß längerer Photosmogepisoden auf das Modellverhalten zu untersuchen. Denn, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, lagen im betrachteten Zeitraum fast ausschließlich in Zentraleuropa Photosmogbedingungen vor, und somit können einzelne Gebiete separat untersucht werden.

In Abbildung 3.1 sind die modellierten Zeitreihen für vier Gitterpunkte, die alle im Gebiet des Nest 1 liegen, gezeigt. Sie sind so ausgesucht, daß möglichst unterschiedliche Regime betrachtet werden. So steht „Ruhrgebiet“ (die Bezeichnungen sollen nur ungefähr die geographische Lage der Gitterpunkte wiedergeben) für die am stärksten belasteten Gebiete des Simulationsgebietes. An den meisten Tagen gehen nachts die Ozonkonzentrationen auf null zurück, wie es für Verkehrs- und Stadtstationen typisch ist. Allerdings gibt es aufgrund der groben Auflösung insbesondere der Emissionsdaten nur sehr wenige Gitterpunkte mit diesem Belastungsgrad (siehe weiter unten). Der Vergleich grobes Gitter/Nest 1 deutet an, daß bei der feineren Auflösung die Werte am Nachmittag etwas schneller abfallen als bei der gröberen Auflösung und länger niedrig bleiben, also einen belasteteren Charakter aufweisen.

Auf einen generellen Trend zu mehr „städtischem“ Verhalten bei feinerer Auflösung läßt sich aber an diesem einen Beispiel nicht schließen. Wie im vorigen Abschnitt erwähnt, ist im Ruhrgebiet, während die Sommersmogepisode am 25. – 27. ihr Maximum erreicht, ein lokales Minimum zu beobachten. In diesem Sinne sind die Konzentrationsverläufe am 25. sowie am 27. und 28. Juli interessant. Während an den ersten beiden genannten Tagen im groben Gitter gerade zur Zeit des Tagesmaximums die Ozonkonzentration leicht einbricht, im Nest 1-Gitter aber weiter anwächst (am 27. beträgt der Unterschied bis zu ca. 30 ppbv), ist es am 28. gerade umgekehrt. Eine ausführliche Diskussion dieses Effektes ist an dieser Stelle nicht möglich, es zeigt sich aber, daß unter gewissen Umständen das Verhalten der simulierten Ozonkonzentration extrem sensitiv ist, obwohl i. allg. die Unterschiede zwischen den Modellläufen gering sind.

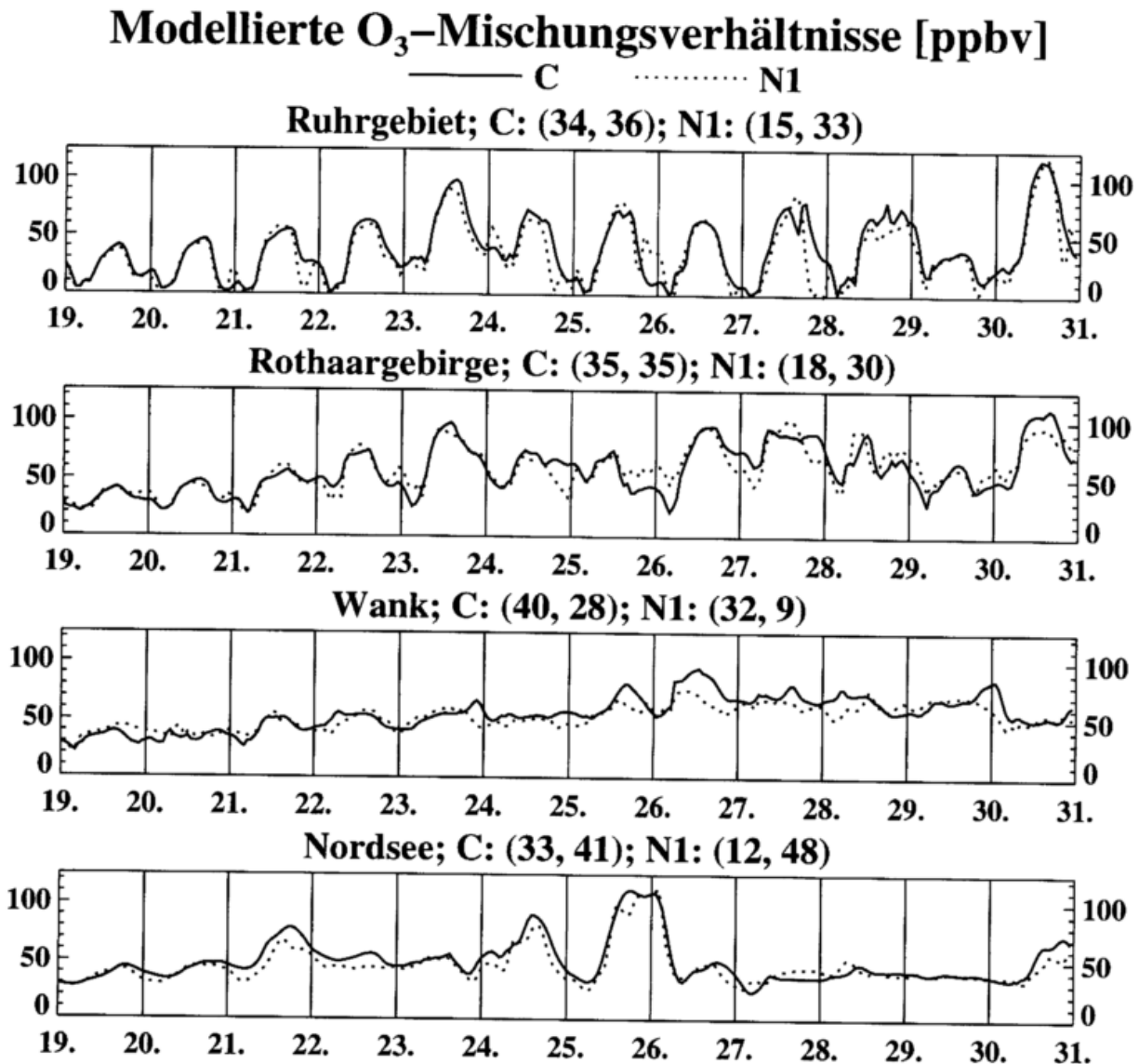


Abbildung 3.1: Zeitreihen modellierter Ozonmischungsverhältnisse (in ppbv) für verschiedene typische Regime; grobes Gitter durchgezogen, Nest 1 gepunktet dargestellt.

Der Gitterpunkt „Rothaargebirge“, auch in Nordrhein-Westfalen gelegen, zeigt ein typisch ländliches Verhalten mit deutlich ausgeprägten Tagesgängen, aber auf einer hohen Hintergrundkonzentration aufsetzend. Der Verlauf der Sommersmogepisode in dieser Zeitreihe — die Entwicklung der Tagesmaxima bzw. -mittelwerte — entspricht dem nahegelegenen „Ruhrgebiet“. Zwischen den verschiedenen Gittern ist kein tendenzieller Unterschied zu beobachten.

Mit „Wank“ wird ein Gitterpunkt bezeichnet, der den Charakter einer Bergstation besitzt. Hier bietet sich der Vergleich mit der gemessenen Zeitreihe aus Abbildung 2.8 an. Die simulierten Werte zeigen einen anderen Tagesgang als die gemessenen. Der beobachtete Tagesgang weist ein umgekehrtes Vorzeichen auf. Die Beobachtungen zeigen zum größten Teil höhere Werte. Andererseits ist der qualitative Verlauf, z. B. der generelle Trend der Episode sowie der abrupte Abfall in der Nacht zum 30. gut getroffen. Bei Bergstationen ist der direkte Vergleich mit Messungen kritisch, da die Stationen einerseits aufgrund der großen Höhen zeitweise in der freien Troposphäre liegen und deshalb vom großskaligen Transport beeinflusst sind. Andererseits können aber auch Einflüsse beobachtet werden, die typisch für die Grenzschicht sind und durch

Talwinde aus verschmutzten Gebieten herantransportiert werden. Dagegen liegen, durch die Formulierung der Modelle bedingt, alle Gitterpunkte der niedrigsten Modellschicht tagsüber innerhalb der PBL. Je nach aktueller Situation sind solche Stationsdaten also mit simulierten Daten aus unterschiedlichen Modellschichten zu vergleichen. Die feinere Auflösung des Nest 1 zeigt einen leichten Trend zu einem flacheren — eher den Beobachtungen entsprechenden — Verlauf der Tagesgänge. Auch hier sind die Zeitreihen zu kurz für belastbare Schlußfolgerungen.

Schließlich wird ein Gitterpunktstyp betrachtet, der in den Meßnetzen nicht vorkommt, ein „Wasserpunkt“. Der Gitterpunkt „Nordsee“ liegt im Modell ca. 20 – 30 km vor der deutschen Küste. Die Zeitreihe verläuft insgesamt wesentlich glatter als bei den Landpunkten. Tagesgänge sind nur sehr schwach ausgeprägt, die trockene Deposition und die Emissionen sind über dem Wasser nicht wirksam. Auftretende Maxima (z. B. am 24. und 25. – 26.) sind, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, auf den Transport von Abluftfahnen von Ballungsgebieten aus unterschiedlichen Richtungen und unterschiedlichen Alters zurückzuführen. Eindeutig ist, daß mit der feineren Auflösung eine bessere Wiedergabe transportbedingter steiler Gradienten (hier zeitlich) möglich ist.

Die Zeitreihen in Abbildung 3.1 beginnen mit der Initialisierungsphase am 19. Juli 00 UTC. Zu sehen ist, im Vergleich mit der täglichen Entwicklung im Vortlauf der Episode, daß an allen gezeigten Gitterpunkten die Tagesgänge sofort ihren für diesen Gitterpunkt typischen Verlauf annehmen (dies ist für die Möglichkeiten der objektiven Beurteilung des Ozonregimes in Abschnitt 4.5 besonders wichtig). Die Anfangswerte des Ozons zu Beginn der Initialisierungsphase haben also keinen qualitativen, sondern höchstens einen quantitativen Einfluß auf die Konzentrationsverläufe der ersten Tage einer simulierten Episode.

Deutlichere Informationen über das Modellverhalten liefern Häufigkeitsverteilungen der Ozonwerte. Die simulierte Episode ist zu kurz, als daß diese für einzelne Gitterpunkte aussagekräftig wären. Eine Unterscheidung nach Regimen wie in Abschnitt 2.3 für die Meßdaten wäre daher nicht sinnvoll. Es werden also eine Anzahl von Punkten zusammen untersucht, dabei ist die Wahl der für eine Häufigkeitsverteilung herangezogenen Gitterpunkte bei der Diskussion entscheidend. So ist einerseits, wie gerade besprochen, eine Trennung zwischen Land- und Wasserpunkten wichtig, aber auch die synoptische Entwicklung während der Episode ist zu beachten, da sie zu kurz für „klimatologische“ Betrachtungen ist. In Abbildung 3.2 wird dazu nicht nur zwischen allen Gitterpunkten (linke Spalte) sowie Land- bzw. Wasserpunkten (mittlere bzw. rechte Spalte) unterschieden. Da die simulierte Episode hauptsächlich im vom Nest 1 abgedeckten Gebiet Sommersmogcharakter aufweist (siehe den vorigen Abschnitt), werden neben den Häufigkeitsverteilungen für das gesamte grobe und das Nest 1-Gitter (obere bzw. untere Zeile) auch welche für die Gitterpunkte des groben Gitters gezeigt, die das Nest 1-Gebiet abdecken (mittlere Zeile).

Aufgrund der Anzahl und Unterscheidungen der Gitterpunkte kann man für die Diskussion der Häufigkeitsverteilungen hoffen, trotz der Kürze der Episode einige belastbare, aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten. Als erstes ist zu sagen, daß die Form der Häufigkeitsverteilungen für die gemessenen Werte — der größte Teil der Stationen liegt im Nest 1-Gebiet — sich in bezug auf die in Abschnitt 2.3 entwickelten Kriterien stark von denen für das grobe Gitter unterscheiden. Die Stationen sind also nicht für das gesamte Gebiet repräsentativ. Einerseits zeigt die spezielle Ozonepisode, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, starke regionale Unterschiede im Verhalten des modellierten Ozons, andererseits unterliegen verschiedene Gebiete Europas grundsätzlich anderen „Regimen“. Nur für das gesamte grobe Gitter (obere Reihe) sind die Häufigkeitsverteilungen für Land- und Wasserpunkte ziemlich ähnlich. Mittelwerte, Mediane, Standardabweichungen und die Perzentile für die höheren Werte stimmen jeweils gut überein.

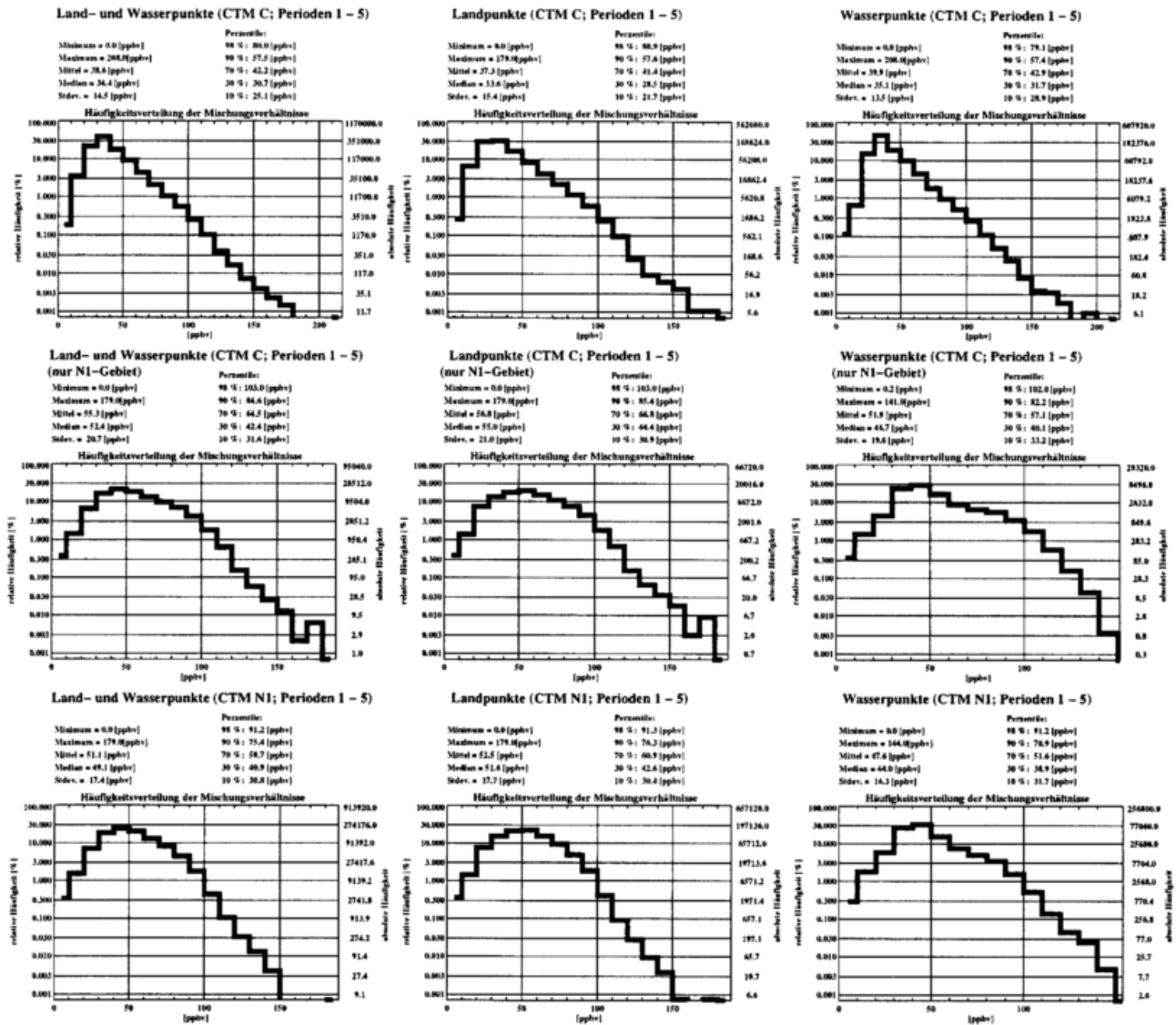


Abbildung 3.2: Häufigkeitsverteilungen modellierter Ozonmischungsverhältnisse; oben für die Gitterpunkte des groben Gitters, in der Mitte für den Teil des groben Gitters, der das Nest 1-Gebiet abdeckt, unten für die Gitterpunkte des Nest 1; linke Reihe alle Punkte, mittlere Reihe nur Landpunkte und rechte Reihe nur Wasserpunkte.

Nur die 10%- und 30%-Perzentile sind für die Landpunkte signifikant niedriger. Dies ist z. B. eine Folge der trockenen Deposition und der nächtlichen Umwandlung von Ozon in  $NO_2$  unter Verbrauch der frisch emittierten  $NO$ -Konzentrationen. In den Häufigkeitsverteilungen für das gesamte grobe Gitter sind die Klassen der hohen Konzentrationen deutlich unterbesetzt, da sich im Gegensatz zum Nest 1-Gebiet als auch zu den Messungen nur auf einem kleinen Teil des gesamten Gitters Ozonepisoden ausbilden.

Die entsprechenden Verteilungen auf dem Nest 1-Gebiet gleichen sich für die grobe und die feinere Auflösung. Ein Unterschied zwischen den Statistiken für die Landpunkte ist eine Tendenz zu höheren Werten beim groben Gitter. Dort führt dies zu einem Bild, das dem einer Waldstation entspricht (vergleiche die Abbildungen 2.7 und 2.8). Das Nest 1 tendiert dagegen eher zu einem etwas städtischeren Verhalten, nach der Einteilung aus Abschnitt 2.3 zu der Kategorie „Fläche“. Allerdings hat die Klasse mit den niedrigsten Konzentrationen deutlich weniger Anteil als bei den Messungen beobachtet wird, das Modell kann die niedrigen nächtlichen Werte

nur bedingt simulieren.

Die Häufigkeitsverteilungen für die Wasserpunkte auf allen Gebieten sowie für alle Typen im gesamten groben Gitter fallen (in der gewählten Darstellungsart mit logarithmischer  $y$ -Achse) vom Maximum linear ab. Dagegen ähneln die Häufigkeitsverteilungen für die Landpunkte auf dem Nest 1-Gebiet denen der entsprechenden Meßstationen mit einem runderen, symmetrischeren Verlauf. Auf dem Nest 1-Gebiet äußert sich der Land/Wasser-Unterschied also in einer Verschiebung der mittleren Wertebereiche. Während die hohen und niedrigen Konzentrationen ähnlich verteilt sind, sind die übrigen Werte über Wasser generell niedriger. So liegen die Mediane für die Wasserhäufigkeitsverteilungen um fast 10 *ppbv* niedriger als für Landpunkte. Eine Erklärung unter Berücksichtigung der vorliegenden synoptischen Situation ist, daß über Wasser in der Regel die Werte niedriger sind. Die häufig auftretenden, persistenten Abgasfahnen aber führen zu dieser Verschiebung in den Häufigkeitsverteilungen, die die Abweichung zur Verteilung der Werte für das gesamte grobe Gitter darstellt. Die chemische Produktion von Ozon wird teilweise erst ab einer bestimmten Distanz im Lee der Emissionsgebiete wirksam (z. B. Imhoff et al., 1995). Dies war in der untersuchten Episode bei vorherrschenden Ostwinden in dem Nest 1-Gebiet oft über der Nordsee der Fall. — Leider fehlen entsprechende Bilder für gemessene Werte.

Für die Beurteilung des klimatologischen Modellverhaltens ist wichtig, daß sowohl Land- als auch Wasserpunkte für die grobe Auflösung mit Ausnahme des 10%-Perzentils zu signifikant höheren Werten hin verschoben sind, z. B. sind die Mittelwerte jeweils ca. 4 *ppbv*, die 90%-Perzentile um 10 *ppbv* höher als bei der feineren Auflösung. Bemerkenswert ist auch ein Vergleich der jeweiligen Standardabweichungen der Verteilungen. Sie sind weitestgehend davon unabhängig, ob es sich um Land- oder um Wasserpunkte handelt. Für das grobe Gitter auf dem Nest 1-Gebiet (über 20 *ppbv*) sind sie generell höher als die der feineren Auflösung (ca. 17 *ppbv*), während erwartungsgemäß das gesamte grobe Gitter die niedrigsten Standardabweichungen in den Ozonkonzentrationen (im Mittel 14.5 *ppbv*) aufweist.

Insgesamt ist zur Betrachtung der Häufigkeitsverteilungen zu sagen, daß bei einem Vergleich z. B. verschiedener Gitterauflösungen — aber auch beim Vergleich mit Messungen — auf die Wahl der Datengrundlage zu achten ist. Bei gleichem betrachteten Gebiet und Simulationszeitraum tendiert das grobe Gitter in der untersuchten Episode zu einem ländlicheren Verhalten mit durchschnittlich höheren Werten. Nur die niedrigen Werte treten mit vergleichbarer Häufigkeit auf liegen aber deutlich höher als bei gemessenen Werten. Die Konzentrationen für die Landpunkte sind eher normalverteilt als die für die Wasserpunkte. Aber auch dieser Unterschied verschwindet bei der Betrachtung des gesamten groben Gitters. Dies relativiert auch die Ergebnisse aus Abschnitt 2.3. Da die Stationen hauptsächlich im Nest 1-Gebiet liegen, müssen die aus diesen Daten gezogenen Schlußfolgerungen aber nicht ohne weiteres auf ganz Europa extrapolierbar sein!

Eine weitere geeignete Größe zur Bewertung des Modellverhaltens ist der nach Gleichung 2.1 berechnete Korrelationskoeffizient. Wieder wurden das gesamte grobe Gitter, die Gitterpunkte der groben Auflösung auf dem Nest 1-Gebiet und das Nest 1-Gitter getrennt untersucht. Im Gegensatz zu den knapp 400 Gitterpunkten grober Maschenweite auf dem Nest 1-Gebiet sind die Anzahlen der Gitterpunkte auf den gesamten Gittern zu groß. Deshalb wurden nur 400 ausgewählte Gitterpunkte aus diesen Gebieten betrachtet. Sie überdecken das jeweilige Gebiet wie eine Wolke mit zum Zentrum hin zunehmender Dichte. Abbildung 3.3 zeigt in den ersten beiden Reihen die Ergebnisse für das gesamte grobe Gitter (oben über den gesamten Entfernungsbereich, darunter die horizontale Skala, die der Skala des Nest 1 entspricht), die dritte Zeile enthält die Korrelationen für die das Nest 1-Gebiet bedeckenden groben Gitterpunkte und

## Korrelationen zwischen den Gitterpunkten (je 10 Einzelwerte zu einem Balken zusammengefaßt)

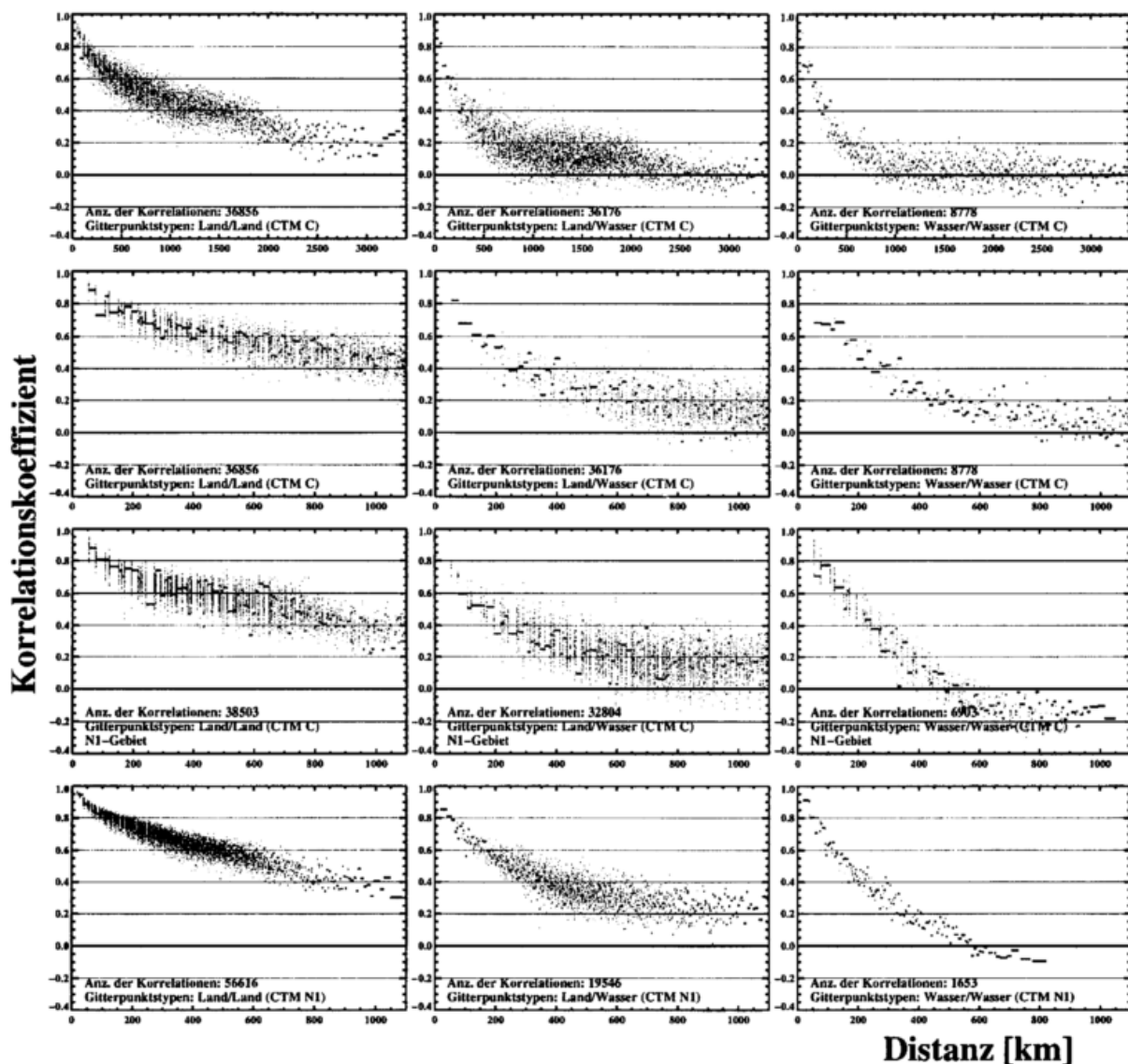


Abbildung 3.3: Korrelationen zwischen den an den Gitterpunkten simulierten Zeitreihen des bodennahen Ozons gegen die Entfernung zwischen den Gitterpunkten (in *km*); rechte Spalte Korrelationen zwischen Landpunkten, mittlere Spalte Korrelationen zwischen Land- und Wasserpunkten, rechte Spalte Korrelationen zwischen Wasserpunkten; obere Zeile gesamtes grobes Gitter, zweite Zeile wie obere nur anderer Entfernungsbereich, dritte Zeile Korrelationen für die Gitterpunkte des groben Gitters, die im Nest 1-Gebiet liegen, untere Zeile Nest 1-Gitter; es sind wie in Abbildung 2.9 zehn einzelne Punkte zu einem dargestellten Wert zusammengefaßt worden.

die vierte die Werte für das Nest 1-Gitter. Wie in Abbildung 2.9 sind je zehn entfernungsmaßig benachbarte Werte gemittelt als ein „Balken“ dargestellt. Das hat den Effekt, daß bei kurzen Distanzen oftmals aufgrund der nur diskret möglichen Gitterpunktabstände die Sprünge zwischen diesen mit relativ langen „Balken“ übersprungen werden, während an den diskreten Distanzen selbst mehrere streuende Punkte zu sehen sind.

Deutlich unterscheiden sich die Korrelationen zwischen Land- (linke Spalte) und Wasserpunkten (rechte Spalte). Die Korrelationslängen (Distanz, bei der die Korrelationen unter den Wert

$1/e \approx 0.37$  fallen) betragen ca. 2000 bzw. 300 – 400 km, nur geringfügig über dem kleineren Wert liegt die Korrelationslänge für die gemischten Korrelationen (mittlere Spalte). Der Hauptgrund dafür ist, daß die typischen Tagesgänge der Ozonkonzentrationen über Wasser nicht auftreten, so daß dort die wichtigste Ursache der hohen Korrelationen, die auch für die gemessenen Werte typisch sind, fehlt. Ähnliche Ergebnisse zeigt Abbildung 2.9 für die Messungen. Die Korrelationslängen für die im Simulationszeitraum gemessenen Konzentrationen stimmen gut mit den hier gezeigten überein. Ebenso ergab sich für die Korrelationen der beobachteten Tagesmaxima ein deutlich niedrigerer Wert analog zu der niedrigeren Korrelation für Wasserpunkte.

Bei Entfernungen zwischen den Gitterpunkten von über ca. 2000 km (ca. 37 grobe Gitterweiten) ist für das gesamte grobe Gitter — außer für die Wasserpunkte, bei denen dort die Korrelationen im Mittel null betragen, — ein abrupter Abfall der Korrelation zu beobachten. Ein Vergleich mit Meßwerten hilft hier nicht zur Erklärung, da das Stationsnetz für diese Distanzen nur eine inhomogene Verteilung aufweist. Allerdings ist ein ähnlicher Einbruch für die Beobachtungen bei Entfernungen von ca. 700 – 900 km zu beobachten, bei dem als Grund ebenfalls die Inhomogenität der Stationsverteilung (und insbesondere der Stationstypenverteilung) naheliegt. 2000 km entsprechen ungefähr der Entfernung von Skandinavien zum Mittelmeer, so daß durch die Unterschiede der entsprechenden Klimata — zusammen mit einer inhomogenen Land-/See-Verteilung — eine Erklärung möglich ist. Auch kann dies zum Teil ein Effekt der Modellränder sein. Da es sich aber um Daten der untersten Schicht (geringe Windgeschwindigkeiten) handelt, ist anzunehmen, daß die Randwerte dort schnell vergessen werden und deren Einfluß auf die Korrelationslängen sekundär ist.

Die Abbildungen für die Landpunkte stimmen zwischen den verschiedenen Auflösungen gut überein. Die Landpunkte-Korrelationen des Nest 1 zeichnen sich durch eine geringere Streuung aus. Der Verlauf ist in guter Übereinstimmung mit den beobachteten Daten. Allerdings gibt es in Modellen kein „weißes Rauschen“, das in Messungen immer vorhanden ist. So sind die zu Distanzen von null extrapolierten Korrelationen genau eins, während sie für die Beobachtungen immer kleiner eins sind.

Einige Unterschiede sind auch für die Ergebnisse der Wasserpunkte (und entsprechend in etwas abgeschwächter Form für die gemischten Punktepaare) zu sehen. Die größten Korrelationen zeigt das gesamte grobe Gitter, die niedrigsten der Nest 1-Ausschnitt des groben Gitters. Der Grund liegt wahrscheinlich wieder in der Wahl sowohl der betrachteten Auswahl an Gitterpunkten als auch der speziellen Episode. Für belastbare Hinweise auf die Klimatologie des Modelles reichen diese Daten nicht aus.

Zum Abschluß der Diskussion der modellierten bodennahen Ozonkonzentrationen soll noch ein Beispiel für zweidimensionale Verteilungen gegeben werden. In Abbildung 3.4 sind die Ergebnisse für den 26. Juli 1994 14 UTC gezeigt. Dies ist eine für Gitterpunktsdaten naheliegende Art der Darstellung. Angewandt auf Stationsmeßdaten bringt solch eine Präsentation in bezug auf Ausführung und Interpretation viele Probleme mit sich, was u. a. eine Hauptmotivation für die Entwicklung der objektiven Analyse ist (Kapitel 5). Zu sehen sind die Mischungsverhältnisse der untersten Modellschicht (0 – ca. 70 m über dem Boden). Der Termin wurde ausgewählt, da er bei der Simulation Probleme bereitete (Hass et al., 1994, Memmesheimer, 1995a). Gut zu sehen ist das Frontensystem westlich von Skandinavien und Dänemark und quer über den Niederlanden, im Nest 1 ist auch eine vorgelagerte Konvergenz in der Ozonverteilung über Dänemark zu erkennen (siehe den vorigen Abschnitt). Hauptsächlich über dem Nest 1-Gebiet liegen hohe Konzentrationen vor, aber auch im nordwestlichen Mittelmeer vor den großen Emissionsquellen, wie Barcelona, Marseille oder Rom. Hinter der Front im nördlichen Holland und über Großbritannien (grobes Gitter) sind die Werte sehr niedrig. Gut zu sehen ist der im Nest 1 we-

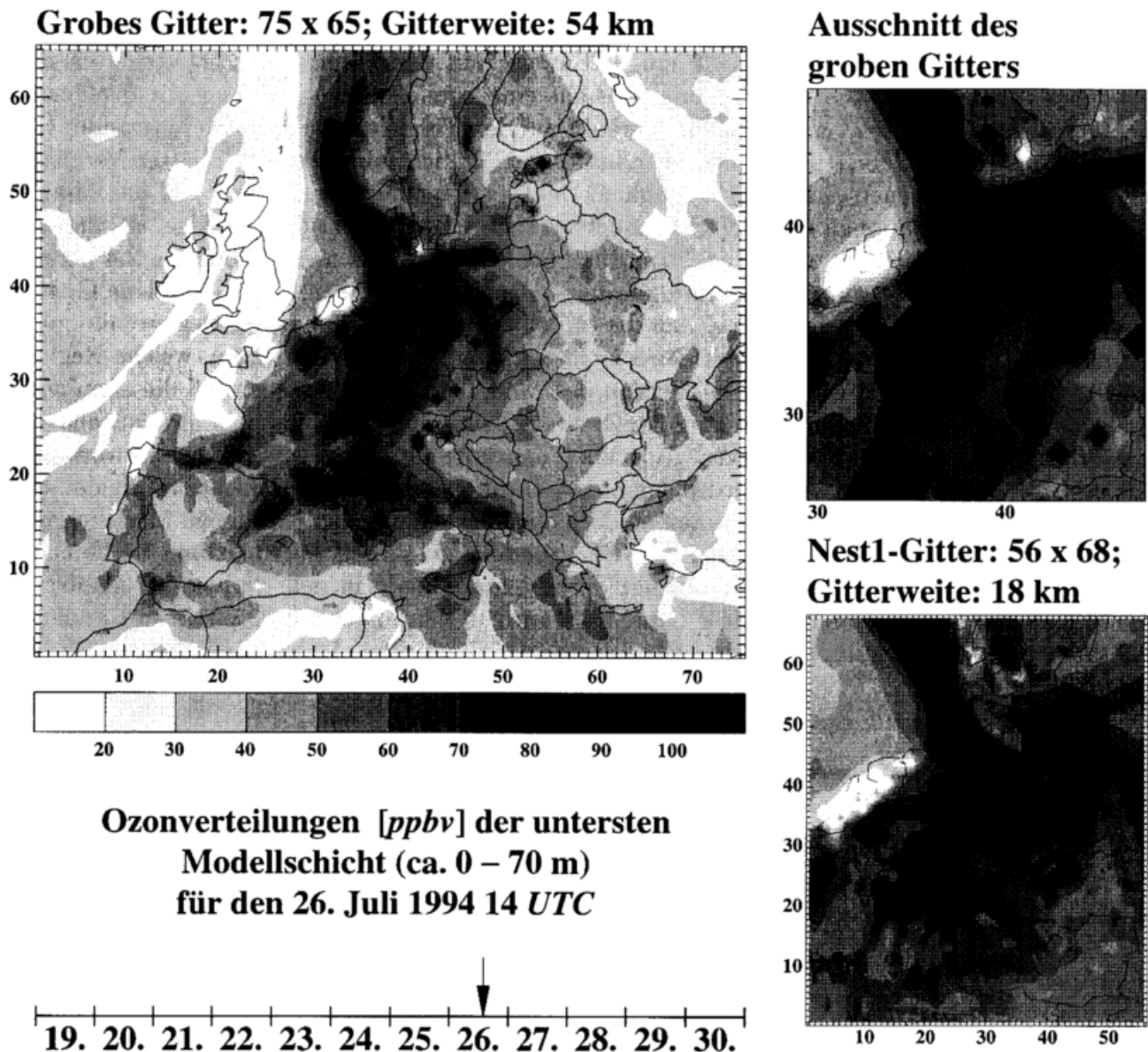


Abbildung 3.4: Modellerte zweidimensionale Verteilung des bodennahen Ozons (unterste Modellschicht, 0 – ca. 70 m über dem Boden) für den 26. Juli 1994 14 UTC. Gezeigt sind die Resultate des groben Gitters für das gesamte Gebiet und den Nest 1-Ausschnitt und des gesamten Nest 1-Gitters.

sentlich schärfer simulierte, durch die Verlagerung des Frontensystems bedingte Gradient. Das Problem, das die Modelle mit diesem Tag haben, sind zu niedrige Ergebnisse über Deutschland. Im gezeigten Beispiel wird dies besonders an dem lokalen Minimum über dem Ruhrgebiet deutlich. In dessen Abgasfahne, zum gezeigten Zeitpunkt ungefähr über dem Egge-Gebirge im Osten von Nordrhein-Westfalen, steigen die Werte allerdings an. Auch dieses Phänomen äußert sich in den verschiedenen Auflösungen auf unterschiedliche Art. Dies zeigt, daß die Modellresultate nicht nur in bezug auf den Transport (schärfere Gradienten, zwei Fahnen — Front und Konvergenz im Nest 1 anstatt nur einer im groben Gitter), sondern auch auf andere Prozesse sensitiv gegen die Auflösung sind. So gibt es auch im groben Gitter Maxima, die im Nest 1 keine sind (z. B. Ober-Lausitz, Südschweiz, Schleswig-Holstein). Die bessere Auflösung der Emissionsdaten bereits für das Nest 1-Gitter haben z. B. zur Folge, daß das Ozonmaximum im Süden von Hessen im Nest 1-Gitter in mehrere Maxima zerfällt. Die Ballungsräume Wiesbaden/Frankfurt

am Main und Ludwigshafen/Mannheim werden bei der 18 km-Gitterweite aufgelöst.

Die diskutierten Ergebnisse erlauben einige Hinweise auf das klimatologische Verhalten des Modelles. In bezug auf die Korrelationen besteht eine gute Übereinstimmung mit den beobachteten Daten. Dies trifft nicht uneingeschränkt auf den Vergleich der Häufigkeitsverteilungen zu. Für das Nest 1-Gebiet sind diese zwar insgesamt ähnlich, aber ein detaillierter Vergleich ist mit den vorhandenen Daten nicht möglich. Deutlich wird nur bereits hier, daß das Modell niedrigere Konzentrationen nur schlecht modelliert. Ein Grund, nicht der alleinige, ist, daß die Modellergebnisse Mittel über eine ca. 70 m dicke Schicht sind, was nach Abbildung 2.4 bereits einen deutlichen Effekt auf die Tagesminima zeigt. Aus den Zeitreihen für verschiedene Gitterpunkte (Abbildung 3.1) geht hervor, daß die in den Messungen gefundenen Regime alle auch im Modell auftreten. Es ist an dieser Stelle aber noch nicht möglich zu sagen, welche Regime wie oft auftreten. Wichtig für die Diskussion des Modellklimas ist erstens, daß die simulierte Episode für allgemeine Schlüsse zu kurz ist. Zweitens deuten die Ergebnisse an dieser Stelle auf ein im Mittel „ländliches“ Modellverhalten hin. Allerdings ist diese Aussage nur als vorläufig anzusehen, da drittens gezeigt werden konnte, daß die Ergebnisse sensitiv bezüglich der betrachteten Auswahlen an Gitterpunkten sind. Schließlich scheint das Klima des Modelles von der Gitterweite abzuhängen. Es zeigt sich eine Tendenz zu städtischerem Klima bei feinerer Auflösung, sicherlich hauptsächlich bedingt durch Unterschiede in den Emissionen als externe Eingabedaten des Modelles. Diese Diskussion wird in den folgenden Kapiteln mit anderen Methoden weiter ausgeführt werden.

## Kapitel 4

# Die Hauptkomponentenanalyse (PCA)

Die Hauptkomponentenanalyse (Principal Component Analyse, PCA) ist ein Diagnosewerkzeug ähnlich der Fourier-Zerlegung zur Untersuchung der räumlichen und zeitlichen Struktur von physikalischen Feldern. Eine besonders nützliche Eigenschaft der PCA ist ihre Fähigkeit, die hochdimensionale Komplexität, die in beobachteten Daten enthalten ist, auf eine relativ anschauliche, niedrig-dimensionale Darstellung zu reduzieren. Dazu werden Eigenvektoren (empirische orthogonale Funktionen, EOFs) benutzt, die — im Gegensatz zur Fourier-Analyse, bei der die Basisfunktionen Sinus-/Kosinus- oder komplexe Exponentialfunktionen sind, — direkt aus dem gegebenen Datensatz abgeleitet werden.

Die erste Anwendung der PCA in der Meteorologie geht auf die Arbeiten von Wadsworth (1948) am Massachusetts Institute of Technology (M. I. T.) zurück. Sein Ziel war es, eine Methode zur Kurzfristvorhersage des Bodendruckes auf der Nordhemisphäre zu entwickeln. In einem Test über dem Nordatlantik sah er sich dem Problem gegenüber, die Eigenstruktur einer  $91 \times 91$ -Matrix mit Handrechenmaschinen bestimmen zu müssen. Nachdem mehrere Personen mehrere Wochen daran saßen, die ersten sieben Eigenwerte und die zugehörigen -vektoren zu berechnen, wurde dieser Ansatz fallengelassen, und das Projekt wurde mit theoretischen orthogonalen Funktionen (Tschebyschev-Polynomen) zu Ende gebracht. Auf dieser Arbeit baute Lorenz (1956) auf, als die ersten Computer am M. I. T. verfügbar waren. Er unternahm Studien zur Vorhersage der 500 *hPa*-Höhenanomalien über Nordamerika auf einem Gitter mit 64 Punkten. Die Arbeit ist inzwischen klassisch auf dem Gebiet der statistisch-dynamischen Ansätze zur Wettervorhersage.

Ungefähr gleichzeitig wurden in Rußland neue Fortschritte in der PCA über den Weg der Wahrscheinlichkeitsrechnung und Statistik erzielt. Unter Verwendung von EOFs wurden auf effiziente Art die Tagesgänge des barometrischen Druckfeldes als Funktion der Höhe beschrieben. Obukhov (1960) war sich bewußt, daß es oft theoretische Erklärungen für die spezielle Form einzelner EOFs gibt. Im weiteren verbreiteten sich die Anwendungen der PCA sehr schnell in den Vereinigten Staaten, England und Europa. Es soll nur noch die klassische Arbeit von Grimmer (1963) erwähnt werden. Die PCA wurde dort benutzt, um Probleme der Handhabung von Datensätzen und des Herausfilterns von Rauschen aus den Daten anzugehen. Es wurden die monatlichen Anomalien von Bodentemperaturen an 32 Orten in Europa über einen Zeitraum von 80 Jahren untersucht. Das heißt, die Karte für einen Kalendermonat wurde durch 32 EOFs repräsentiert. Von diesen enthielten die ersten acht über 80 % der totalen Varianz für jeden Monat. Die Komplexität des Problems konnte mit Hilfe der PCA um circa 75 % verringert werden.

Dieser kurze Überblick über die Anfänge der PCA sowie die Einführung in die Methode<sup>1</sup> im nächsten Abschnitt folgen dem Buch von Preisendorfer (1988), auf das auch für eine ausführlichere Darstellung der Thematik und der Beziehungen der PCA mit verwandten Techniken verwiesen werden soll. Im weiteren Verlauf des Kapitels werden Ergebnisse einer Untersuchung von Meßreihen atmosphärischer Spurengase (Abschnitte 4.2 und 4.3) sowie simulierter Ozonverteilungen (Abschnitt 4.4) mittels der PCA vorgestellt. Schließlich wird in Abschnitt 4.5 aus den Resultaten der PCA von gemessenen und modellierten Ozondaten ein objektives Maß für das aktuell an einem Meßort oder Modellgitterpunkt vorliegende Regime gewonnen.

## 4.1 Einführung in die PCA

Gegenstand der Untersuchung soll ein Datensatz  $\underline{\mathcal{F}}$  sein, der aus  $T$  Datenpunkten/-vektoren  $\underline{f}(t)$  besteht. Ein Datenvektor ist ein Element eines  $K$ -dimensionalen Vektorraumes. Anschaulich gesehen steht ein einzelner Vektor für die Aufzeichnung eines „Schnappschusses“ z. B. der räumlichen Verteilung des Bodendruckes, repräsentiert durch gleichzeitige Messungen an  $K$  festen Meßorten. Jeder dieser „Meßorte“ entspricht somit einem Freiheitsgrad in dem Datensatz oder einer Komponente des Vektors bzw. einer Koordinatenachse des betrachteten Vektorraumes. Der Meßwert steht für die jeweilige Koordinate des Datenpunktes im Raum der Meßdaten. Vorausschauend bietet sich an, von der Amplitude des Datenpunktes bezüglich einer den Meßort repräsentierenden Achse des Koordinatensystems zu sprechen. Für statistische oder klimatologische Betrachtungen geht man von langen Zeitreihen aus, so daß üblicherweise  $T > K$  ist. Der Datensatz wird zu einer reellwertigen skalaren  $T \times K$ -Matrix zusammengefaßt:

$$\underline{\mathcal{F}} = \begin{bmatrix} f(1,1) & \cdots & f(1,K) \\ \vdots & & \vdots \\ f(T,1) & \cdots & f(T,K) \end{bmatrix}. \quad (4.1)$$

Jede Zeile von  $\underline{\mathcal{F}}$  entspricht einem Datenpunkt/-vektor  $\underline{f}(t)$ , jedes Element  $f(t,k)$  steht für einen Meßwert des Feldes  $f$  zum Zeitpunkt  $t$ ,  $1 \leq t \leq T$ , am Ort  $k$ ,  $1 \leq k \leq K$ .

Interessiert ist man an der zeitlichen<sup>2</sup> Variabilität in den atmosphärischen Größen, oder — anders gesagt — der Varianzstruktur des Datensatzes  $\underline{\mathcal{F}}$ . Die PCA sucht nach räumlichen Mustern der größten zeitlichen Variationen. Bezeichnet man mit  $\bar{f}(k)$  den Mittelwert der Messungen an einem Meßort  $k$ ,

$$\bar{f}(k) = \frac{1}{T} \sum_{t=1}^T f(t,k),$$

so ist die Kovarianz  $\sigma_{kl}^2$  zwischen zwei Meßorten  $k$  und  $l$  definiert als

$$\sigma_{kl}^2 = \frac{1}{T-1} \sum_{t=1}^T [f(t,k) - \bar{f}(k)] [f(t,l) - \bar{f}(l)], \quad (4.2)$$

<sup>1</sup>Wie man sich nach dem bisher Gesagten denken kann, gibt es keine einheitliche Notation oder Terminologie für die PCA. Dem soll hier kaum nachgestanden werden, indem Notation und Terminologie einfach der vorliegenden Arbeit angepaßt werden. In der Literatur wird z. B. oft nicht deutlich zwischen PCA oder Faktoranalyse unterschieden, genauso wie die Begriffe „Eigenvektor“ und „EOF“ bisweilen synonym benutzt werden. Hier soll in Anlehnung an das Buch von Preisendorfer (1988) eine Diagnosemethode vorgestellt werden, die im Folgenden auf Daten atmosphärischer Spurenstoffe angewandt wird. Aufgrund dieser Anlehnung wird der Anspruch erhoben, die später angewandte Methode PCA nennen zu dürfen.

<sup>2</sup>Die Interpretation von  $t$  und  $k$  als zeitliche und räumliche Dimensionen ist nicht zwingend und dient hauptsächlich der Anschauung.

und die Varianz  $\sigma_k^2$  am Meßort  $k$  ergibt sich nach dieser Beziehung im Fall  $k = l$ . Aus der Datenmatrix  $\underline{\mathcal{F}}$  wird eine Matrix abgeleitet, die Auskunft über die in  $\underline{\mathcal{F}}$  enthaltenen Varianzen und Kovarianzen gibt. Der erste Schritt besteht in der Berechnung der Abweichungen der Messungen vom zeitlichen Mittel oder, anders ausgedrückt, der Zentrierung des Datensatzes bzgl. des zeitlichen Index  $t$ . Man erhält die Anomalien

$$f'(t, k) = f(t, k) - \bar{f}(k).$$

Aus diesen  $t$ -zentrierten Werten  $f'(t, k)$  wird die neue  $T \times K$ -Matrix  $\underline{\mathcal{F}'}$  analog zu Gleichung 4.1 zusammengesetzt. Definiert man  $\underline{f}'(t)$  folgendermaßen

$$\underline{f}'(t) = \left[ f'(t, 1), \dots, f'(t, K) \right]^T,$$

wobei  $T$  als Superskript Transposition bedeutet, so gilt

$$\underline{\mathcal{F}'} = \left[ \underline{f}'(1) \dots \underline{f}'(T) \right]^T.$$

Man kann nun  $\underline{\mathcal{F}'}$  als Schwarm von  $T$  Punkten im  $K$ -dimensionalen Euklidischen Raum deuten. Der Schwerpunkt dieses Schwarmes ist der Ursprung. Der neue Datensatz ist also um einen Vektor gegenüber den Originaldaten verschoben, der die zeitlichen Mittelwerte  $\bar{f}(k)$  für die einzelnen Meßorte  $k$  enthält.

Die Projektion von  $\underline{f}'(t)$  auf einen beliebigen Einheitsvektor  $\underline{e} = [e(1), \dots, e(K)]$ ,  $\underline{e}^T \underline{e} = 1$ , ist

$$\underline{f}'^T(t) \underline{e} = \underline{e}^T \underline{f}'(t) = \sum_{k=1}^K f'(t, k) e(k).$$

Dabei entspricht im ursprünglichen Koordinatensystem  $\underline{e}$  einem bestimmten Meßort. Im allgemeinen ist  $\underline{e}$  hier aber eine beliebige normierte Linearkombination aller Meßorte. Die Streuung  $\Psi(\underline{e})$  von  $\underline{\mathcal{F}'}$  entlang einem beliebigen Einheitsvektor  $\underline{e}$  wird definiert als

$$\Psi(\underline{e}) = \sum_{t=1}^T \left( \underline{e}^T \underline{f}'(t) \right)^2 = \underline{e}^T \left( \sum_{t=1}^T \underline{f}'(t) \underline{f}'^T(t) \right) \underline{e} \geq 0,$$

sie ist also ein Maß für die Streuung oder Varianz der Daten in bezug auf etwas, das man einen verallgemeinerten Meßort nennen könnte. Nun folgt die Definition der  $K \times K$ -Streumatrix:

$$\underline{S} = \underline{\mathcal{F}'}^T \underline{\mathcal{F}'}. \quad (4.3)$$

Für das Element  $s(k, l)$  aus der  $k$ ten Reihe und der  $l$ ten Spalte von  $\underline{S}$  gilt

$$s(k, l) = \sum_{t=1}^T f'(t, k) f'(t, l).$$

$s(k, l)$  ist damit nach Gleichung 4.2 bis auf den Faktor  $(T-1)$  die Kovarianz — also die Streuung im alten System — zwischen den Zeitreihen an den Orten  $k$  und  $l$ . Die Untersuchung der Matrix  $\underline{S}$  ist das Hauptanliegen der PCA.

Die Streuung  $\Psi(\underline{e})$  bezüglich eines beliebigen Eigenvektors  $\underline{e}$  kann jetzt geschrieben werden als

$$\Psi(\underline{e}) = \underline{e}^T \underline{S} \underline{e} \geq 0. \quad (4.4)$$

Nun sollen diejenigen Richtungen  $\underline{e}$  gesucht werden, in denen die Streuung  $\Psi(\underline{e})$  der Datenpunkte extrem ist (sie nimmt lokale Maxima/Minima an). Das heißt, es wird in dem  $t$ -zentrierten

Schwarm der Datenpunkte nach den Richtungen gesucht, bezüglich denen der Datensatz z. B. maximale Varianz aufweist. Sei  $\underline{e}$  eine solche Richtung, dann gilt für kleine Störungen  $\delta\underline{e}$  der Richtung in erster Näherung

$$\Psi(\underline{e}) \approx \Psi(\underline{e} + \delta\underline{e}). \quad (4.5)$$

Aus Gleichung 4.4 und der Symmetrie von  $\underline{S}$  ( $\underline{a}^T \underline{S} \underline{b} = \underline{b}^T \underline{S} \underline{a}$ ) folgt

$$\Psi(\underline{e} + \delta\underline{e}) = \underline{e}^T \underline{S} \underline{e} + 2(\delta\underline{e})^T \underline{S} \underline{e} + (\delta\underline{e})^T \underline{S} \delta\underline{e}.$$

In erster Näherung bzgl.  $\delta\underline{e}$  verschwindet der letzte Term auf der rechten Seite, und Gleichung 4.5 bedeutet

$$(\delta\underline{e})^T \underline{S} \underline{e} = 0. \quad (4.6)$$

Die Störung  $\delta\underline{e}$  muß so gewählt werden, daß  $\underline{e} + \delta\underline{e}$  ein Einheitsvektor mit

$$(\underline{e} + \delta\underline{e})(\underline{e} + \delta\underline{e}) = 1$$

ist, so daß in erster Näherung in  $\delta\underline{e}$

$$(\delta\underline{e})^T \underline{e} = 0,$$

die Störung muß also orthogonal zu  $\underline{e}$  sein. Ist jetzt  $\ell$  eine reelle Zahl mit der gleichen Einheit wie die Einträge von  $\underline{S}$  (d. i.  $[f]^2$ ), so gilt mit Gleichung 4.6

$$(\delta\underline{e})^T \underline{S} \underline{e} - \ell (\delta\underline{e})^T \underline{e} = 0$$

und somit

$$(\delta\underline{e})^T \left[ \underline{S} \underline{e} - \ell \underline{e} \right] = 0.$$

Da dies für alle (zu  $\underline{e}$  orthogonalen)  $\delta\underline{e}$  erfüllt sein muß, gilt die Äquivalenz zu

$$\underline{S} \underline{e} = \ell \underline{e}.$$

Diese Gleichung bestimmt schließlich die Richtungen mit extremer Streuung. Algebraisch gesehen entspricht die Suche nach „Richtungen“ mit extremen Varianzen einer Drehung des Koordinatensystems, es wird die Eigenstruktur der Matrix  $\underline{S}$  gesucht.

Das zentrale algebraische Konzept der PCA besteht somit in der Auswertung der Eigenstruktur der Streumatrix  $\underline{S}$ . Im allgemeinen besitzen symmetrische  $K \times K$ -Matrizen wie  $\underline{S}$   $K$  reellwertige, nicht negative Eigenwerte  $\ell_j$ ,  $1 \leq j \leq K$ , mit den zugehörigen Eigenvektoren  $\underline{e}_j = [e_j(1), \dots, e_j(K)]^T$ . Diese Eigenvektoren werden oft als EOFs bezeichnet. Definiert man

$$\underline{E} = \begin{bmatrix} \underline{e}_1 & \cdots & \underline{e}_K \end{bmatrix},$$

$$\underline{L} = \text{diag} \left[ \ell_1, \dots, \ell_K \right],$$

wobei  $\ell_1 \geq \ell_2 \geq \dots \geq \ell_K \geq 0$  gewählt wird, so gilt

$$\underline{S} \underline{E} = \underline{E} \underline{L}. \quad (4.7)$$

Mit Hilfe der Matrix  $\underline{E}$  wird die Streumatrix  $\underline{S}$  in Diagonalgestalt gebracht. Das heißt, die Eigenvektoren spannen ein Koordinatensystem auf, in dem es keine Kovarianzen gibt und in dem die Elemente der gedrehten Streumatrix  $\underline{L}$  abseits der Hauptdiagonalen null sind. Außerdem besitzt der Datensatz seine größte Varianz in Richtung des Eigenvektors  $\underline{e}_1$  und der kleinste

Betrag der Streuung ist bzgl. des Vektors  $\underline{e}_K$  zu suchen (s. u.). Die Anzahl nichtverschwindender Eigenvektoren ist gleich dem Rang von  $\underline{\mathcal{F}}'$  und im praktischen Fall bei verrauschten Daten gleich  $K$ . Dazu muß natürlich auch  $K \geq T - 1$  sein (i. allg.  $\text{rang}(\underline{S}) \leq \min[K, T - 1]$ ), aber es soll davon ausgegangen werden, daß eine ausreichend große Datenmenge vorliegt, um die Repräsentativität der Ergebnisse zu gewährleisten und theoretische Probleme auszuschließen, die eine besondere Betrachtung erfordern (wie z. B. verschwindende oder identische Eigenwerte). Zusammenfassend besteht die Vorgehensweise bei der PCA zuerst in der  $t$ -Zentrierung des Datensatzes, dann der Bildung der Streumatrix nach Gleichung 4.3 und schließlich der Bestimmung der Eigenstruktur — der Berechnung der Eigenvektoren und -werte — dieser Streumatrix nach Gleichung 4.7. Es bleibt im Folgenden zu beschreiben, wie die Ergebnisse der PCA genutzt und interpretiert werden können.

Wichtige Eigenschaften der Eigenvektoren sind ihre Orthonormalität und ihre Vollständigkeit: wenn  $\underline{I}_K$  die  $K$ -dimensionale Einheitsmatrix ist, gilt

$$\underline{E}^T \underline{E} = \underline{E} \underline{E}^T = \underline{I}_K.$$

Damit kann nach Gleichung 4.7 die Streumatrix  $\underline{S}$  geschrieben werden als

$$\underline{S} = \underline{E} \underline{L} \underline{E}^T,$$

und für die  $t$ -zentrierte Datenmatrix  $\underline{\mathcal{F}}'$  gilt

$$\underline{\mathcal{F}}' = \underline{\mathcal{F}}' (\underline{E} \underline{E}^T) = (\underline{\mathcal{F}}' \underline{E}) \underline{E}^T.$$

Nach dieser Identität wird die  $T \times K$ -Amplitudenmatrix  $\underline{A}$  definiert

$$\underline{A} = \underline{\mathcal{F}}' \underline{E}. \quad (4.8)$$

Gleichung 4.8 wird als die „Analysegleichung der PCA“ bezeichnet. Entsprechend wird die „Synthese Gleichung der PCA“ formuliert

$$\underline{\mathcal{F}}' = \underline{A} \underline{E}^{-1} = \underline{A} \underline{E}^T.$$

Wie bei der Datenmatrix definiert man die Amplituden  $a_j(t)$ ,  $1 \leq j \leq K$  sowie  $1 \leq t \leq T$ , und die Amplitudenvektoren  $\underline{a}_j = [a_j(1), \dots, a_j(T)]^T$ , so daß  $\underline{A} = [\underline{a}_1 \dots \underline{a}_K]$ . Die Amplituden werden auch als „Hauptkomponenten“ (Principal Components, PCs) bezeichnet und haben dieselbe Einheit wie die Daten. Im Koordinatensystem der Einheitsvektoren entsprechen die Amplituden  $a_j(t)$  den Meßwerten  $f'(k, t)$  des Systems der physikalischen Meßorte. Gleichung 4.8 gibt die Rechenvorschrift zur Bestimmung der Amplituden aus den Meßdaten an. Mit der Definition der Amplitudenmatrix erhält man nach

$$\underline{A}^T \underline{A} = (\underline{\mathcal{F}}' \underline{E})^T (\underline{\mathcal{F}}' \underline{E}) = \underline{E}^T (\underline{\mathcal{F}}'^T \underline{\mathcal{F}}') \underline{E} = \underline{E}^T (\underline{S} \underline{E}) = \underline{E}^T (\underline{E} \underline{L})$$

die sogenannte „PCA-Eigenschaft“ des Datensatzes  $\underline{\mathcal{F}}'$ :

$$\underline{A}^T \underline{A} = \underline{L}.$$

In der skalaren Form schreibt sich diese — zur Definition der Streumatrix nach Gleichung 4.3 analoge — Beziehung unter Verwendung des Kronecker-Deltas  $\delta_{ij}$ :

$$\sum_{t=1}^T a_i(t) a_j(t) = \ell_i \delta_{ij},$$

d. h. die Kovarianzen der Hauptkomponenten verschwinden und die Varianz des Datensatzes bzgl. eines Eigenvektors ist gerade das  $1/(T - 1)$ fache des Eigenwertes. Die Bedeutung der einzelnen Eigenvektoren für die Repräsentation der Originaldaten läßt sich somit an der Größe des zugehörigen Eigenwertes ablesen. Dies zeigt einen wichtigen Vorteil der PCA gegenüber z. B. der Fourier-Zerlegung. Man hat die Möglichkeit, die Komplexität (oder die große Anzahl von Freiheitsgraden) eines Datensatzes drastisch zu verringern, indem man sich auf die „wichtigsten“ Eigenvektoren als neue Freiheitsgrade beschränkt, damit kann ein großer Teil der Varianz erklärt werden. Mit Hilfe der „unwichtigen“ Eigenvektoren ist es möglich, das „Rauschen“ in den Daten zu quantifizieren und aus den Meßwerten zu entfernen. Ein weiterer Vorteil der PCA ist, daß den führenden Eigenvektoren oft eine theoretische Bedeutung zufällt: die Form der ersten Vektoren läßt sich mit physikalischen Gesetzmäßigkeiten erklären, deren Bedeutung wiederum an der Größe der zugehörigen Eigenwerte oder den individuellen Amplituden ablesbar ist. Anders herum gesagt: da meist einzelne physikalische Phänomene den Hauptteil der Varianz in den Daten erklären, spiegeln sich diese in der Form der führenden Eigenvektoren wieder.

Damit können weitere Eigenschaften der PCA — Aussagen über Streuungen, Varianzen und Korrelationen — abgeleitet werden. Die Streuung der  $t$ -zentrierten Daten,  $(T - 1)$  mal die Varianz, an einem festen Ort  $k$  ist

$$\sum_{t=1}^T f'^2(t, k) = \sum_{j=1}^K \ell_j e_j^2(k). \quad (4.9)$$

Die totale Streuung des Datensatzes (also  $(T - 1)$  mal die totale Varianz) ist somit durch die Summe der Eigenwerte gegeben

$$\sum_{k=1}^K \sum_{t=1}^T f'^2(t, k) = \sum_{j=1}^K \ell_j \quad \left( = \sum_{j=1}^K \sum_{t=1}^T a_j^2(t) \right),$$

und die duale Identität zu Gleichung 4.9, die sogenannte Rayleigh-Relation, lautet für einen Zeitpunkt  $t$

$$\sum_{k=1}^K f'^2(t, k) = \sum_{j=1}^K a_j^2(t).$$

Die totale Streuung der Daten ist also invariant gegen eine Rotation des Koordinatensystems. Die Verallgemeinerung dieser Beziehung ist für Zeitpunkte  $t$  und  $\tilde{t}$

$$\sum_{k=1}^K f'(t, k) f'(\tilde{t}, k) = \sum_{j=1}^K a_j(t) a_j(\tilde{t}) = \sum_{j=1}^K \ell_j \alpha_j(t) \alpha_j(\tilde{t}),$$

wobei  $\alpha_j(t) = a_j(t)/\sqrt{\ell_j}$  dimensionslose bzw. normierte Amplituden sind. Dies ist das Pendant in der PCA zur Parseval-Beziehung (Vollständigkeitsrelation) in der Fourier-Zerlegung. Der Vollständigkeit halber soll noch eine Art der SVD (singular value decomposition) erwähnt werden. Bezeichnet  $\underline{A}'$  die  $\underline{A}$  entsprechende  $T \times K$ -Matrix mit den Elementen  $\alpha_j(t)$ , kann die  $t$ -zentrierte Datenmatrix  $\underline{F}'$  zerlegt werden, so daß ihre zeitliche Struktur (mittels der Matrix  $\underline{A}'$ ) gleichbehandelt wird wie die räumliche Struktur (repräsentiert durch das Gegenstück  $\underline{E}$ ). Die Varianzstruktur von  $\underline{F}'$  ist nun klar ersichtlich aus der Matrix  $\underline{L}^{\frac{1}{2}} = \text{diag}[\sqrt{\ell_1}, \dots, \sqrt{\ell_K}]$ . Die daraus resultierende Form der SVD lautet

$$\underline{F}' = \underline{A}' \underline{L}^{\frac{1}{2}} \underline{E}^T.$$

Weitere nützliche Informationen enthalten die Korrelationen zwischen Daten und Amplituden sowie — dual dazu — zwischen Daten und Eigenvektoren. Darauf soll aber (auf Kosten der

Vollständigkeit der Darstellungen) nicht näher eingegangen werden, und der enttäuschte Leser sei wieder auf das Buch von Preisendorfer (1988) verwiesen.

Ein Wort muß allerdings noch über eine direkte Analyse nicht zentrierter Daten und räumlich oder zeitlich zusammengesetzter Daten unterschiedlicher Art verloren werden. Es sollen z. B. Daten verschiedener physikalischer Größen oder Dimensionierung gemeinsam untersucht werden oder einem Datensatz ein anderer hinzugefügt werden. Dazu werden die entsprechenden Spalten (falls die zusätzlichen Werte zu denselben Zeitpunkten genommen werden) oder die jeweiligen Zeilen (für zusätzliche Zeiten an denselben Meßorten) der ursprünglichen Datenmatrix  $\underline{F}$  angegliedert. Im allgemeinen weisen unterschiedliche Datensätze auch unterschiedliche Wertebereiche oder Variabilitäten auf. Deshalb sollten, um systematische Fehler in den Diagnoseergebnissen der PCA zu vermeiden, beide Datensätze zuvor separat  $t$ -zentriert und z. B. mit der Standardabweichung  $\sigma$  dimensionslos gemacht bzw. normiert werden, also

$$f'(t, k) = \frac{f(t, k) - \bar{f}(k)}{\sigma(k)}$$

$$\text{mit } \sigma^2(k) = \frac{1}{T-1} \sum_{t=1}^T [f(t, k) - \bar{f}(k)]^2.$$

Diese Normierung kann auch bei einem einzelnen Datensatz von Nutzen sein, da zum einen damit nicht die Varianz-, sondern die Korrelationsstruktur in  $\underline{F}'$  untersucht wird und zum anderen großen Schwankungen im Originaldatensatz Rechnung getragen wird. Wird andererseits die Streumatrix  $\underline{S}$  aus nicht  $t$ -zentrierten Daten gebildet, so beschreibt die PCA nicht länger die Varianzstruktur: der erste Eigenvektor wird größere Ähnlichkeit mit den Originaldaten als — wie im Fall der  $t$ -zentrierten Daten — mit den Anomalien der Daten haben.

Ist die räumliche Dichte der Meßorte sehr inhomogen, empfiehlt es sich bisweilen, mehrere dicht beieinanderliegende Meßpunkte zu einem Punkt zusammenzufassen. Damit vermeidet man, daß solchen Werten eine unangebracht große Wichtung bei der PCA zukommt. Zu berücksichtigen ist dabei die Struktur des Feldes selbst — z. B. evtl. auftretende Inhomogenitäten oder Anisotropien, die eine lokal höhere Auflösung des Meßnetzes erforderlich machen.

## 4.2 PCA der Ozon-Bodendaten

In diesem Abschnitt werden einige Ergebnisse einer PCA von Ozonmessungen vorgestellt. Es wird die praktische Anwendung und eine kleine Abänderung des Verfahrens beschrieben, eine Diskussion der Eigenstruktur der Streumatrix vorgenommen, und einige Ergebnisse für eine Verkehrs- und eine Waldstation werden gezeigt.

Grundlage der Untersuchung sind die Meßreihen von ca. 350 Stationen für die Monate Juni – August 1994. Das Ziel am Ende dieses Kapitels ist die Bestimmung eines quantitativen Maßes für die Charakterisierung des aktuell vorherrschenden Regimes an einer bestimmten Station. Wie schon in Abschnitt 2.3 diskutiert, äußert sich das Regime in Form und Amplitude des Tagesganges und dem Tagesmittelwert der Ozonkonzentration. Über längere Zeitreihen schlägt sich diese Information in der Häufigkeitsverteilung der gemessenen Werte nieder und ermöglicht so die „klimatologische“ Klassifizierung einer Station. Für eine Bewertung des lokalen, aktuellen Belastungszustandes der Luft sind die einzelnen Tagesgänge von Ozon geeignet, deshalb wird die PCA auf der Grundlage von Tagesgängen durchgeführt. Die Datenreihen werden dazu nach Gleichung 4.1 in eine Matrix  $\underline{F}$  geschrieben. Jede Zeile der Matrix entspricht einem einzelnen

beobachteten Tagesgang und jede Spalte einer festen Tageszeit. Die Matrix besteht aus  $T$  Tagesgängen mit jeweils  $K$  Werten von Stundenmitteln, die aus den teilweise in halbstündiger Auflösung vorliegenden Daten interpoliert wurden.<sup>3</sup> Nun muß die Matrix zentriert werden, und zwar wird von jeder Spalte der Mittelwert dieser Spalte subtrahiert. Multiplikation der Transponierten dieser zentrierten Datenmatrix mit sich selbst nach Gleichung 4.3 liefert die quadratische Streumatrix  $\underline{S}$ . Bis auf einen Faktor  $(T - 1)^{-1}$  gibt das Element  $s(k, l)$  dieser Matrix die Kovarianz (oder im Fall  $k = l$  die Varianz) zwischen den Tageszeiten  $k$  und  $l$  des gesamten Datensatzes wieder.

Die einzelnen Stunden des Tages entsprechen den Koordinatenachsen eines ( $K = 24$ )-dimensionalen Raumes. Jeder einzelne Tagesgang ist ein Punkt in diesem Raum, dessen Koordinaten durch die  $t$ -zentrierten Meßwerte zu bestimmten Stunden gegeben sind. Dabei liegt der Schwerpunkt des Punktschwarmes der Tagesgänge (oder der Matrix  $\underline{F}'$ ) aufgrund der Zentrierung im Ursprung des Koordinatensystems. Die Untersuchung der Eigenstruktur der Streumatrix  $\underline{S}$  nach Gleichung 4.7 beschreibt eine Hauptachsentransformation. Entsprechend den Tageszeiten im alten System sind die neuen Koordinatenachsen die Eigenvektoren, und an die Stelle der Meßwerte treten die Hauptkomponenten oder Amplituden. Der Streumatrix entspricht im rotierten System die Matrix  $\underline{L}$ , deren Diagonalelemente die Eigenwerte sind. Es existieren keine Kovarianzen, die Matrix  $\underline{L}$  ist diagonal. Die Anordnung der Eigenvektoren bzw. -werte in der Matrix  $\underline{E}$  bzw.  $\underline{L}$  erfolgt sortiert nach der Größe der entsprechenden Eigenwerte: der größte Eigenwert steht oben links.

Eine der wichtigsten Eigenschaften der PCA ist die Möglichkeit, die Anzahl der Freiheitsgrade zu beschränken, die nötig ist, um die Originaldaten bis zu einer gewissen Genauigkeit reproduzieren zu können. Dies veranschaulicht Abbildung 4.1. Dargestellt ist die Varianz des gesamten Datensatzes einmal verteilt auf die einzelnen Stunden des Tages in UTC (gestrichelt) und einmal verteilt auf die Eigenvektoren (Eigenwerte multipliziert mit  $(T - 1)^{-1}$ ; durchgezogen). Während im alten System die Varianzanteile nur um maximal einen Faktor vier schwanken, liegen mehr als drei Größenordnungen zwischen dem größten und dem kleinsten Eigenwert, und alleine die ersten vier Eigenvektoren beschreiben über 93% der gesamten Varianz des Datensatzes.

Die Eigenvektoren und zugehörigen Eigenwerte der Analyse sind in Abbildung 4.2 zu sehen. Dargestellt sind die Koordinaten der Eigenvektoren im System der Tageszeiten. Wie bereits im vorigen Abschnitt gesagt, gibt es bei der PCA oft eine physikalische Interpretation für die ersten Eigenvektoren. Im vorliegenden Fall lassen sich für die Form der ersten Vektoren auch physikalische Ursachen nennen. So entspricht der erste Vektor hauptsächlich dem Tagesmittelwert. Dessen Größe ist z. B. abhängig von der Jahreszeit, der aktuellen Wettersituation oder der Höhe der Station. Der typische Ozontagesgang ist im zweiten Vektor zu finden. Allerdings kann nicht einem konkreten Vektor ein eindeutiger physikalischer Prozeß zugeschrieben werden, da verschiedene Prozesse ähnliche Einflüsse auf die Ozonkonzentrationen besitzen. So zeigen die Meßwerte z. B. eine geringe Varianz, wenn eine Station fernab von Emissionsquellen liegt, der Grund dafür kann jedoch ebenfalls in der meteorologischen Situation zu finden sein. Der tägliche Anstieg der Ozonkonzentration belasteter Stationen kann durch eine Einmischung von Ozon aus einer nächtlichen Reservoirschicht eingeleitet werden, aber auch aus  $NO_x$ -Emissionen des Berufsverkehrs resultieren. Andererseits können diese Effekte zu einer zeitlichen Verschiebung des Anstieges oder des Auftretens der Maximalkonzentration führen. In diesem Sinne lassen sich die nächsten Vektoren interpretieren. Sie bewirken hauptsächlich eine geringe Deformation

<sup>3</sup>Die Daten sind im Folgenden in ppbv und UTC angegeben, die Umrechnung der Einheiten erfolgte mit dem Faktor  $2 \text{ ppbv}/(\mu\text{g}/\text{m}^3)$  (siehe Abschnitt 2.2).

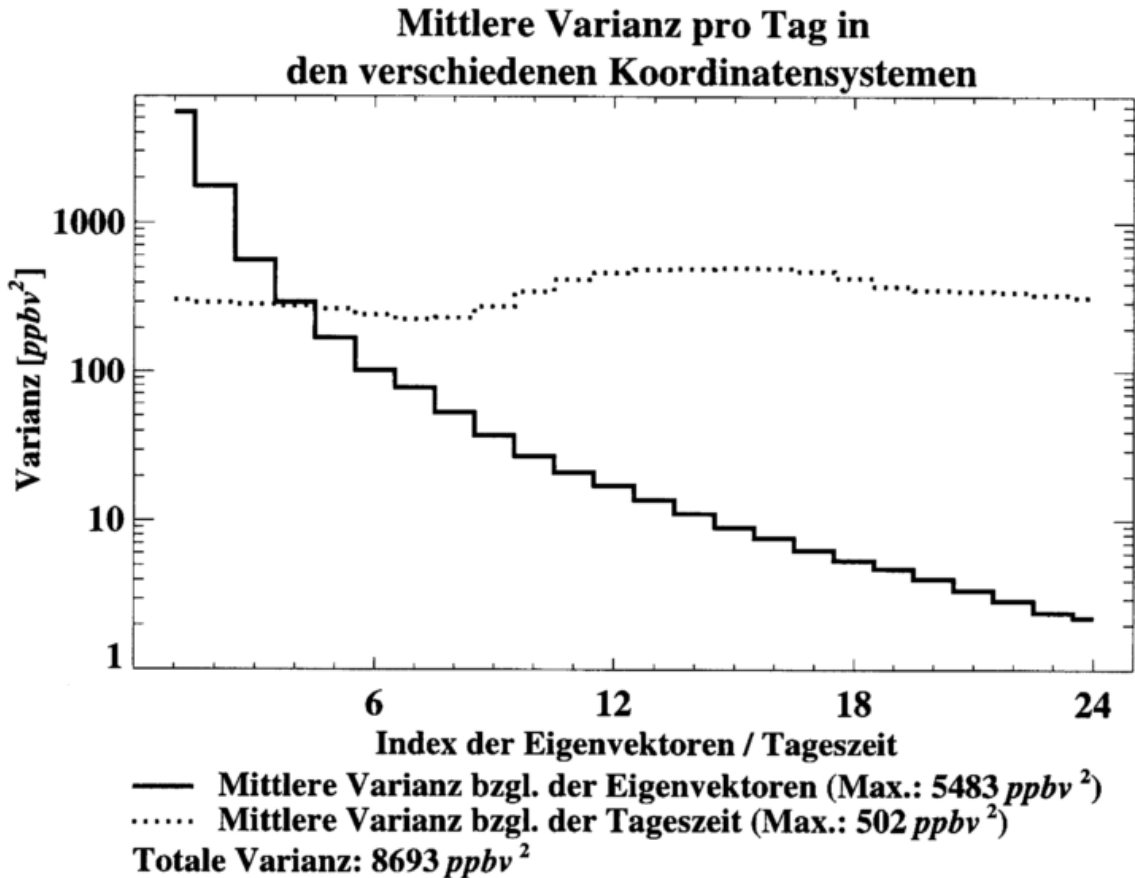


Abbildung 4.1: Varianzen des gesamten Ozondatensatzes in den Koordinatensystemen der Eigenvektoren (durchgezogene Linie) und der Tageszeiten (ursprüngliche Meßreihen in *UTC*; gepunktete Linie); die totale Varianz beschreibt hier die durchschnittliche totale Varianz pro zentriertem Tagesgang (siehe Text).

des durch den zweiten Eigenvektor geprägten Tagesganges, z. B. zeitlich verschobene Maxima oder eine frühere, schnellere Abnahme der Konzentrationen gegen Abend.

Noch einmal herausgestrichen sei die spezielle Form des zweiten Eigenvektors. Sie zeigt an, zu welchen Tageszeiten die größten Unterschiede/Varianzen anzutreffen sind, nämlich gegen 5 bzw. 15 *UTC* (also 7 bzw. 17 *MESZ*), und entspricht damit dem Bild, daß aus Abbildung 4.1 gewonnen wird. Bemerkenswert ist auch, daß dieser Eigenvektor sogar für Bergstationen von besonderer Bedeutung ist. Allerdings weisen die entsprechenden Amplituden oft ein im Vergleich zu anderen Stationen umgekehrtes Vorzeichen auf. Das heißt, andere physikalische oder chemische Prozesse spielen eine Rolle, obwohl sie größtenteils letztendlich mit dem Sonnenstand zusammenhängen, sei es über die Photochemie, eine Erhöhung der Konzentrationen aufgrund einer Einmischung von oben oder einer Absenkung bewirkt durch kräftige Talwinde oder ein zeitweises Eintauchen in die planetare Grenzschicht. Unterschiedliche PCAs von Teildatensätzen (z. B. Meßwerte ausgesuchter Stationen) zeigen, daß die Ergebnisse — Eigenvektoren und Eigenwerte — für Ozon sehr robust sind. Qualitativ sind die Resultate gleich, Unterschiede äußern sich darin, daß kleine Fragmente zwischen den benachbarten Eigenvektoren „ausgetauscht“ werden. Eine Erklärung ist beispielsweise, daß bei ländlichen Stationen wohl häufig ein typischer Tagesgang zu beobachten ist, daß extreme Minima in den frühen Morgenstunden aber eher selten sind. Also ist die auf diese Minima zurückzuführende Varianz kleiner als bei Stadtstationen. Zwei Gründe sprechen nun für eine leichte Abwandlung des Verfahrens für die weitere Anwendung in dieser Arbeit. Im Folgenden soll der Datensatz nicht bezüglich der *t*-Koordinate

### Eigenvektoren und zugehörige mittlere Varianz [ $ppbv^2$ ] aus 36588 gemessenen Ozontagesgängen

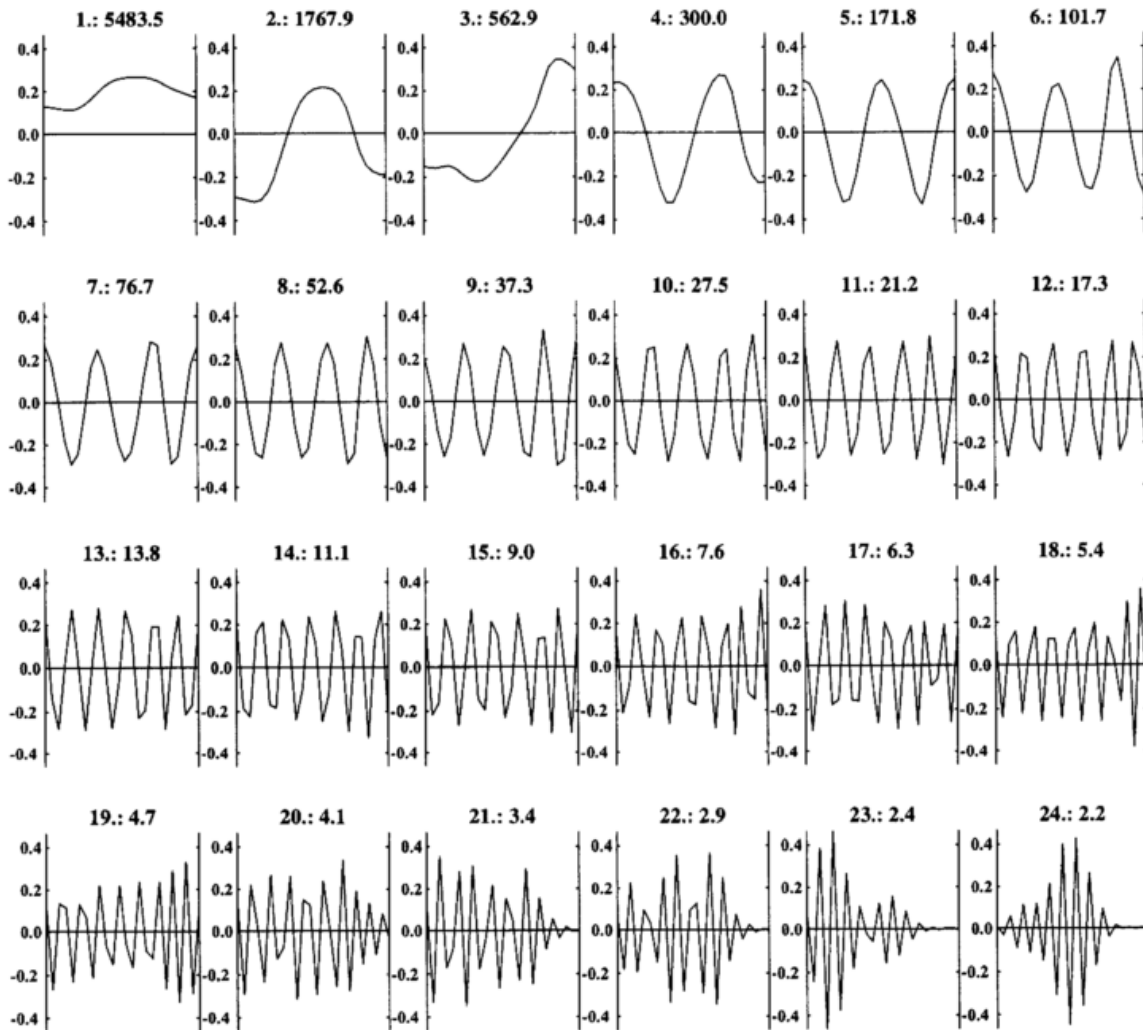


Abbildung 4.2: Eigenvektoren dargestellt in Koordinaten der Tageszeit (auf der Abszisse sind die Tageszeiten 00 – 23 UTC aufgetragen) und zugehörige Varianzen (Eigenwerte multipliziert mit  $(T - 1)^{-1}$ ) aus der PCA der Ozonbodenmessungen; die Einheit der Varianzen ist  $ppbv^2$ .

um den Mittelwert zu jeder Stunde des Tages sondern bezüglich  $k$  um den aktuellen Tagesmittelwert zentriert werden. Der erste Grund ist ein praktischer: um einen einzelnen Tagesgang zu untersuchen, müssen nicht die klimatologischen Stundenmittelwerte bekannt sein, für die Zentrierung reichen die Daten des Tages selbst aus. Der zweite Grund liegt darin, daß für die beabsichtigte Charakterisierung eine deutliche Trennung zwischen Tagesgang und Tagesmittelwert wünschenswert ist — in Abbildung 4.2 weist auch der erste Eigenvektor einen leichten Tagesgang auf. Abbildung 4.3 zeigt nun die ersten zwölf Eigenvektoren resultierend aus einer PCA mit der Zentrierung bezüglich dem Tagesmittelwert. Die angegebenen Zahlenwerte entsprechen jetzt nicht mehr genau den Varianzanteilen. Mit der neuen Zentrierung der Daten ist nun bereits ein Freiheitsgrad aus den Daten entfernt. Entsprechend ist der Rang der Streumatrix um eins abgesenkt, und es gibt nur noch 23 Eigenvektoren. So zeigt es sich, daß die Eigenvektoren aus Abbildung 4.3 sehr gut mit denen aus Abbildung 4.2 — allerdings dort um eine Nummer versetzt — übereinstimmen. Eine Änderung des Vorzeichens der Vektoren resultiert in einem anderen Vorzeichen der jeweiligen Amplituden und hat keine algebraische oder

**Eigenvektoren und zugehörige mittlere Varianz [ $ppbv^2$ ] aus 36588 gemessenen Ozontagesgängen; Mittelung der Ausgangsdaten bzgl. der einzelnen Tagesmittelwerte**

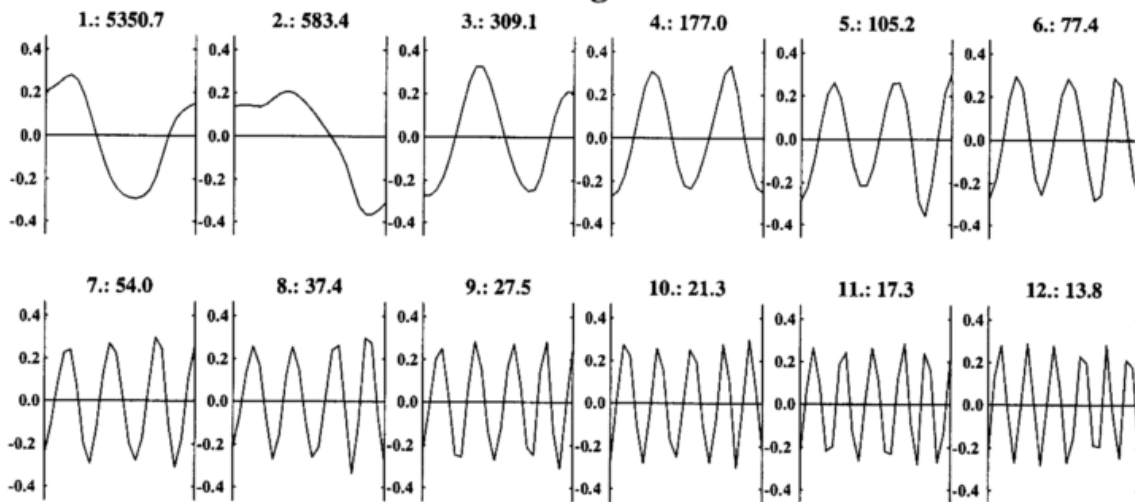


Abbildung 4.3: Eigenvektoren und zugehörige „Varianzen“ (Eigenwerte multipliziert mit  $(T - 1)^{-1}$ ) aus der PCA der Ozonbodenmessungen, die hierfür bezüglich des aktuellen Tagesmittelwertes zentriert wurden; die angegebenen Zahlenwerte entsprechen aufgrund der Zentrierung nicht exakt den Varianzanteilen am gesamten Datensatz; die Einheit ist  $ppbv^2$ .

physikalische Bedeutung. Es zeigt sich aber auch, daß nur der Eigenwert des ersten (vorher zweiten) Eigenvektors geändert ist, da er zusätzlich einen Anteil der Varianz des vorher ersten Eigenvektors übernommen hat. Alle übrigen Eigenwerte weichen um nicht mehr als ca. 4 % von ihren entsprechenden Gegenstücken ab. Diese Art der Zentrierung wird fortan für jede PCA angewandt.

Für einen Vergleich mit modellierten Daten stellt sich die Frage, bei welchem Eigenvektor das vom Modell reproduzierbare Signal aufhört und das Rauschen beginnt:

$$\underline{f}'(t) = \sum_{i=1}^{\tilde{K}} a_i(t) \underline{e}_i + \sum_{i=\tilde{K}+1}^K a_i(t) \underline{e}_i; \quad 1 \leq \tilde{K} \leq K. \quad (4.10)$$

Preisendorfer (1988) schlägt verschiedene Methoden für die Bestimmung von  $\tilde{K}$  vor, die letztendlich darauf hinauslaufen, in der Kurve der Varianzen (siehe Abbildung 4.1, durchgezogen) einen plötzlichen Abfall zu finden, ab dem dann die Eigenwerte nahezu gleichgroß sind. Solch ein Verlauf ist im vorliegenden Fall nicht festzustellen. Eine weitere Möglichkeit ist eine Quantifizierung von Beobachtungsfehlern, aus der sich ableiten ließe, welcher Anteil der Varianz eines Datensatzes auf Meßunsicherheiten zurückführbar ist. Dann würde die Grenze zwischen Signal und Rauschen bei dem Vektor  $\tilde{K}$  gesucht, bei dem die akkumulierte Varianz gerade dem Schwellwert entspricht. Schließlich kann die Form der Eigenvektoren den Ausschlag geben. Mit steigender Nummer der Vektoren wird die Frequenz der Vorzeichenwechsel in den Vektoren größer. Die Eigenvektoren können nur bis zu einer gewissen Frequenz signifikante Beiträge liefern, oder anderes herum, ein Modell kann nur in einer begrenzten zeitlichen Auflösung Variationen im Tagesgang reproduzieren. Je nach Fragestellung sind auch Kriterien denkbar, die z. B. darauf abzielen, wieviele Vektoren nötig sind, um das Tagesmaximum — Konzentration oder auch Zeitpunkt — bis zu einer gewissen Genauigkeit zu nähern. Die Ergebnisse werden meistens voneinander abweichen, zusammenfassend kann trotzdem gesagt werden, daß für die

Anwendungen der oben beschriebenen Analyse höchstens die ersten sechs bis acht Eigenvektoren relevant sind. Bereits der achte Eigenwert ist um zwei Größenordnungen kleiner als der erste und trägt weniger als 1 % zur Gesamtvarianz bei, bzw. der Beitrag der höheren Eigenvektoren ist zusammen nur ca. 2 %. Die Komplexität des Problems sinkt dabei um wenigstens 75 %, die Anzahl der Freiheitsgrade von 24 auf maximal 8.

Für zwei Stationen — die Verkehrsstation Viernheim (links) und die Waldstation Hunsrück (rechts) — zeigt Abbildung 4.4 konkrete Beispiele für die Ergebnisse der PCA für die Ozonepisode 19. – 31. Juli 1994.<sup>4</sup> Oben sind die gemessenen Zeitreihen dargestellt. Zum direkten Vergleich dazu zeigt die zweite Reihe die Amplituden zu den Eigenvektoren für die entsprechenden Tage, jeweils vom ersten (links) bis zum 23. Wert (rechte Begrenzung des Tages). Zu beachten ist, daß sowohl in dieser als auch in der dritten Zeile der Abbildung die Skalen für die beiden Stationen unterschiedlich sind. Die unterschiedliche Skalierung ist schon ein wichtiger Hinweis der PCA auf die verschiedenen Regime an den Meßorten, an der Verkehrsstation ist die tägliche Varianz im Tagesgang bedeutend größer als an der Waldstation.

In der dritten Zeile ist die akkumulierte Varianz dargestellt, einmal die Anteile der Hauptkomponenten (dick) zum anderen die akkumulierte Varianz der gemessenen Stundenmittel (dünn). Für die Verkehrsstation zeigt sich ein Trend zu höherer täglicher Varianz im Laufe der Entwicklung der Ozonepisode, analog zum Verlauf des Betrages der Amplitude zum ersten Eigenvektor, der mit Abstand die dominierende Komponente ist. Im Gegensatz dazu äußert sich die Sommermogentwicklung an der Waldstation hauptsächlich in einem Ansteigen des Tagesmittels. Dort spielen eine größere Anzahl von Vektoren eine Rolle, jedoch weist immer einer der ersten drei Eigenvektoren die größte Amplitude auf. Allerdings ist einzig der erste Eigenvektor beständig im Vorzeichen seiner Amplitude, diese wird an beiden Stationen nur in seltenen Ausnahmefällen positiv. Die Dominanz der ersten Vektoren — bei der Verkehrsstation ist es nahezu immer alleine der erste Eigenvektor — zeigt sich besonders deutlich in den Kurven der akkumulierten Varianz, zu der die höheren Vektoren keinen signifikanten Beitrag liefern können. Der Vergleich mit dem fast linearen Anstieg der Varianz für die Meßwerte beweist die Effektivität der Beschreibung der Daten im System der Eigenvektoren.

Es lassen sich viele interessante physikalische oder chemische Effekte anhand der dargestellten Ergebnisse diskutieren, dies führe aber leider in dieser Arbeit zu weit. Für die Beurteilung der Möglichkeiten der PCA kann aber noch ein anderes Kriterium sehr hilfreich sein: die Wiedergabe des Tagesmaximums. Dazu dient die unterste Reihe in Abbildung 4.4. An den Tagen, an denen in den Meßwerten ein eindeutiges Tagesmaximum zu finden ist, ist dieses (Wert und Zeitpunkt) mit einem Pfeil gekennzeichnet, die Linien stehen für Abweichungen von  $\pm 15\%$  vom beobachteten Maximalwert. Die Symbole geben nun die Maxima an, die aus der Rekonstruktion des Tagesganges durch die unter der Abbildung angegebenen Anzahl von Vektoren resultieren ( $\tilde{K}$  aus Gleichung 4.10). An 11 von 16 Tagen liegt das mit nur einem Vektor reproduzierte Maximum bereits innerhalb der 15 %-Grenze, bei vier Vektoren fällt das rekonstruierte Maximum nur noch in einem Fall aus diesem Bereich. Ein Spezialfall liegt am 25. Juli an der Station Hunsrück vor. Zwei nahezu gleichgroße zeitlich deutlich getrennte Maxima wurden gemessen. Mit den verschiedenen Anzahlen von berücksichtigten Eigenvektoren wechselt jeweils das rekonstruierte Maximum zwischen den beobachteten. Der Vergleich mit der Meßreihe zeigt, daß beide Maxima letztendlich gut wiedergegeben werden und das tatsächliche mit acht Eigenvektoren bzgl. Wert und Zeitpunkt getroffen wird.

<sup>4</sup>Grundlage der Untersuchung sind die Eigenvektoren, wie sie in Abbildung 4.3 zu sehen sind, d. h. aus einer Zentrierung bezüglich der aktuellen Tagesmittel resultierend.

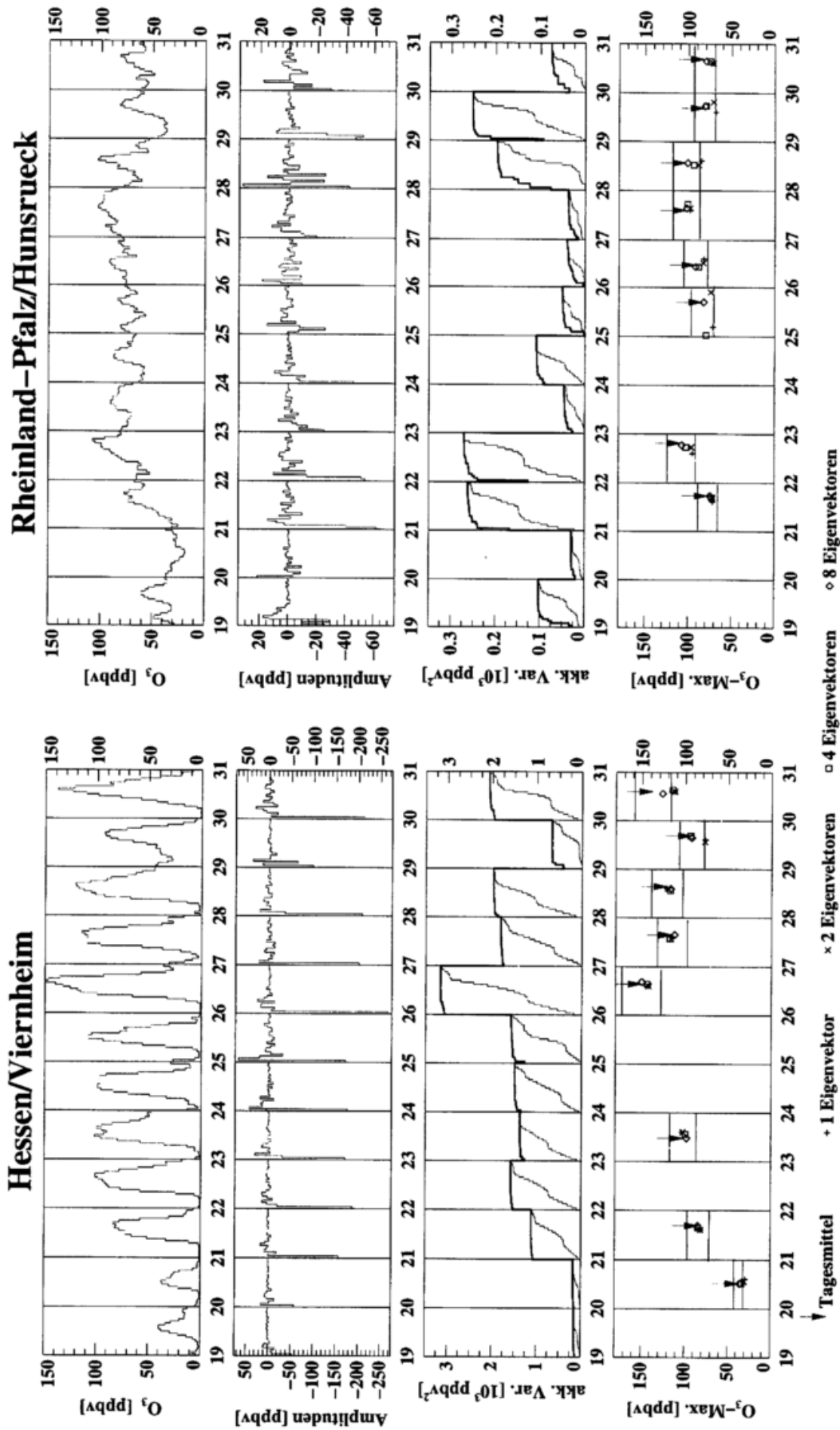


Abbildung 4.4: Darstellung verschiedener Ergebnisse einer PCA von Ozonbodendaten am Beispiel der Verkehrsstation Viernheim (links) und der Waldstation Hunsrück (rechts) für die Sommersmogepisode 19. - 31. Juli 1994; weitere Erläuterungen siehe Text.

### Eigenvektoren und zugehörige mittlere Varianz [ $ppbv^2$ ] aus 29373 gemessenen $NO$ -Tagesgängen; Mittelung der Ausgangsdaten bzgl. der einzelnen Tagesmittelwerte

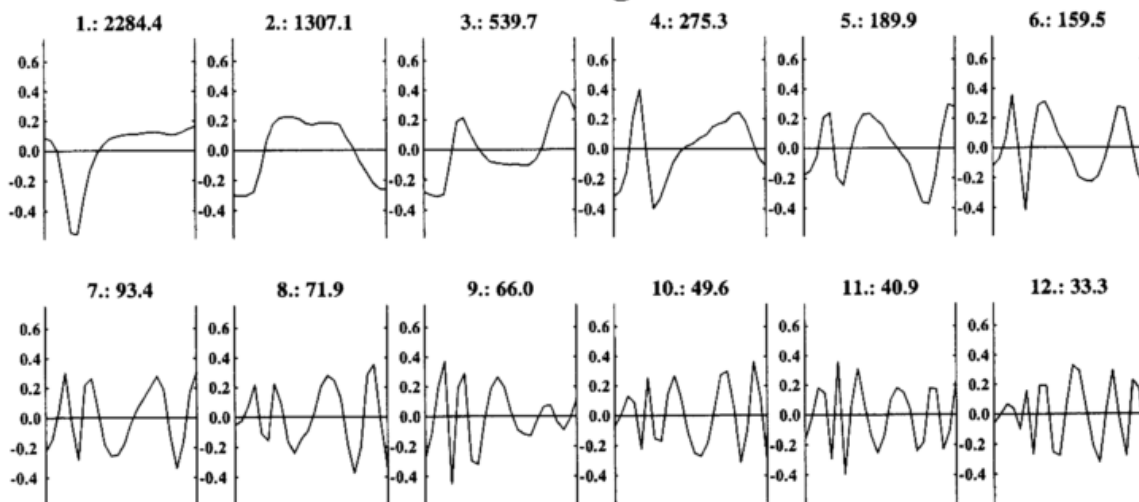


Abbildung 4.5: Eigenvektoren und zugehörige „Varianzen“. (Eigenwerte multipliziert mit  $(T - 1)^{-1}$ ) aus der PCA der  $NO$ -Bodenmessungen, die hierfür bezüglich des aktuellen Tagesmittelwertes zentriert wurden; die angegebenen Zahlenwerte entsprechen aufgrund der Zentrierung nicht exakt den Varianzanteilen am gesamten Datensatz; die Einheit ist  $ppbv^2$ .

### 4.3 PCA der $NO_x$ - und $SO_2$ -Bodendaten

Neben Ozon wurden auch die Tagesgänge von  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $NO_x$ ,  $O_x$  und  $SO_2$  mittels der PCA untersucht. Die jeweils ersten 16 Eigenvektoren und -werte für  $NO$ ,  $NO_2$  und  $SO_2$  sind in den Abbildungen 4.5–4.7 dargestellt.

Die Analyse der  $NO$ -Bodendaten ist, anders als bei den Ozondaten, extrem durch die Verkehrsstationen geprägt. Wie schon in Kapitel 2 anhand von Abbildung 2.12 diskutiert, können die Werte an Verkehrsstationen um Größenordnungen über den an den übrigen Stationen beobachteten Konzentrationen bzw. Konzentrationsschwankungen liegen. In diesem Fall könnte eine Normierung der Tagesgänge mit den täglichen Standardabweichungen sinnvoll sein. Im Gegensatz zu den Ozonwerten ist die Varianz im  $NO$  größtenteils auf eine Tageszeit — den Morgen — beschränkt. So zeigen viele Vektoren Auffälligkeiten, die auf die hohe Konzentration der Varianz zurückzuführen sind, die durch die starken morgendlichen Emissionen bedingt ist. Eventuell ist eine Anwendung dieser Ergebnisse eher nützlich, um den Tagesgang der Emissionen zu bestimmen, als zur Assimilation der Mischungsverhältnisse zu dienen. Es könnten z. B. ortsabhängige Emissionstagesgänge abgeleitet werden. Die Dominanz der extremen Verkehrsstationen zeigt sich auch an der Größe der Gesamtvarianz bzw. der Eigenwerte, die mit denen der Ozonanalyse vergleichbar ist, da  $NO$ -Messreihen der übrigen Standorte wesentlich weniger Varianz aufweisen. Dies ist auch der Grund dafür, daß die Ergebnisse für  $NO_x$  denen von  $NO$  sehr ähnlich sind — das  $NO_2$  liefert nur einen untergeordneten Beitrag — und deshalb nicht weiter diskutiert werden. Der erste Eigenvektor und auch die folgenden haben eine weit weniger herausragende Rolle als beim Ozon. Das deutet auf größere Unterschiede zwischen den Stationen und damit eine geringere räumliche Repräsentativität von  $NO$ -Messungen hin.

Die  $NO_2$ -Daten (Abbildung 4.6) zeigen im Vergleich eine wesentlich geringere Varianz auf (resultierend in einer Dominanz des Ozons bei der PCA von  $O_x$ , die deshalb ebenfalls nicht weiter

**Eigenvektoren und zugehörige mittlere Varianz [ $ppbv^2$ ] aus 31550 gemessenen  $NO_2$ -Tagesgängen; Mittelung der Ausgangsdaten bzgl. der einzelnen Tagesmittelwerte**

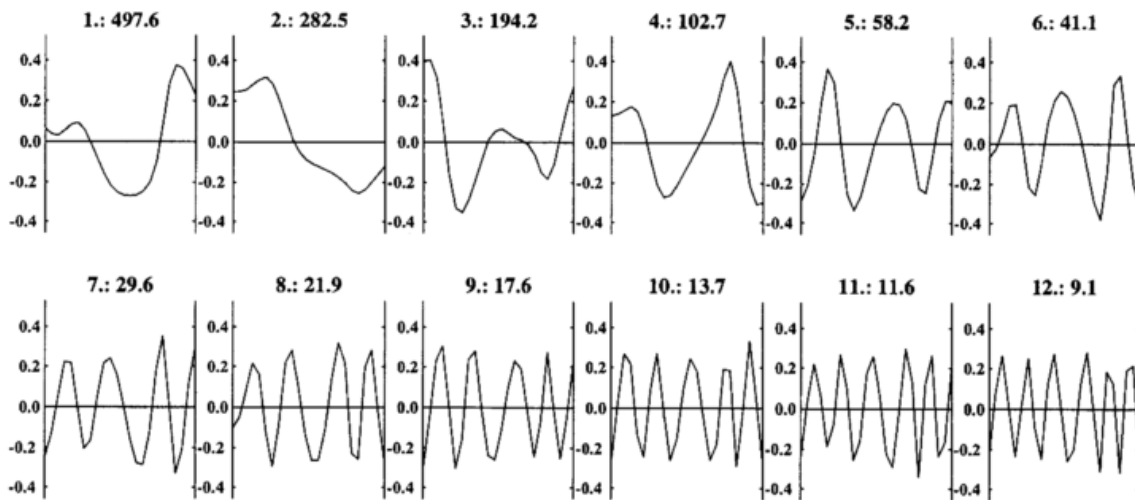


Abbildung 4.6: Eigenvektoren und zugehörige „Varianzen“ (Eigenwerte multipliziert mit  $(T - 1)^{-1}$ ) aus der PCA der  $NO_2$ -Bodenmessungen, die hierfür bezüglich des aktuellen Tagesmittelwertes zentriert wurden; die angegebenen Zahlenwerte entsprechen aufgrund der Zentrierung nicht exakt den Varianzanteilen am gesamten Datensatz; die Einheit ist  $ppbv^2$ .

diskutiert wird). Der mittlere Tagesgang — zu sehen im ersten Vektor — entspricht sehr gut dem des Ozons, allerdings (aus Abbildung 4.6 nicht ablesbar) üblicherweise mit anderem Vorzeichen. Das deutet noch einmal auf die in Kapitel 2 bereits diskutierte Bedeutung des photochemischen Gleichgewichtes zwischen  $NO$ ,  $NO_2$  und Ozon hin. Allerdings zeigt die Abbildung auch, daß dieser Tagesgang weniger dominant für das  $NO_2$  als für das Ozon ist. Die Größenunterschiede der sortierten Eigenwerte sind wesentlich geringer. Auch hier ist die Analyse geprägt durch städtische Stationen, da die  $NO_2$ -Konzentrationen in Reinluftgebieten wesentlich geringer sind. Jedoch ist dieser Effekt weniger stark ausgeprägt als beim  $NO$ , die Werte sind weniger extrem durch Emissionen geprägt. Ähnlich zum Ozon zeigen die höheren Eigenvektoren einen symmetrischeren und die führenden einen glatteren Verlauf mit breiteren Spitzen auf als die Gegenstücke für  $NO$ .

Bei der PCA der  $SO_2$ -Daten (Abbildung 4.7) gibt es keine so große Dominanz eines einzelnen Eigenvektors. Insgesamt weisen die Messungen eine sehr niedrige Varianz auf, und die Eigenwerte liegen noch dichter zusammen als bei  $NO$  und  $NO_2$ . Anders als bei den übrigen Analysen findet man beim  $SO_2$  zwei führende Vektoren, die beide die Form eines Tagesganges nur mit zeitlich verschobenen Maxima aufweisen. Dies alles deutet darauf hin, daß die die Analyse bestimmenden Stationen mit den hohen Konzentrationswerten stark durch Emissionen geprägt sind. Diese allerdings unterscheiden sich von Station zu Station im Tagesverlauf, anders als z. B. die  $NO$ -Emissionen des Autoverkehrs, die an den meisten Stationen ähnliche Tagesgänge aufweisen. Die geringe Repräsentativität einzelner — belasteter — Stationen zeigt sich u. a. in der Anzahl der Eigenvektoren, die einen wichtigen Beitrag zur Gesamtvarianz beitragen. So hat erst der 22. Eigenwert einen Betrag kleiner als 1% des ersten, beim  $O_3$ ,  $NO$  und  $NO_2$  wird diese Marke bereits vom 8., 15. bzw. 16. Vektor unterschritten.

Insgesamt unterstützen diese Ergebnisse die Überlegungen aus Kapitel 2, daß die  $SO_2$ -Daten und auch die  $NO_x$ -Messungen nur einen geringen Wert für die Datenassimilation haben. Ei-

**Eigenvektoren und zugehörige mittlere Varianz [ $ppbv^2$ ] aus 26882 gemessenen  $SO_2$ -Tagesgängen; Mittelung der Ausgangsdaten bzgl. der einzelnen Tagesmittelwerte**

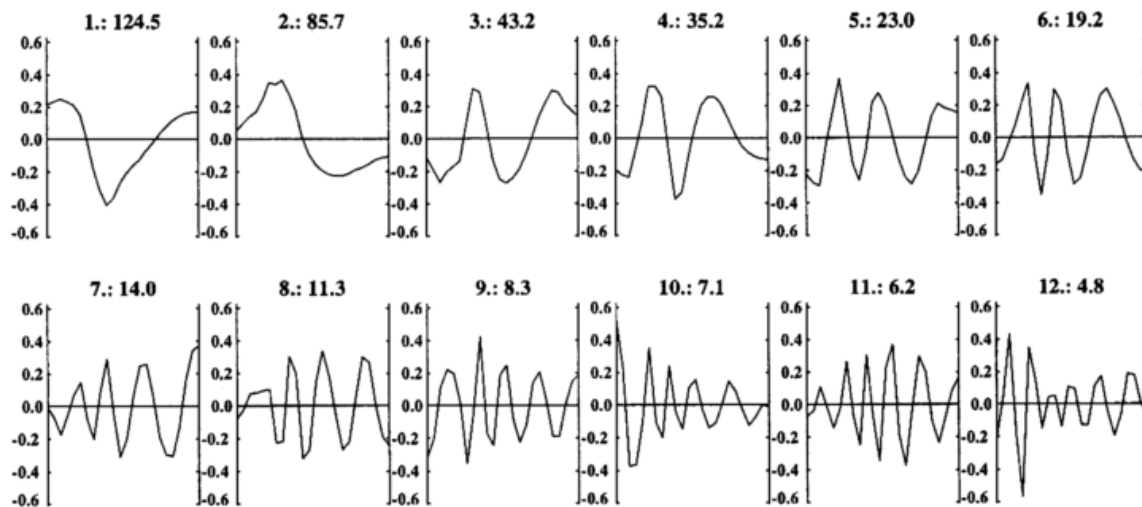


Abbildung 4.7: Eigenvektoren und zugehörige „Varianzen“ (Eigenwerte multipliziert mit  $(T - 1)^{-1}$ ) aus der PCA der  $SO_2$ -Bodenmessungen, die hierfür bezüglich des aktuellen Tagesmittelwertes zentriert wurden; die angegebenen Zahlenwerte entsprechen aufgrund der Zentrierung nicht exakt den Varianzanteilen am gesamten Datensatz; die Einheit ist  $ppbv^2$ .

nerseits sind Stationen, an denen hohe Konzentrationen gemessen werden nur sehr begrenzt repräsentativ, andererseits sind die Werte an den übrigen Stationen meist zu niedrig, um — im Rahmen der Meßgenauigkeiten bzw. -untergrenzen — verlässliche Aussagen zuzulassen.

#### 4.4 PCA der simulierten Bodenverteilungen von Ozon

Nun werden in diesem Abschnitt die in Kapitel 3 diskutierten simulierten Daten der bodennahen Ozonkonzentrationen für verschiedene Gitterauflösungen einer PCA unterzogen. Diese Untersuchung ist aus verschiedenen Gründen interessant. Sie liefert eine neue Methode, Aussagen über die klimatologischen Eigenschaften des Modelles machen zu können. Der Vergleich der Eigenvektoren und Eigenwerte für verschiedene Gitterweiten kann Hinweise auf eine Abhängigkeit des Modellverhaltens von der Auflösung geben. Im Hinblick auf eine Evaluierung des Modelles ist der Vergleich mit den Ergebnissen für die Messungen aus Abschnitt 4.2 wichtig. Eine Vergleichbarkeit ist Voraussetzung für die im nächsten Abschnitt vorgestellte Definition eines quantitativen Maßes für das aktuell vorherrschende Regime an einer Meßstation oder einem Modellgitterpunkt.

Ebenso wie für die gemessenen Daten wurden die an den einzelnen Gitterpunkten für den Zeitraum 21. – 30. Juli 1994 simulierten Daten jeweils als Tagesgänge in der Datenmatrix  $\underline{F}$  zusammengefaßt. Die Tagesgänge wurden bzgl. des Tagesmittelwertes zentriert und die Streumatrix ermittelt. Deren Eigenstruktur wurde berechnet. Diese Analyse wurde für verschiedene Teildatensätze durchgeführt; neben den Modelldaten für die unterschiedlichen Gitterauflösungen wurden sowohl Wasser- als auch Landgitterpunkte getrennt und auch zusammen untersucht. Die Ergebnisse aus Abschnitt 3.3 zeigen, daß es ebenfalls sinnvoll ist, den Teil des groben Gitters für sich zu betrachten, der das Nest 1-Gebiet bedeckt.

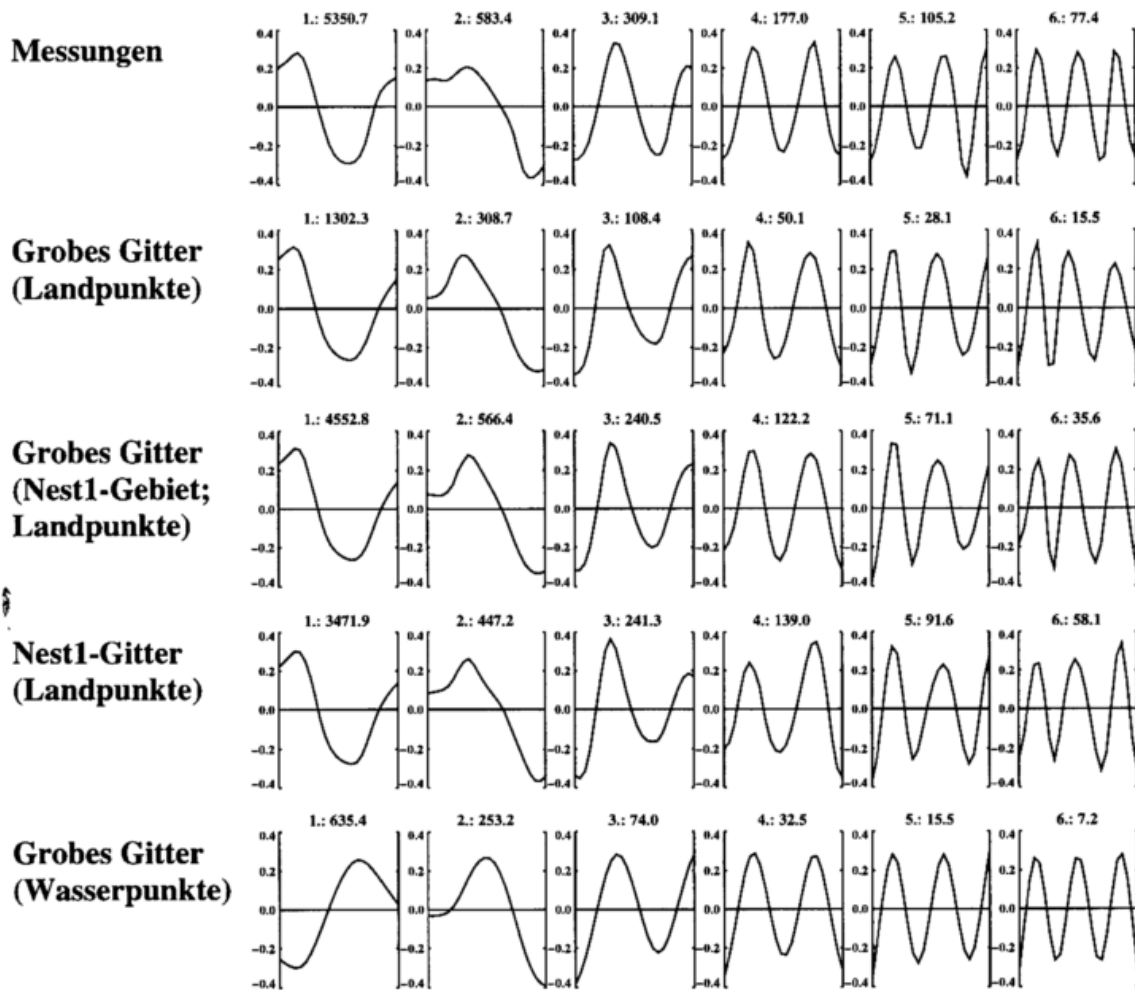


Abbildung 4.8: Die führenden sechs Eigenvektoren und „Varianzen“ (Eigenwerte multipliziert mit  $(T-1)^{-1}$ ) aus der PCA von unterschiedlichen Ozondatensätzen (siehe Beschriftung links), die hierfür bezüglich des jeweils aktuellen Tagesmittelwertes zentriert wurden; die angegebenen Zahlenwerte entsprechen aufgrund der Zentrierung nicht exakt den Varianzanteilen am gesamten Datensatz; die Einheit ist  $ppbv^2$ .

Die Unterschiede in der Form der Eigenvektoren beschränken sich auf die führenden Vektoren. Abbildung 4.8 zeigt deshalb nur die ersten sechs Eigenvektoren resultierend aus unterschiedlichen Datensätzen. Die erste Zeile zeigt für einen leichteren Vergleich noch einmal die Ergebnisse aus Abbildung 4.3 für die Messungen. Die nächsten drei Zeilen zeigen Resultate für die Landgitterpunkte zuerst für das ganze grobe Gebiet, dann für den Nest 1-Ausschnitt des groben Gebietes und für das Nest 1-Gitter. Schließlich zeigt die unterste Zeile die Eigenvektoren für die Wasserpunkte des groben Gitters. Über den Eigenvektoren stehen die mit  $(T-1)^{-1}$  multiplizierten Eigenwerte,  $T$  ist die Anzahl der betrachteten Tagesgänge.

Die Form der Eigenvektoren ist generell — auch für die führenden Vektoren — sehr ähnlich. Einzig die Wasserpunkte zeigen glattere Verläufe bzw. breitere Maxima der Eigenvektoren. — Das umgekehrte Vorzeichen des ersten Vektors der Wasserpunkte ist bedeutungslos, da entsprechend auch die zugehörigen Amplituden ein anderes Vorzeichen haben werden. — Ähnlich den Messungen an Bergstationen gilt für die Wasserpunkte, daß die Tagesgänge deutlich weniger Varianz aufweisen als die Stationen, die mehr unter dem Einfluß anthropogener Emissionen stehen. Als Folge davon sind die Eigenwerte sehr niedrig, und die Dominanz des ersten Vektors ist weniger herausragend. Auch die glatteren Formen der Eigenvektoren sind ein Hinweis auf

das Fehlen des Einflusses von frischen Emissionen, die stärkere zeitliche Änderungen in den Konzentrationen hervorrufen können. Darauf deutet ebenso hin, daß das Tagesmaximum ca. zwei bis drei Stunden später liegt als bei den gemessenen und modellierten Landstationen/-gitterpunkten. Diese Resultate zeigen aber auch, daß für eine Evaluierung des Modelles die Gitterpunkte über den Meeren getrennt betrachtet werden müssen und daß die Datengrundlage dafür zur Zeit fehlt.

Bei der Diskussion der Landgitterpunkte ist ein Vergleich mit Messungen zumindest zum Teil möglich. Am auffälligsten ist die Dominanz des ersten Eigenvektors. Tabelle 4.1 listet die relativen Anteile der ersten beiden Vektoren an der Gesamtvarianz des jeweiligen Datensatzes auf, dabei sei noch einmal darauf hingewiesen, daß von jedem Tagesgang vor der Analyse der Tagesmittelwert abgezogen wurde, also nicht zur Varianz beiträgt. Zusammen tragen die ersten beiden Vektoren, bemerkenswert übereinstimmend für alle Datensätze, 85 – 90 % zur Varianz bei, dabei ist der Anteil des zweiten Vektors um einen Faktor 0.34 – 0.07 mal so groß wie der des ersten. Da außerdem die Formen der Vektoren für alle Teildatensätze sehr ähnlich ist, dürften höchstens die geringen Unterschiede in der Form des ersten Eigenvektors signifikant sein.

Tabelle 4.1: Anteile der ersten beiden Eigenvektoren an der Gesamtvarianz der jeweiligen Datensätze in %.

Nr. des Eigenvektors	Beobachtungen		grobes Gitter		Nest 1- Gitter
	Episode	3 Monate	ges. Gebiet	Nest 1-Ausschnitt	
1	84	78	64	75	70
2	6	9	22	15	15

Obwohl auch beim ersten Vektor die Unterschiede klein sind, fällt folgendes auf. Das Tagesmaximum der Beobachtungen ist schmaler und symmetrischer als bei den Modellergebnissen. Das heißt, bei den simulierten Daten ist das Maximum etwas asymmetrisch, der nachmittägliche und nächtliche Rückgang der Konzentrationen verläuft langsamer, so daß der Abstand zwischen den Nulldurchgängen für die gemessenen Daten ca. eine Stunde breiter ist. Eine Erklärung ist, daß die Beobachtungen im Mittel städtischer sind, es stehen mehr  $NO_x$ -Emissionen zur Verfügung, die den raschen Abfall der Konzentrationen bewirken. Außerdem ist der Anstieg um die Mittagszeit herum im Modell deutlich langsamer, was auf dieselbe Ursache zurückführbar ist.

Insgesamt sind die Unterschiede in der Form der Vektoren so gering, daß von einer Übertragbarkeit der aus Messungen resultierenden Vektoren auf die CTM-Ergebnisse ausgegangen werden kann, obwohl die beiden vorangegangenen Kapitel Hinweise auf unterschiedliche Klimata in Modell und Beobachtungen gegeben haben. Die Zerlegung der Daten in die Eigenvektoren mittels der PCA ist somit übertragbar.

Neben den Eigenvektoren enthalten auch die zugehörigen Eigenwerte nützliche Information. Dazu zeigt Abbildung 4.9 die auf die jeweilige Gesamtvarianz normierten Eigenvektoren (resultierend aus sämtlichen Stations- bzw. Gitterpunktstypen; logarithmische  $y$ -Achse) für die Beobachtungen, einmal des gesamten dreimonatigen Zeitraumes und einmal der simulierten Episode, sowie für die Modelldaten, das gesamte grobe Gitter, den Nest 1-Ausschnitt des groben Gitters und das Nest 1-Gitter. Der Unterschied der beiden Datensätze für das grobe Gitter besteht, wie in Abschnitt 3.3 gezeigt, darin, daß für den Nest 1-Ausschnitt in der simulierten Episode höhere Ozonwerte und ein leicht städtischeres Regime typisch sind. Das ist derselbe Unterschied wie für die verschiedenen Beobachtungsdatensätze, dort bewirkt durch die Längen der Zeitreihen. In Abbildung 4.9 äußert sich beides auf dieselbe Weise. Höhere Ozonkonzentra-

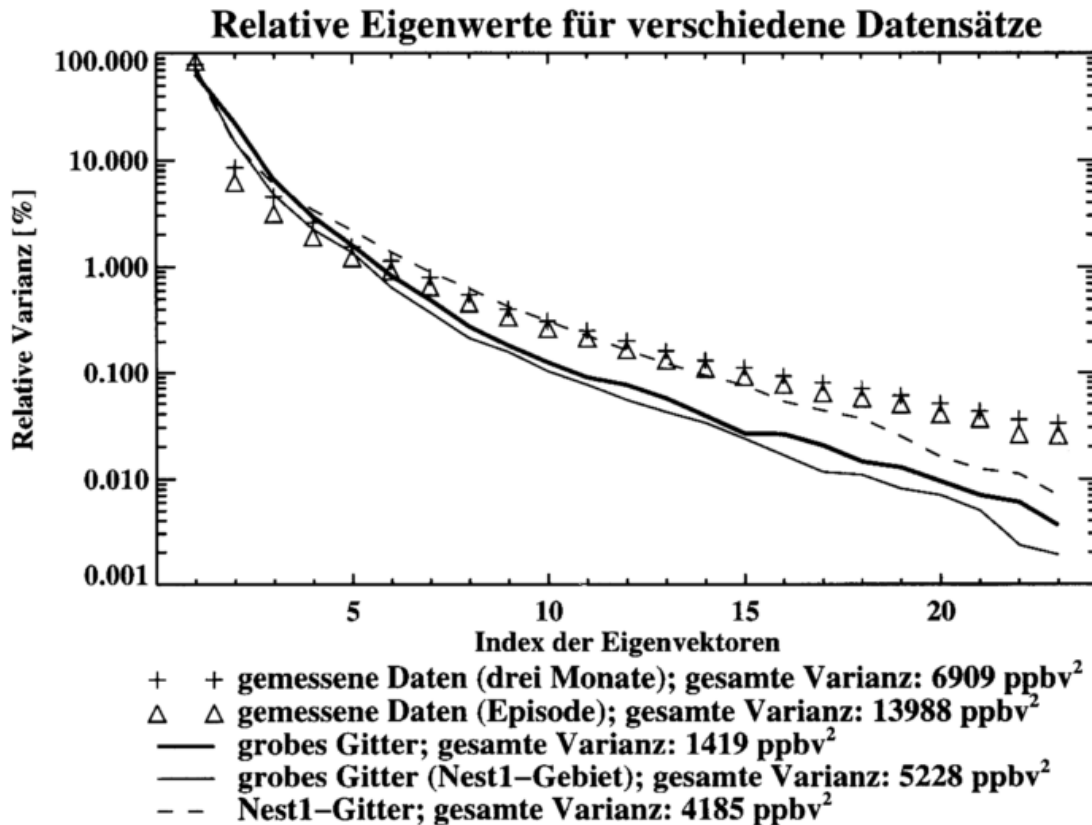


Abbildung 4.9: Anteile der Eigenvektoren an der Gesamtvarianz der verschiedenen Datensätze in %.

tionen während einer Sommersmogepisode äußern sich hauptsächlich in einer noch deutlicheren Dominanz des ersten Eigenvektors, die typischen Tagesgänge sind ausgeprägter. Die Anteile der übrigen Komponenten ändern sich gegeneinander nur wenig.

Der Unterschied zwischen Messungen und Modelldaten zeigt sich auf verschiedene Arten. Wie Tabelle 4.1 zu entnehmen, ist bei den Beobachtungen die Dominanz des ersten Vektors größer als bei den simulierten Werten, was einmal mehr auf ein stärker von Emissionen geprägtes Klima bei den Messungen zurückzuführen ist. Zweitens zeigt sich, daß die Anteile der höheren Eigenvektoren beim Modell deutlich niedriger sind, was, wie zu erwarten, auf kleinskalige Effekte bei den Meßdaten hindeutet, die im Modell nicht auftreten. Schließlich sind die Werte für die jeweilige Gesamtvarianz interessant. Besonders für den Episodenzeitraum der Beobachtungen zeigen sich sehr große Unterschiede zu den Simulationen. Wie auf andere Art noch in Kapitel 6 gezeigt wird, ist dies ein deutliches Maß dafür, daß das CTM die Varianz in den Tagesgängen deutlich unterschätzt. Die niedrigen nächtlichen Werte werden ebenso nicht erreicht, wie das CTM Schwierigkeiten hat, hohe Ozonkonzentrationen zu modellieren. Neben den Unsicherheiten in den Emissionsdaten ist ein wichtiger Grund, daß die simulierten Mischungsverhältnisse Mittelwerte einer ca. 70 m dicken Schicht sind, während die Beobachtungen in der Regel in einer Höhe von 3 – 5 m gemacht werden. Der Einfluß, den dies auf die Werte haben kann, wird in Abbildung 2.4 angedeutet.

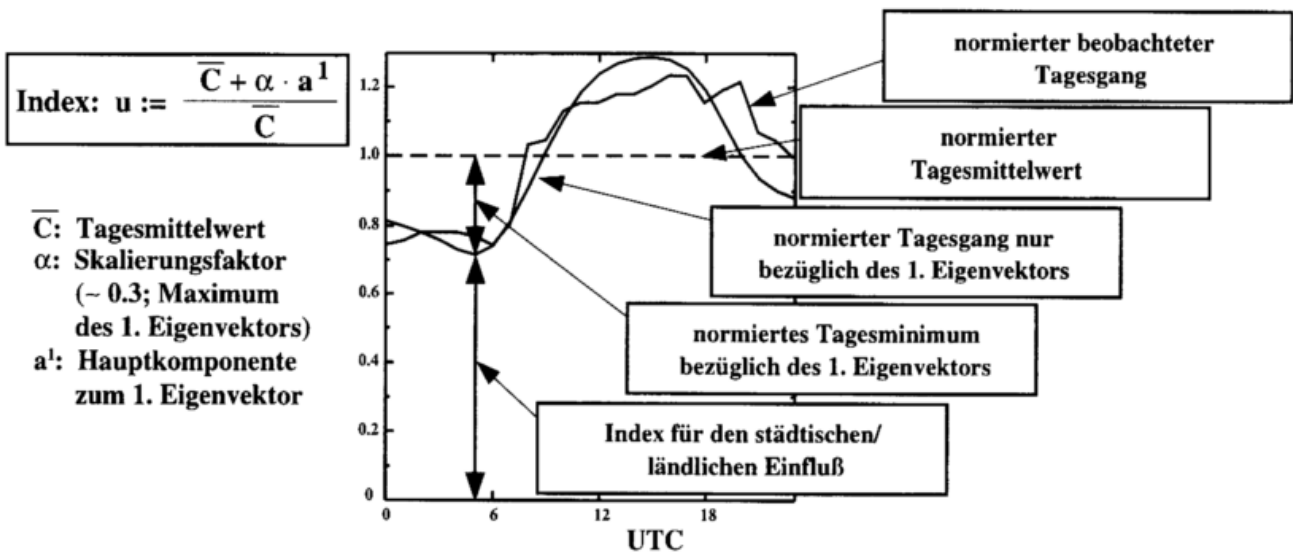


Abbildung 4.10: Definition eines quantitativen Maßes für den Belastungszustand eines Ozontagesganges.

#### 4.5 Ein quantitatives Maß für das aktuelle Regime aus der PCA von Ozondaten

In dieser Arbeit wurde bereits mehrfach die Notwendigkeit deutlich, das aktuelle Regime in einer Ozonzeitreihe objektiv quantifizieren zu können. Eine Abschätzung des Belastungsgrades ist z. B. anhand der  $NO_x$ -Messungen möglich und wird öfters durchgeführt (z. B. Köble et al., 1997). Dies hat den Nachteil, daß  $NO_x$ , also die Summe aus  $NO_2$  und  $NO$ , ein primärer Schadstoff ist. Wie in Abschnitt 2.4 gezeigt, wird  $NO_x$  besonders im interessanten Konzentrationsbereich mit wesentlich größeren Ungenauigkeiten als das Ozon gemessen. Außerdem weist  $NO_x$  eine geringere Repräsentativität auf als das Ozon. Daraus folgt, daß es für verschiedene Stoffe an einer Station auch verschiedene entsprechende Regime gibt. Ozon ist aber ein sekundärer Schadstoff und damit — auch aufgrund seiner Lebensdauer — besser geeignet für eine Bestimmung des Zustandes einer Luftmasse, der von lokalen Einflüssen bereinigt ist. Eine Quantifizierung des Regimes ist aus verschiedenen Gründen notwendig. Einerseits ermöglicht sie objektive Kriterien zur Beschreibung von Meßstandorten und Meßnetzen für einen aktuellen Zeitpunkt sowie in klimatologischer Hinsicht. Genauso liefert sie Hinweise, die für einen Vergleich mit Modelldaten von Bedeutung sind. Ein weiterer Grund — der eigentliche Zweck dafür, dies in dieser Arbeit vorzunehmen — ist, ein Maß für die Repräsentativität zu haben, das dann in ein objektives Analyseverfahren für eine zweidimensionale Ozonverteilung auf einem regelmäßigen Gitter eingeht.

In Abschnitt 2.3 wurden bereits Kriterien beschrieben, die eine Klassifizierung von Ozonzeitreihen erlauben. Mit den Ergebnissen der PCA sollen diese Kriterien quantifizierbar werden. Dort waren die wichtigsten Hinweise, wie sehr der zu bewertende Tagesgang einem „typischen“ Ozontagesgang gleicht und wie niedrig die dadurch bedingten nächtlichen Konzentrationsminima sind, also der Anteil niedriger Werte in den Häufigkeitsverteilungen. Die Idee, die hinter dem Index steht, ist folgende: das normierte Verhältnis zwischen dem Tagesmittelwert und dem nächtlichen Minimum, das auf den für verschmutzte Luft typischen Tagesgang zurückzuführen ist, gibt ein Maß für den Belastungsgrad. Abbildung 4.10 veranschaulicht die Ableitung des

Index  $u$ , der nach

$$u = \frac{\bar{C} + \alpha \cdot a^1}{\bar{C}} \quad (4.11)$$

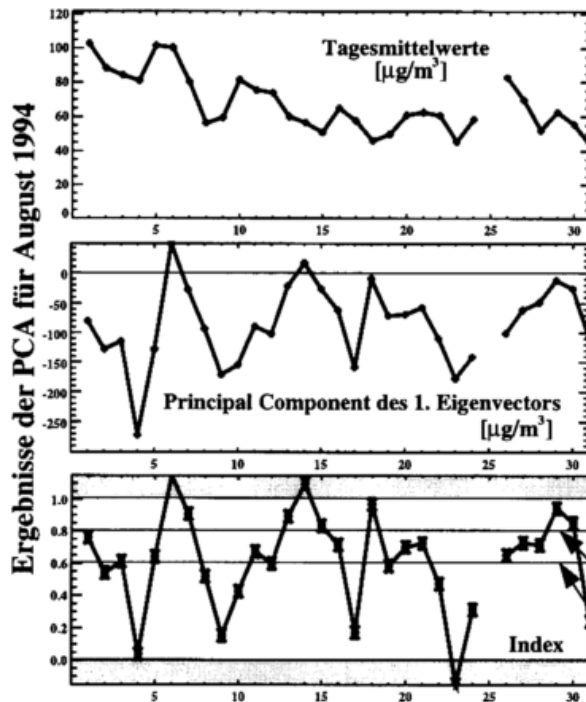
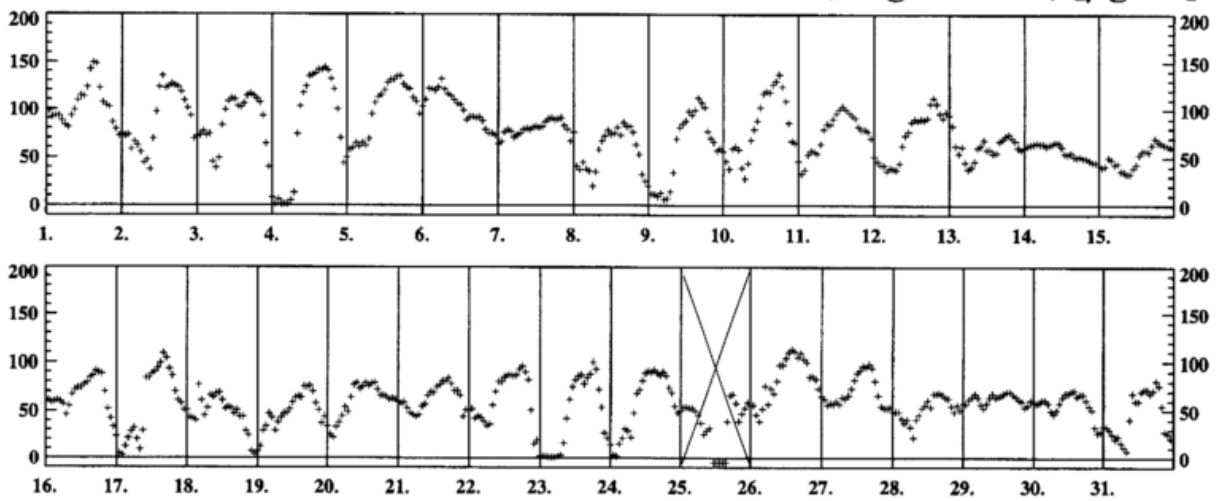
für einen einzelnen Ozontagesgang an einem Ort berechnet wird.  $\bar{C}$  ist dabei der Tagesmittelwert des Ozons,  $a^1$  die Amplitude zum ersten Eigenvektor (der, wie in den vorangegangenen Abschnitten dargestellt, für den typischen Ozontagesgang steht), und  $\alpha \approx 0.3$  ist der Wert des ersten Eigenvektors, der das Ozontagesminimum beschreibt. In der Regel wird der Term  $\alpha a^1$  ein negatives Vorzeichen aufweisen, da  $\alpha$  aufgrund der Form des ersten Eigenvektors — umgekehrtes Vorzeichen im Vergleich mit der entsprechenden Form des Tagesganges (siehe z. B. Abbildung 4.8) — positiv ist, die Amplitude aber zumeist negativ. Die Summe des Tagesmittelwertes und dieses Termes ist genau dann klein, wenn die Ozonkonzentrationen, für ein städtisches Regime, nachts bis null absinken. Verschwindet das Ozon nachts für längere Zeit ganz, äußert sich dies in einem größeren Betrag der Amplitude des ersten Eigenvektors und die Summe kann kleiner null werden, typisch für extrem belastete Situationen. Dominiert im Gegensatz dazu der Tagesmittelwert die Summe, wird der Index größer, was auf ein ländliches Regime hindeutet. Das Extrem in diese Richtung wird erreicht, wenn die Amplitude positiv ist, wie es an Bergstationen oder bei entsprechenden meteorologischen Bedingungen auch an anderen Stationen auftreten kann (siehe Abschnitt 4.2). In diesem Fall nimmt der Index Werte größer eins an. Für die Berechnung des Index müssen lediglich 24 zusammenhängende Stundenmittelwerte zur Verfügung stehen (einzelne Ausfälle lassen sich interpolieren). Es müssen nicht zwingend die Werte von 0 – 23 UTC sein, da den Daten entsprechend auch der erste Vektor dem betrachteten Zeitfenster angepaßt werden kann.

Die „Arbeitsweise“ des Index  $u$  ist in Abbildung 4.11 zu sehen, sie zeigt Ergebnisse für den August 1994 für die dänische Station Lille Valby. Lille Valby ist besonders für diese Demonstration geeignet. Sie besitzt einerseits im Mittel, wie anhand der Häufigkeitsverteilung zu sehen, einen eher repräsentativen Charakter. Da sie aber nur ca. 35 km nordwestlich von Kopenhagen liegt, steht sie — abhängig von der Windrichtung — bisweilen unter städtischem Einfluß, wie in der Ozonzeitreihe für diesen Monat an einigen Tagen zu sehen ist (z. B. der 4. und 23. August). Der 25. August wird nicht weiter betrachtet, an diesem Tag lagen für die Berechnung der Hauptkomponenten zu viele Ausfälle vor. Die Zeitreihe für die Tagesmittelwerte zeigt, daß die Episode hoher Ozonwerte, die bereits im Juli begonnen hat, ab dem 6. August zu Ende geht. Der generelle Trend geht in diesem Monat zu niedrigeren Tagesmittelwerten, übereinstimmend mit der zu dieser Jahreszeit abnehmenden Sonneneinstrahlung. Die Zeitreihe der Konzentrationswerte zeigt aber z. B. auch für den 23. August einen Verlauf, der für einen starken Einfluß von Emissionen spricht: die Werte bleiben lange bei ungefähr null, um dann sehr schnell anzuwachsen und am späten Nachmittag wieder abzusinken. Demzufolge weist dieser Tag auch einen hohen Betrag der Amplitude zum ersten Eigenvektor auf. Diese ist ein Maß dafür, wie ausgeprägt der Tagesgang in der Zeitreihe ist. Als absolutes Maß für den Belastungsgrad ist sie aber nicht geeignet. Als Beispiel dafür können der 9. und 10. August genannt werden. Beide Tage weisen eine vergleichbare Amplitude im Tagesgang auf, unterscheiden sich aber deutlich im Tagesmittelwert. Dem 10. ist ein eher flächenbezogener Charakter zuzuweisen, da der Tagesgang auf einem höheren Sockel aufsitzt. Die Zeitreihe für den Index zeigt, daß dieses Maß in der Lage ist, auf solche Unterschiede zu reagieren. (Als Anhaltspunkte für Werte dieses Maßes sind die Minima des Index für die dreimonatigen Zeitreihen der Bergstation Wank und der Waldstation Hunsrück eingezeichnet.) Der 9. August weist einen Wert von ca. 0.15 und der 10. einen von über 0.4 auf.

Die Zeitreihe für die Station Lille Valby zeigt einen großen Wertebereich des Index. Das Regime des 23. schlägt sich im Index mit ca. -0.15 als extrem städtisch nieder. Ein Beispiel für das andere

## Lille Valby (Dänemark)

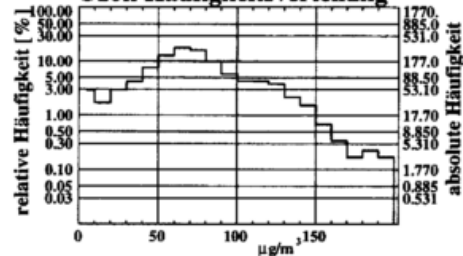
### Stundenmittelwerte der Ozonkonzentration (August 1994) [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ]



### Ozonstatistik (Juni - August 1994)

Max. = 193.0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ];  
Mittel. = 72.4 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ];  
Median = 69.0 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ];  
Stdv. = 31.5 [ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ];

### Ozon Häufigkeitsverteilung



Minimum für die Waldstation  
Hunsrück (Rheinland-Pfalz)

Minimum für die Bergstation Wank (Bayern)

Abbildung 4.11: Demonstration der Arbeitsweise des Index für das Regime der Ozonkonzentrationen für die Station Lille Valby in Dänemark; unten rechts die Statistik für Juni – August 1994, oben die im August gemessenen Konzentrationen, unten links zuerst die Tagesmittelwerte, dann die Amplituden des ersten Eigenvektors und schließlich die Zeitreihe des Index.

Extrem ist der 6. August. An diesem Tag ist ein sehr hoher Mittelwert zu beobachten, aber die Amplitude des ersten Vektors ist, wenn auch von niedrigem Betrag, positiv und folglich ist auch der Index größer eins. Ein ähnliches Beispiel bei wesentlich niedrigerem Tagesmittel ist der 14. Das zeigt, daß der Index auch abseits der extremen hochsommerlichen Smoglagen fähig ist, ein verlässliches Maß für das Regime zu liefern. Die Zeitreihen für die Amplitude zum ersten Eigenvektor und die für den Index korrelieren sehr gut in ihrem Verlauf. Die Amplituden sind aber zu abhängig von den Absolutwerten, um auch bei niedrigen Konzentrationen das Regime

wiedergeben zu können. So haben z. B. der 10. und der 23. nahezu gleiche Amplituden, der Index zeigt aber eine Differenz von fast 0.6 und klassifiziert treffend den 23. als extrem belastet und den 10. als flächenbezogen städtisch.

Eine „Eichung“ des Index kann durch den Vergleich mittlerer Indexwerte mit der Typenklassifizierung aus Abschnitt 2.3 vorgenommen werden. Dazu zeigt Abbildung 4.12 unten links die Indexmittelwerte für die Monate Juni – August 1994 für die im Nest 1-Gebiet liegenden Stationen. Dort stehen wie in Abbildung 2.1 die Symbole für den Stationstyp. Zum Beispiel ist zu sehen, daß alle Land- und Bergstationen (Quadrate und Rauten) Indexmittelwerte größer 0.7 aufweisen, solch hohe Werte aber für Verkehrs- oder Stadtstation (kleine und große Kreise) nicht auftreten. Deren Werte liegen typischerweise bei Werten unter 0.5, für Verkehrsstationen meist unter 0.3.

Für klimatologische Betrachtungen ist ein dreimonatiger Zeitraum zu kurz. Um einen Eindruck für die Schwankungen des Indexwertes abhängig vom Mittelungszeitraum zu geben, sind die über die simulierte Episode gemittelten Werte in Abbildung 4.12 oben links dargestellt. Da es sich bei diesem Zeitraum um eine extreme Sommersmogepisode handelt, sind die Unterschiede zwischen den Regimen deutlicher als für den dreimonatigen Mittelungszeitraum. Nahezu alle Verkehrsstationen haben mittlere Indexwerte kleiner 0.3, einige sogar kleiner null. Es gilt aber immer noch (mit wenigen Ausnahmen), daß bei 0.7 die untere Grenze für die sauberen Stationen liegt.

Beide Bilder zeigen eine sehr gute Übereinstimmung der verschiedenen Methoden, das Regime zu bestimmen. Allerdings zeigt der Vergleich der beiden Methoden auch einige Stationen, die sich dieser Bestimmung des Regimes entziehen. Als Beispiel sei die Station Essen-Bredeney in Nordrhein-Westfalen genannt, sie zeigt einen mittleren Index von ca. 0.55. Für dieses Beispiel liegt der Grund darin, daß die Meßwerte an dieser Station allgemein eine große Variabilität mit hoher Frequenz aufweist. Dies wurde bereits anhand von Abbildung 2.5 diskutiert. Diese Variabilität schlägt sich in hohen Amplituden der höheren Eigenvektoren nieder. Ähnliches gilt z. B. für Stationen in München und Lausanne. Die daraus zu ziehende Konsequenz ist aber, daß die Daten dieser Stationen für einen Vergleich mit modellierten Werten nicht geeignet sind. Solche starken Fluktuationen oder extremen Regime werden von Modellen der regionalen Skala nicht wiedergegeben werden können. Es bleibt die Frage, wie die betreffenden Stationen oder Tagesgänge durch einen einfachen objektiven Algorithmus herausgefiltert werden können. Denkbar ist eine Betrachtung der Verteilung der Varianz dieser Tagesgänge auf die Eigenvektoren. Ein im Verhältnis großer Anteil auf höhere Eigenvektoren zurückzuführender Varianz würde auf eine Untauglichkeit schließen lassen. Dabei ist das Problem die Normierung. Bei niedriger totaler Varianz trifft dieses Kriterium auch auf Reinluftstationen zu, dort ist dies aber physikalisch sinnvoll, da der ansonsten dominante Tagesgang fehlt. Die einzige Möglichkeit besteht darin, Informationen über das Klima an der Station mit heranzuziehen (natürlich wäre auch eine exakte Charakterisierung seitens der Meßnetzbetreiber, die die Stationen wesentlich besser kennen, hilfreich). Dies führt aber wieder auf die subjektiv erstellte Klassifizierung der Stationstypen zurück. Zur Zeit ist also eine subjektive Vorprüfung der Daten noch unabdingbar.

Auch in diesem Sinne ist die rechte Spalte von Abbildung 4.12 interessant. Gezeigt ist der Anteil der Varianz, der durch den Index, also den mittleren Tagesgang, erklärt wird, oben wieder für die simulierte Episode und unten für den dreimonatigen Zeitraum. Oben ist zu sehen, daß für die städtischen Stationen während der Smogepisode über 75% der Varianz auf den typischen Tagesgang zurückzuführen ist. Dies gilt nahezu allgemein für das gesamte Gebiet bis auf den Nordwesten der Niederlande, der den größten Teil der Episode auf der „sauberen“ Seite einer Front lag. Diese Unterschiede verwischen für den dreimonatigen Zeitraum, nur die abgelegensten

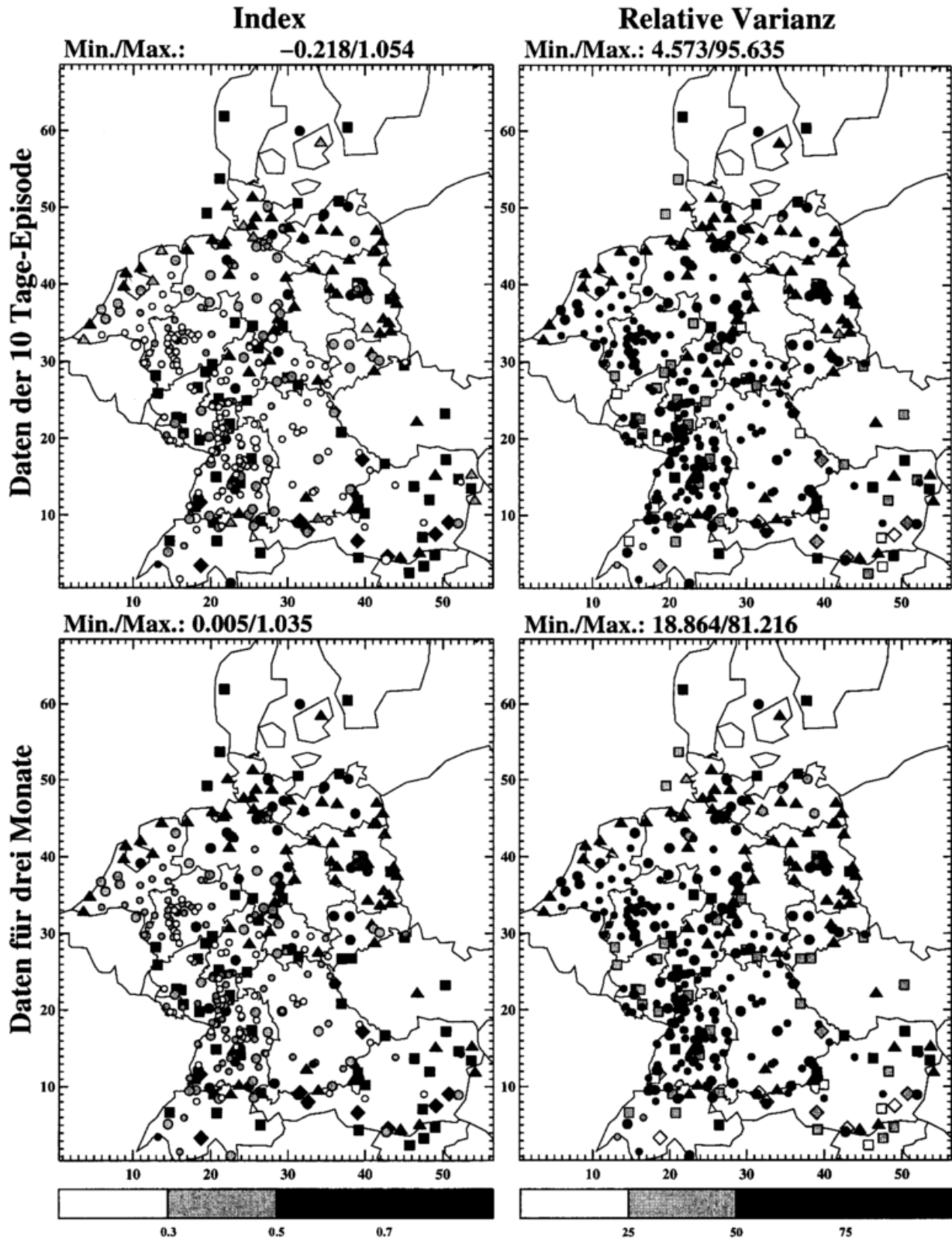


Abbildung 4.12: Mittlere Indexwerte (links) und die mittleren durch den Index erklärten Varianzanteile (rechts, in %) für die Ozonmeßstationen; oben für den zehntägigen simulierten Zeitraum, unten für die gesamten drei Monate (kleine Kreise, große Kreise, Dreiecke, Quadrate, Rauten entsprechen jeweils Verkehrs-, Stadtstationen, flächenbezogenen Stationen sowie Wald- und Bergstationen).

Stationen in den Alpen behalten die niedrigen Werte der relativen Varianz. Interessant ist eine Häufung hoher Varianzwerte im Südwesten Deutschlands, die auf eine längerfristige hohe Belastung hindeutet.

Die subjektive Bestimmung der Stationstypen sowie die mittleren Indexwerte erlauben nun auch eine Beurteilung der unterschiedlichen Stationsnetze. Als Beispiel seien die Niederlande genannt. Die Verteilung der Stationen ist sehr homogen, es zeigt sich ein genereller großräumiger Trend mit wachsendem Abstand von der Küste zu stärker verschmutzten Regimen. Ebenso zeigen die Ballungsräume in Nordrhein-Westfalen von Bonn bis zum Ruhrgebiet sehr verschmutzte Luft. In Bayern sind nur sehr wenige saubere Stationen, eher deutet die Verteilung der Stationen an, daß nur an extrem verschmutzten, wenig repräsentativen Stellen gemessen wird. Andere Stationsnetze, wie das in Rheinland-Pfalz, haben eine größere Bandbreite an Stationstypen.

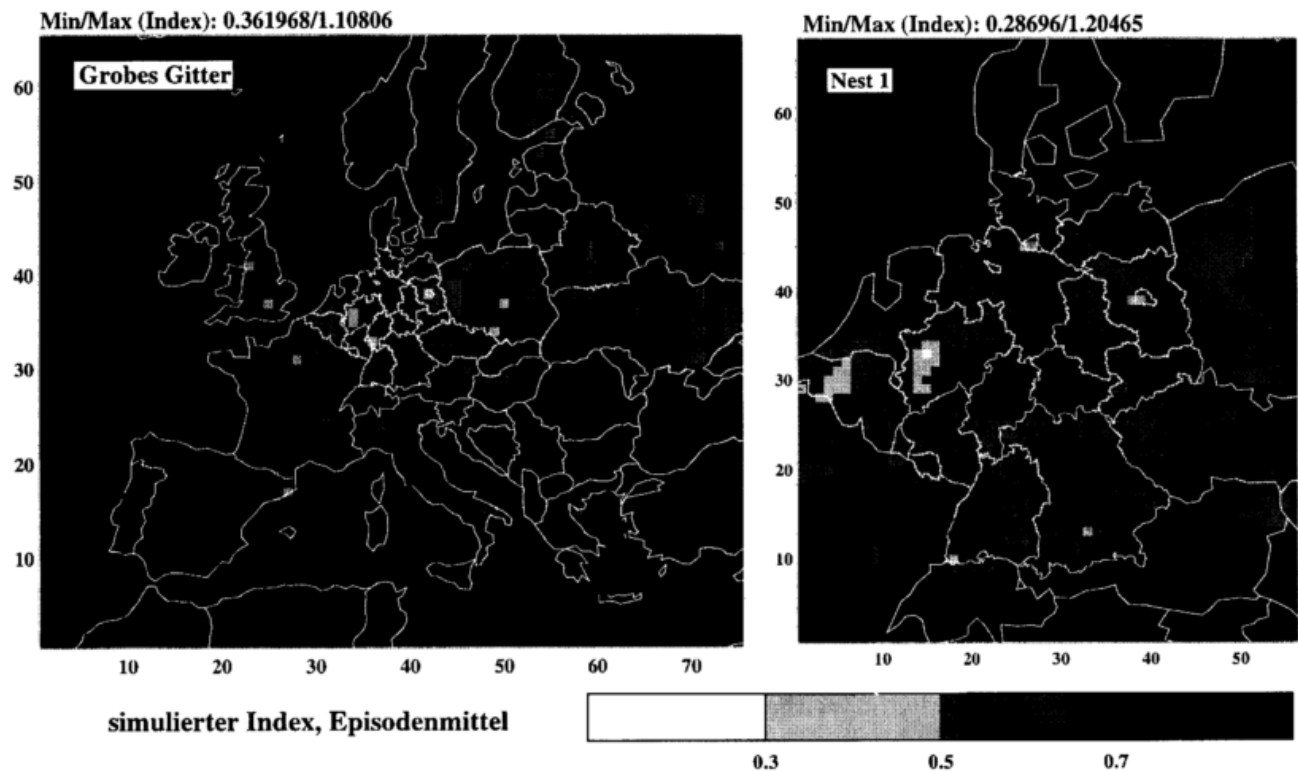


Abbildung 4.13: Episodenmittel der Indexwerte für die modellierten bodennahen Ozonkonzentrationen auf den verschiedenen Modellgittern.

Ein Vorteil des Index ist, daß er genauso wie für die Stationen auch für die bodennahen modellierten Ozonwerte gültig ist. Für den Index wird nur die Allgemeingültigkeit der Form des ersten Eigenvektors vorausgesetzt. Diese wurde im vorigen Abschnitt gezeigt. Da der Index das Regime unabhängig von den absoluten Ozonkonzentrationen bestimmt, ist er bereits für die Initialisierungsperiode des CTMs einsetzbar (siehe Abschnitt 3.3, dort wurde gezeigt, daß bereits während des Vorlaufes das Regime der Gitterpunkte ausgeprägt ist, auch wenn die absoluten Konzentrationen noch stark von den Anfangsdaten bestimmt sind). In Abbildung 4.13 sind nun die über die Episode (ohne Initialisierungsperiode) gemittelten Indexwerte auf den unterschiedlichen Gittern dargestellt. Für das grobe Gitter zeigt sich, daß das vorherrschende Regime Reinluftbedingungen entspricht. Flächenbezogen, also mäßig verschmutzt, sind hauptsächlich große Teile Deutschlands und der Benelux-Staaten. Dies kann, wie im vorigen Kapitel beschrieben, auch auf die spezielle Episode zurückzuführen sein. Städtisches Verhalten mit Werten unter

0.5 sind nur an wenigen Punkten und extreme Verschmutzung gar nicht zu beobachten. Ähnlich sieht es auf dem Nest 1-Gitter aus. Nur ein Gitterpunkt im Ruhrgebiet weist einen mittleren Index kleiner 0.3 auf. Das Ruhrgebiet selbst ist das größte zusammenhängende „städtische“ Gebiet des Modelles.

Für die Bewertung der „Modellklimatologie“ sind diese Bilder sehr hilfreich. Sie geben wie beschrieben den mittleren Zustand an. Zusätzlich wird aber auch — besonders im Nest 1-Gebiet — der Grund dafür deutlich. Dieser liegt eindeutig in den zugrundeliegenden Emissionsdaten. So sieht man auf dem Nest 1-Gebiet die Struktur des EMEP-Gitters (ungefähr 150 km Gitterweite, diagonal zum CTM-Gitter gelegen), auf dem ursprünglich die Emissionsdaten vorlagen. Die Unzulänglichkeit einer Abwärtsskalierung wird deutlich. Die Wichtung mittels der Bevölkerungsdichte vermag diesen Effekt zum Teil abzuschwächen (z. B. Ruhrgebiet und andere europäische Ballungszentren). Bemerkenswert ist, daß dieses Ergebnis alleine aus der Untersuchung der Ozonwerte resultiert.

Ein Vergleich mit den Werten für die Meßstationen (Abbildung 4.12 oben links) zeigt die großen Unterschiede zwischen dem Modell und den Meßnetzen, die überwiegend städtischen Charakters sind. Sieht man dazu, wie unterschiedlich auch dicht beieinander gemessene Ozonzeitreihen für unterschiedliche Stationstypen sein können (z. B. Abbildung 2.6), so wird deutlich, daß nur wenige Stationen für einen direkten Vergleich mit Simulationen geeignet sein können. Das Regime der modellierten Zeitreihen ist zu sehr von den Eingangsdaten abhängig, als daß, ohne deren Qualität zu kennen, Aussagen über die Fähigkeiten des Modelles selber getroffen werden können.

Eine weitere Auswertung der Indexwerte für modellierte und gemessene Ozondaten zeigt die Häufigkeitsverteilungen der Indexwerte in Abbildung 4.14. Dargestellt sind relative Häufigkeiten normiert mit der Anzahl der Werte in der entsprechenden Datenuntermenge. In der oberen Reihe sind die Indexwerte der Messungen gezeigt, links für den dreimonatigen Zeitraum, rechts für die simulierte Episode, jeweils die gesamten Beobachtungen und nach Stationstyp getrennt. Auch hier zeigt sich, daß die Klassifizierungsmethoden vergleichbare Ergebnisse liefern. Die Klassen der unterschiedlichen Typen sind deutlich getrennt, auch wenn man die unterschiedlichen Zahlen, mit denen die Klassen besetzt und die Häufigkeitsverteilungen normiert sind, berücksichtigt. Die deutlichste Trennung liegt zwischen Reinluft (Wald- und Bergstationen) und den verschmutzten Regionen (Verkehrs-, Stadt- und flächenbezogenen Stationen) bei einem Indexwert von ca. 0.7. Gewisse Überschneidungen gibt es zwischen den Klassen, die eine Überprüfung anhand längerer Datensätze wünschenswert erscheinen läßt. Auch Ausreißer wie die Station Essen-Bredeney (mittlerer Index über 0.5) müßten untersucht werden. Es zeigt sich aber auch, daß Reinluftstationen in den Meßnetzen zahlenmäßig deutlich unterrepräsentiert sind.

In der Abbildung oben rechts sind die Werte für die Messungen während der simulierten Episode dargestellt und ermöglichen so, den Einfluß eines kürzeren Zeitraumes zu betrachten. Wesentliche Änderungen bei den Wald- und Bergstationen sind nicht zu beobachten. Die Trennung von den städtischen Stationstypen verläuft weiterhin bei 0.7, und die beiden Reinluftklassen selbst sind auch hier gut voneinander getrennt. Bei den übrigen Stationstypen stellt man einige interessante Effekte fest. Im Mittel werden die Indexwerte der verschmutzten Stationen um 0.1 kleiner. Dies fällt besonders für die flächenbezogenen Stationen auf, die sich dadurch noch deutlicher von den Reinluftstationen unterscheiden und damit zeigen, daß sie noch unter urbanen Einflüssen stehen. Auch die Verkehrsstationen zeigen eine Besonderheit. Diese Gruppe teilt sich während der Sommersmogepisode in zwei deutlich getrennte Untergruppen, von denen die eine die bereits erwähnte Verschiebung von ca. 0.1 aufweist. Die zweite Gruppe zeigt

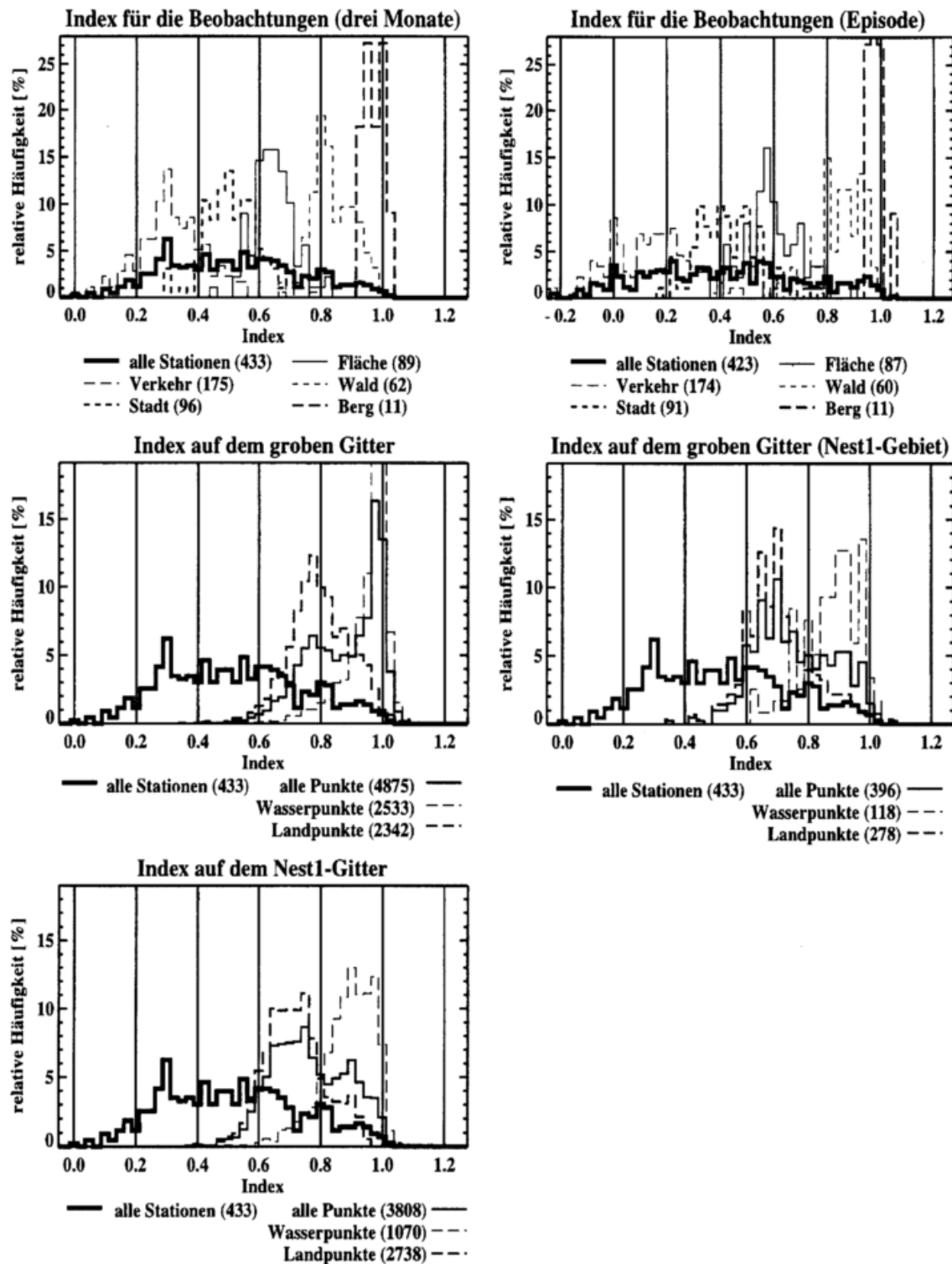


Abbildung 4.14: Relative Häufigkeitsverteilungen der Indexwerte für die simulierte Episode (nur oben links für den 3-Monate-Zeitraum der Messungen); jeweils dick durchgezogen gezeichnet ist zum Vergleich die Verteilung für alle Stationen und den dreimonatigen Zeitraum dargestellt (nur oben rechts für die Episode); die obere Reihe zeigt die unterschiedlichen Stationstypen, die mittlere Reihe die Ergebnisse für das grobe Gitter auf dem gesamten sowie auf dem Nest 1-Gebiet, unten die Ergebnisse für die genesteten Simulationen; bei den Modell-daten wurde zusätzlich zwischen Land- und Wasserpunkten unterschieden; gezeigt sind jeweils die relativen Häufigkeiten in % normiert bzgl. der Anzahl der Werte in der entsprechenden Datenteilmenge.

aber eine wesentlich größere Abnahme des Index auf Werte von ca.  $-0.25$  bis  $0.05$ , die für den dreimonatigen Zeitraum fast nicht besetzt waren.

Im Vergleich dazu zeigen die unteren Reihen von Abbildung 4.14 Häufigkeitsverteilungen für Indexwerte aus simulierten Daten (dazu jeweils zum Vergleich die Ergebnisse aller Stationen für die gesamten drei Monate). Unterschieden wird zwischen allen Gitterpunkten, Land- und Wasserpunkten. Diese beiden Gitterpunktstypen zeigen nahezu disjunkte Häufigkeitsverteilungen, wobei die Wasserpunkte Indexwerte zwischen  $0.8$  und  $1.$  aufweisen, also vom Typ „remote“ sind. Das Modellverhalten im Vergleich zu den Messungen zeigt sich am deutlichsten in den Landpunkten. Während das grobe Gitter (mittlere Reihe links) sein Maximum deutlich über  $0.7$  — und nur wenige Werte darunter — aufweist, zeigt das Nest 1 (unten) für die Landpunkte Werte zwischen ca.  $0.65$  und  $0.75$ . Dies unterstützt die Aussage, daß die Simulation auf dem groben Gitter einen überwiegend ländlichen Charakter zeigt, während das Nest 1 zu gleichen Teilen flächenbezogenes wie ländliches Verhalten aufweist. Daß dies zu einem bedeutenden Teil für die betrachtete Episode vom gewählten Gebiet abhängt, zeigen die Ergebnisse des groben Gitters auf dem Nest 1-Gebiet (Mitte rechts in der Abbildung). Diese entsprechen tendenziell den Häufigkeitsverteilungen des Nest 1-Gitters.

Deutlich wird besonders, daß die Schwerpunkte der gemessenen Daten wesentlich städtischer sind als die der simulierten Indexwerte. Die Modelldaten weisen kaum Indexwerte kleiner  $0.5$  (also Verkehrs- oder Stadtstationscharakter) auf, und gerade der Schwerpunkt der Simulationen zwischen flächenbezogenem und ländlichem Charakter ist bei den Meßdaten unterbesetzt. Dies ist bei der Validierung des Modelles anhand der Messungen zu beachten.

Zum Schluß dieses Kapitels sollen die aktuellen Indexwerte des 26. Juli 1994 für Modell und Messungen in Abbildung 4.15 diskutiert werden. Zuerst bietet sich für die Modelldaten der Vergleich mit Abbildung 4.13 an. Der einzelne Tag zeigt wesentlich mehr Struktur und größere Wertebereiche als das Episodenmittel. Auch findet sich das Muster der Emissionsdaten nur bei den gemittelten Indexwerten. Für den 26. Juli weisen einige Gitterpunkte über Wasser sogar verkehrsnahen Charakter auf. Andererseits tauchen auch extrem hohe, vorher weder für Modelldaten noch für Messungen beobachtete Werte auf (leider bei der benutzten Skalierung nicht zu lokalisieren). Diese hängen mit der aktuellen Wettersituation zusammen, bzw. sind auf Transportphänomene zurückzuführen.

Die höchsten Werte werden in der Gegend von Rotterdam beobachtet, wo an diesem Tag auch extrem niedrige Ozonkonzentrationen (siehe Abbildung 3.4) modelliert werden. Wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, liegt die Küste der Niederlande zu dieser Zeit auf der „sauberen“ Seite eines Frontensystems. Eine damit zusammenhängende Konvergenzlinie ist am Morgen des 26. über Norddeutschland hinweggezogen und erstreckte sich bis nach Skandinavien entlang dem Westen von Dänemark. Dabei wurden hohe Ozonkonzentrationen nach Norden transportiert. Auch die modellierten Indexwerte zeigen diese Fahne, charakterisiert durch Werte, die für das sonst dort vorherrschende Regime zu niedrig sind. In Richtung Süden erstreckt sich diese Zone bis über Berlin hinaus.

Entgegen den Beobachtungen wurde für das Ruhrgebiet ein lokales Minimum im Ozon prognostiziert. Der Index zeigt aber für diese Gitterpunkte sehr niedrige Werte an, was darauf hindeutet, daß das Regime im Modell dort trotzdem — den Messungen entsprechend — stark belasteter Luft entspricht. Interessant ist noch, daß im Südosten von England die verschmutzte Abluftfahne mehr als  $100\text{ km}$  weit über der Nordsee im Index beobachtet werden kann.

Für die aus Messungen bestimmten Indexwerte bietet sich auch zuerst der Vergleich mit dem Episodenmittel aus Abbildung 4.12 (dort oben links) an. Besonders in Sachsen sowie im Nord-

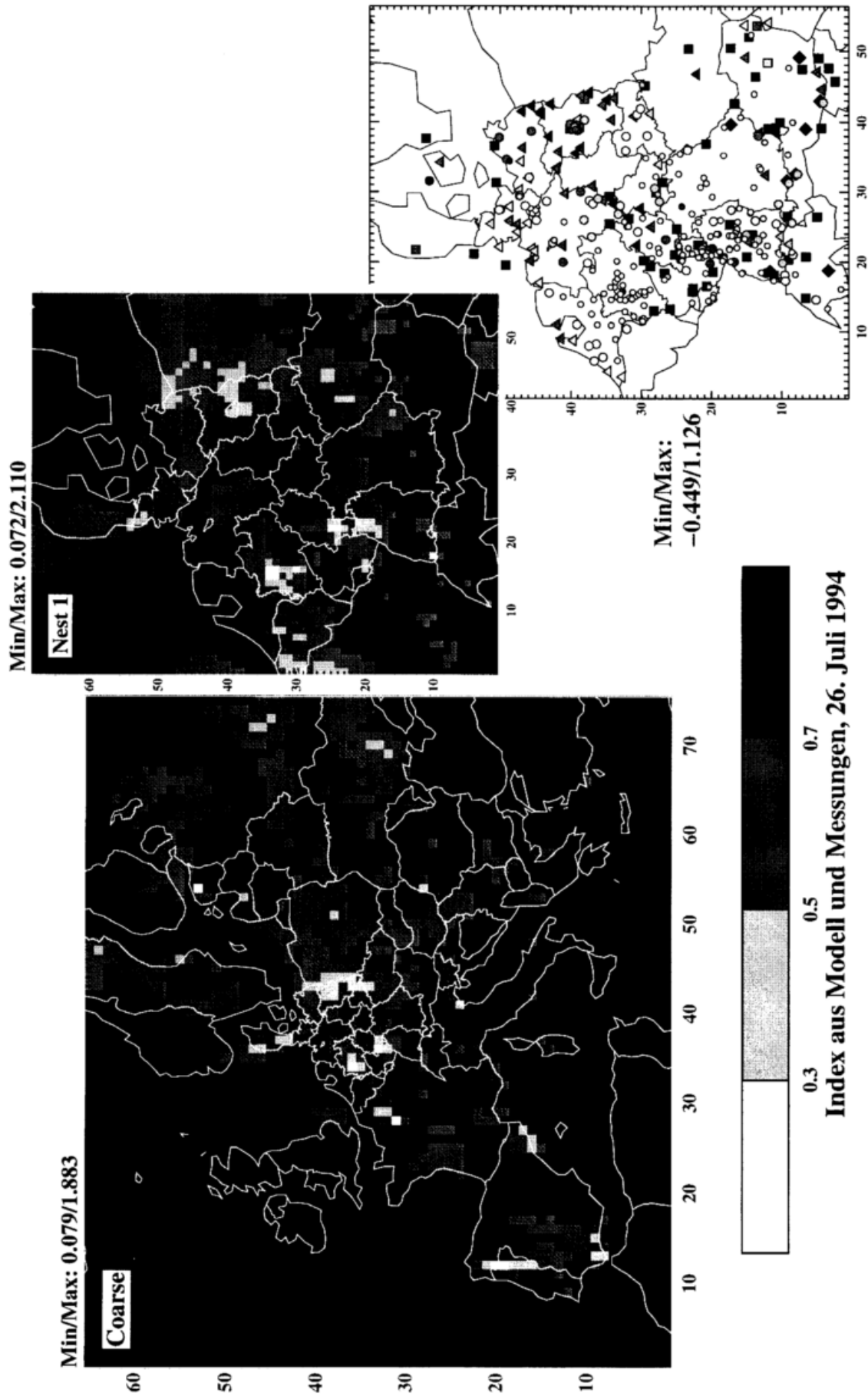


Abbildung 4.15: Indexwerte für den 26. Juli 1994 für die modellierten bodennahen Ozonkonzentrationen auf den verschiedenen Modellgittern sowie für die Beobachtungen auf dem Nest 1-Gebiet.

westen des Nest 1-Gebietes sind die Indexwerte niedriger als im Episodenmittel. Alle Hamburger Stationen, aber auch der größte Teil der niederländischen Stationen außer den unmittelbar an der Küste gelegenen weisen Indexwerte unter 0.3 auf.

Der Vergleich der Indexwerte für simulierte und beobachtete Daten zeigt einmal mehr, daß das Modell außer in den größten Ballungsräumen den städtischen Charakter nicht wiedergeben kann. An einzelnen Stellen ist es in der Lage, den großen Gradienten zwischen Land und Stadt im Index aufzulösen (u. a. Basel/Schwarzwald, Frankfurt/Königsstuhl). Zur Bewertung der aktuellen Situation läßt sich beispielsweise sagen, daß die höheren Indexwerte an der Küste der Niederlande im Modell wesentlich weiter ins Land hineinreichen als es die Messungen andeuten.

Der Index ist ein geeignetes Maß für die Diagnose von Ozonzeitreihen. Sowohl für Daten aus Modellen als auch für Messungen kann das vorherrschende aktuelle oder mittlere Regime quantifiziert werden. Für die vorliegende Arbeit ist dies das Hauptresultat des Kapitels. Zusammen mit den Ergebnissen der vorigen beiden Kapitel über die Meßdaten und die simulierten Konzentrationen können damit quantitative Aussagen über die Repräsentativität und Vergleichbarkeit verschiedener Daten getroffen werden. Ebenso lassen sich Charakteristika der verschiedenen Meßnetze oder unterschiedlicher Modellgitter aufzeigen. Wie zuletzt gezeigt, kann der Index auch ein hilfreiches Diagnosewerkzeug für die Auswertung von simulierten Episoden bzw. die Entwicklung einzelner Luftmassen sein.

## Kapitel 5

# Die Objektive Analyse

Wenn die astronomischen Beobachtungen und die übrigen Zahlen, auf welche die Bahnrechnung sich stützt, einer absoluten Genauigkeit sich erfreuten, so würden auch die Elemente, mag man sie nun aus drei oder aus vier Beobachtungen herleiten, sogleich absolut genau herauskommen (wenigstens so lange man voraussetzt, dass die Bewegung genau nach den Kepler'schen Gesetzen vor sich geht) und sie könnten daher durch Hinzunahme anderer und wieder anderer Beobachtungen nur bestätigt, nicht verbessert werden. Da aber alle unsere Messungen und Beobachtungen nichts als Annäherungen an die Wahrheit sind, und dasselbe von allen darauf gestützten Rechnungen gelten muss, so muss das höchste Ziel aller über concrete Erscheinungen angestellter Rechnungen darin gefunden werden, der Wahrheit so nahe als möglich zu kommen. Dies kann aber in keiner anderen Weise geschehen, als durch eine geeignete Combination von mehr Beobachtungen, als absolut zur Bestimmung der unbekanntenen Grössen erforderlich sind. Diese Arbeit lässt sich jedoch erst dann unternehmen, wenn man bereits eine genäherte Kenntniss der Bahn besitzt, welche dann so zu verbessern ist, dass sie allen Beobachtungen so nahe als möglich entspricht. (Gauß, 1809, übersetzt 1865)

Die Aufgabe der atmosphärischen Datenanalyse ist eine vollständige Beschreibung des Zustandes der Atmosphäre, die konsistent mit den physikalischen und chemischen Gesetzen ist. Grundlage dafür sind in Raum und Zeit unregelmäßig verteilte Beobachtungen, und das Ergebnis ist eine in Raum und Zeit vollständige Darstellung z. B. als Karten oder auf einem numerischen Gitter. Der ideale Algorithmus filtert dazu den Anteil an der Varianz der Beobachtungen heraus, der durch die begrenzte Dichte des Meßnetzes nicht aufgelöst wird, und den Anteil, der auf die Unsicherheiten der Messung zurückführbar ist. Das Ziel dieses Kapitels ist die Entwicklung eines Verfahrens zur objektiven Analyse von Messungen chemischer Spurenstoffe. Besonderes Gewicht wird dabei auf die chemische Repräsentativität der Daten in bezug auf die konkrete Vergleichbarkeit gemessener und simulierter Werte gelegt. Die Grundlagen dafür sind die Ergebnisse der vorangegangenen drei Kapitel dieser Arbeit. Das Verfahren der „optimalen Interpolation“ ist dafür besonders geeignet, da hierbei neben den Meßdaten selbst auch Modelldaten als Hintergrundfeld sowie Meß-, Modell- und Repräsentativitätsfehler in die Analyse eingehen. Es bietet somit die Möglichkeit, auch die chemische Repräsentativität mittels des in Abschnitt 4.5 entwickelten Maßes zu berücksichtigen. Die optimale Interpolation gehört bereits seit langem zu den Standardmethoden in der Meteorologie und wird von den meisten Vorhersagezentren für die Datenassimilation genutzt (Daley, 1991). Dies wird auch die Hauptanwendung der Analysen in dieser Arbeit sein.

Bereits in der ersten Hälfte des 19. Jahrhunderts gab es Ansätze, meteorologische Beobachtungen zu kartieren, und mit der Einführung der Synoptischen Karten um 1860 wurde ein wichtiges Werkzeug für die Untersuchung meteorologischer Gesetzmäßigkeiten und die Erstel-

lung von Prognosen geschaffen. Diese Karten entstanden, indem zuerst die Daten auf eine geographische Karte eingetragen und schließlich Isolinien der betrachteten Größen von Hand gezeichnet wurden. Mit den Anfängen der numerischen Wettervorhersage entstand der Bedarf an effektiveren Methoden, um Anfangswerte für die Modelle zu diagnostizieren. So wurden numerische Algorithmen konstruiert, die „automatisch“ Daten eines Netzes aus räumlich unregelmäßig verteilten Beobachtungen auf ein reguläres, äquidistantes zwei- oder dreidimensionales Gitter interpolierten. Die Ergebnisse solcher Prozeduren wurden als „objektive Analysen“ bekannt. Objektiv in dem Sinn, daß sie nicht von der Subjektivität eines menschlichen Analytikers abhängig sind. Der Begriff der Objektivität ist natürlich insoweit Fiktion, als daß die menschliche Komponente in die Wahl des mathematischen oder statistischen Modelles eingeht und der Erfolg des Algorithmus von der „Finesse“ dieser Wahl abhängt (Daley, 1991).

Erste ernsthafte Versuche in Richtung der objektiven Analyse gingen von Panofsky (1949) aus, der in seinem Verfahren mittels zweidimensionaler Polynome die Beobachtungen auf einen Ausschnitt des Analysegitters interpolierte. Eine Weiterentwicklung war der Algorithmus von Gilchrist und Cressman (1954), der das Konzept eines „Einflußbereiches“ einzelner Gitterpunkte einführte. Polynome wurden nur noch lokal an die Beobachtungen innerhalb des Einflußbereiches eines einzelnen Gitterpunktes angepaßt. Kurz darauf kamen die ersten Schritte in Richtung der „Methode sukzessiver Korrekturen (SCM)“ (siehe Abschnitt 5.3) ausgehend von Bergthorsson und Döös (1955). In deren Arbeit wurde das Konzept der Hintergrundfelder eingeführt, die aus einer Klimatologie oder einer vorausgehenden Vorhersage abgeleitet werden. Die Beobachtungen werden nicht direkt analysiert, sondern es werden Beobachtungsinkremente — die Differenzen von Meß- und Hintergrundwerten — berechnet und analysiert, um Analyseinkremente zu erhalten, die dann zum Hintergrundfeld addiert werden. Die Analyseinkremente sind gewichtete Linearkombinationen aus den im Einflußbereich des Gitterpunktes liegenden Beobachtungen, und die Gewichte berechnen sich abhängig vom räumlichen Abstand zwischen dem Ort der Beobachtung und dem Gitterpunkt. Auf diesem Ansatz bauten erste operationelle Anwendungen der Analyseverfahren auf (Bergthorsson und Döös, 1955, Cressman, 1959). Weiter ging die Entwicklung parallel zu den Fortschritten in der numerischen Wettervorhersage. Es wurde obligatorisch, einerseits Hintergrundfelder aus den vorangegangenen Modellläufen zu nutzen und andererseits die Ergebnisse der objektiven Analyse zur Initialisierung der Modelle heranzuziehen. Am verbreitetsten war für lange Zeit die Technik der „optimalen (oder statistischen) Interpolation (OI)“ (Gandin, 1963; siehe Abschnitt 5.2), die in ihren ersten Ansätzen der aus dem Bergbau und der Seismologie stammenden Methode des „Kriging“<sup>1</sup> (z. B. Matheron, 1963) ähnelte, außer daß sie ein Hintergrundfeld voraussetzte und explizit Beobachtungsfehler berücksichtigte.

Der folgende Abschnitt dient einer möglichst allgemeinen Einführung in die univariate Analyse (nach Lorenc, 1986, und Daley, 1991). Die hier abgeleiteten Gleichungen sind ohne weiteres auf eine multivariate, zeitabhängige, nichtlineare Analyse übertragbar. In den nächsten Abschnitten können die Methoden der OI und SCM als Spezialfälle dieses allgemeinen Verfahrens vorgestellt werden. Es empfiehlt sich also, die historische Entwicklung bei der Darstellung umzukehren. Nach diesen Vorbereitungen wird schließlich im letzten Abschnitt des Kapitels ein neues Verfahren zur Analyse von Schadstoffverteilungen vorgestellt, das der besonderen Problematik der chemischen Repräsentativität der Daten Rechnung trägt. Dabei werden neben den Beobachtungen und Modelldaten klimatologische Informationen über Modell- und Meßfehler sowie der Index für das aktuelle chemische Regime berücksichtigt. Auch an dieser Stelle sei noch einmal darauf hingewiesen, daß sich die etwas grobe Verwendung des Begriffes „Fehler“

<sup>1</sup>Kriging ist benannt nach D. Krig, einem südafrikanischen Bergbauingenieur, der zwar nicht die Methode selbst, aber wichtige Vorläufer davon entwickelt hat.

als Vereinfachung für alles das anbietet, was eine Messung von dem für ein bestimmtes Volumen „passenden“ oder „wahren“ Wert unterscheidet. Im Folgenden wird auch darauf weiter eingegangen.

## 5.1 Ein allgemeiner Algorithmus

Eine Größe  $f$  soll in einem zwei- oder dreidimensionalen Gebiet mit  $K$  Messungen und einem regulären Gitter mit  $I$  Gitterpunkten  $\mathbf{r}_i$  auf das Feld  $f_A(\mathbf{r}_i)$ ,  $1 \leq i \leq I$ , analysiert werden.<sup>2</sup> Gegeben sind die Meßdaten  $f_O(\mathbf{r}_k)$ ,  $1 \leq k \leq K$ , und ein Hintergrundfeld  $f_B(\mathbf{r}_i)$ ,  $1 \leq i \leq I$ , für die auf den Analysegitterpunkten  $\mathbf{r}_i$  definierte Größe  $f$ . Eine Abschätzung für den Hintergrundwert am Meßpunkt  $\mathbf{r}_k$  erhält man aus

$$f_B(\mathbf{r}_k) = \Omega(\underline{f}_B),$$

wobei  $\underline{f}_B$  der Spaltenvektor der Länge  $I$  mit den Hintergrundwerten an den Gitterpunkten und  $\Omega$  ein (linearer oder nichtlinearer) Vorwärtsinterpolationsalgorithmus ist. An dieser Stelle ist es wichtig, die Basis des Gitters genau zu definieren, da dies Konsequenzen für die Interpolation  $\Omega$  hat. Die Gitterpunktsgrößen sollen also hier den Wert am Gitterpunkt selbst und nicht ein Mittel über die gesamte Gitterbox darstellen. Mit  $\Omega$  kann auch die Umrechnung zwischen physikalischen Größen gemeint sein, wenn die gemessene Größe nicht der zu analysierenden Feldvariablen entspricht. Üblicherweise, im univariaten Fall, beschreibt  $\Omega$  nur eine bilineare Interpolation. Ein größeres Problem entsteht, falls in vertikaler Richtung interpoliert werden muß, da viele physikalische Größen in vertikaler Richtung sehr große Variationen aufweisen. Aufgrund der vertikalen Gitterstruktur der Modelle können minderwertige Interpolationsschemata große Fehler in der Analyse bewirken (Hollingsworth et al., 1986). Im weiteren kann von  $\Omega$  als einem linearen Operator ausgegangen werden, so daß gilt

$$f_B(\mathbf{r}_k) = \sum_{j=1}^I \Omega_{kj} f_B(\mathbf{r}_j).$$

Die Grundform der Analysegleichung, in der aus den Beobachtungsincrementen  $f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k)$  das Analyseinkrement  $f_A(\mathbf{r}_i) - f_B(\mathbf{r}_i)$  am Gitterpunkt  $i$  berechnet wird, schreibt sich

$$f_A(\mathbf{r}_i) = f_B(\mathbf{r}_i) + \sum_{k=1}^K W_{ik} \left[ f_O(\mathbf{r}_k) - \sum_{j=1}^I \Omega_{kj} f_B(\mathbf{r}_j) \right]$$

oder

$$f_A(\mathbf{r}_i) = f_B(\mathbf{r}_i) + \underline{W}_i^T \left[ \underline{f}_O - \underline{\Omega} \underline{f}_B \right]. \quad (5.1)$$

$\underline{W}_i$  ist der Spaltenvektor der Länge  $K$  mit den (linearen oder nichtlinearen) Analysegewichten  $W_{ik}$ , die das Gewicht der  $k$ -ten Messung auf den Wert am Gitterpunkt  $i$  bestimmen, das Superskript  $T$  bedeutet Transposition,  $\underline{\Omega}$  ist die  $K \times I$  Matrix mit den Elementen  $\Omega_{kj}$ , und  $\underline{f}_O$  ist der Spaltenvektor der Länge  $K$  der Beobachtungen.

Eine praktische Definition für die „beste“ Analyse wäre die mit der besten anschließenden Vorhersage. Allerdings muß man dabei die Möglichkeit ausschließen können, daß Fehler in der Analyse Modellfehler kompensieren, da die Modelle selber fehlerhaft sind und ständig weiterentwickelt werden (Lorenc, 1986). Üblicherweise werden für einen „optimalen“ Algorithmus die Analysegewichte  $W_{ik}$  so bestimmt, daß der Erwartungswert des quadratischen Analysefehlers,

<sup>2</sup>In diesem Kapitel stehen die Indizes  $i$  und  $j$  für Gitterpunkte,  $k$  und  $l$  für Meßpunkte und  $m$  und  $n$  für beliebige Orte, nur in Abschnitt 5.3 beschreibt  $j$  den Index der Iteration.

d. h. der Varianz der Analysefehler, minimiert wird. Den Fehler der Analyse erhält man durch Subtraktion des tatsächlichen Wertes  $f_T$  von Gleichung 5.1

$$\varepsilon_A(\mathbf{r}_i) = \varepsilon_B(\mathbf{r}_i) + \underline{W}_i^T \left[ \underline{\varepsilon}_O - \underline{\Omega} \underline{\varepsilon}_B + \underline{\varepsilon}_F \right]. \quad (5.2)$$

$\varepsilon_A(\mathbf{r}_i)$  und  $\varepsilon_B(\mathbf{r}_i)$  sind die Fehler der Analyse und des Hintergrundfeldes am Gitterpunkt  $\mathbf{r}_i$ ,  $\underline{\varepsilon}_O$  ist der Spaltenvektor der Länge  $K$  mit den Beobachtungsfehlern an den Meßpunkten,  $\underline{\varepsilon}_B$  bezeichnet den Spaltenvektor der Länge  $I$  mit den Fehlern des Hintergrundfeldes an den Gitterpunkten. Der Spaltenvektor  $\underline{\varepsilon}_F$  der Länge  $K$  steht für den Fehler der Vorwärtsinterpolation, und seine Elemente  $\varepsilon_F(\mathbf{r}_k)$  sind definiert als

$$\varepsilon_F(\mathbf{r}_k) = f_T(\mathbf{r}_k) - \sum_{j=1}^I \Omega_{kj} f_T(\mathbf{r}_j).$$

Mit  $f_T(\mathbf{r}_j)$  und  $f_T(\mathbf{r}_k)$  sind die „wahren“ Werte von  $f$  an den Analysegitterpunkten  $\mathbf{r}_j$  und den Beobachtungspunkten  $\mathbf{r}_k$  gemeint.  $\varepsilon_F$  kann auch den Repräsentativitätsfehler enthalten, einen Fehler etwas „nebulöser“ Art (Daley, 1991). Gemeint sind damit die Anteile an dem gemessenen Wert, die durch kleinskalige Prozesse verursacht sind, also auf Skalen stattfinden, die von dem Beobachtungsnetz räumlich nicht aufgelöst werden können (siehe auch Abschnitt 5.2). Angenommen wird nun, daß  $\underline{\varepsilon}_O$ ,  $\underline{\varepsilon}_B$  und  $\underline{\varepsilon}_F$  im Mittel verschwinden — also keine systematischen Fehler aufweisen, die, sobald bekannt, subtrahiert werden können — und nicht untereinander korreliert sind, also

$$\langle \underline{\varepsilon}_O \rangle = \langle \underline{\varepsilon}_B \rangle = \langle \underline{\varepsilon}_F \rangle = 0$$

und

$$\langle \underline{\varepsilon}_O \underline{\varepsilon}_B^T \rangle = \langle \underline{\varepsilon}_O \underline{\varepsilon}_F^T \rangle = \langle \underline{\varepsilon}_B \underline{\varepsilon}_F^T \rangle = \langle \underline{\varepsilon}_O \varepsilon_B(\mathbf{r}_i) \rangle = \langle \underline{\varepsilon}_F \varepsilon_B(\mathbf{r}_i) \rangle = 0.$$

$\langle \dots \rangle$  steht für den Erwartungswert. Quadrieren von Gleichung 5.2 und Bildung des Erwartungswertes ergibt eine Beziehung für die Varianz des Analysefehlers:

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon_A^2(\mathbf{r}_i) \rangle &= \langle \varepsilon_B^2(\mathbf{r}_i) \rangle - 2 \underline{W}_i^T \underline{\Omega} \langle \underline{\varepsilon}_B \varepsilon_B(\mathbf{r}_i) \rangle \\ &\quad + \underline{W}_i^T \left[ \langle \underline{\varepsilon}_O \underline{\varepsilon}_O^T \rangle + \underline{\Omega} \langle \underline{\varepsilon}_B \underline{\varepsilon}_B^T \rangle \underline{\Omega}^T + \langle \underline{\varepsilon}_F \underline{\varepsilon}_F^T \rangle \right] \underline{W}_i. \end{aligned} \quad (5.3)$$

Minimieren dieses Ausdruckes für  $\langle \varepsilon_A^2(\mathbf{r}_i) \rangle$  bezüglich der Analysegewichte  $\underline{W}_i$  liefert

$$\left[ \underline{Q} + \underline{\Omega} \underline{B} \underline{\Omega}^T + \underline{F} \right] \underline{W}_i - \underline{\Omega} \underline{B}_i = 0,$$

dabei sind nun  $\underline{Q} = \langle \underline{\varepsilon}_O \underline{\varepsilon}_O^T \rangle$  die  $K \times K$  Kovarianzmatrix der Beobachtungsfehler,  $\underline{F} = \langle \underline{\varepsilon}_F \underline{\varepsilon}_F^T \rangle$  die  $K \times K$  Kovarianzmatrix der Fehler in der Vorwärtsinterpolation,  $\underline{B} = \langle \underline{\varepsilon}_B \underline{\varepsilon}_B^T \rangle$  die  $I \times I$  Kovarianzmatrix der Fehler im Hintergrundfeld und  $\underline{B}_i = \langle \underline{\varepsilon}_B \varepsilon_B(\mathbf{r}_i) \rangle$  der Vektor der Länge  $I$  mit den Kovarianzen der Fehler im Hintergrundfeld. Schließlich erhält man die optimalen Analysegewichte  $\underline{W}_i$  für den Gitterpunkt  $i$  aus

$$\underline{W}_i = \left[ \underline{Q} + \underline{\Omega} \underline{B} \underline{\Omega}^T + \underline{F} \right]^{-1} \underline{\Omega} \underline{B}_i. \quad (5.4)$$

Diese Beziehung läßt sich auch aus der Minimierung des folgenden Funktionals  $J$  in bezug auf den Spaltenvektor der Länge  $I$  mit den analysierten Werten  $\underline{f}_A$  ableiten (Lorenc, 1986)

$$J = \frac{1}{2} \left\{ \left[ \underline{\Omega} \underline{f}_A - \underline{f}_O \right]^T \left[ \underline{Q} + \underline{F} \right]^{-1} \left[ \underline{\Omega} \underline{f}_A - \underline{f}_O \right] + \left[ \underline{f}_A - \underline{f}_B \right]^T \underline{B}^{-1} \left[ \underline{f}_A - \underline{f}_B \right] \right\}. \quad (5.5)$$

Lorenc (1986) zeigt, daß Analysen mit minimaler Varianz des Analysefehlers (nach Gleichung 5.3) mit den Analysen, die das Funktional 5.5 minimieren, identisch sind. Kostenfunktionen ähnlich der Gleichung 5.5 dienen als Grundlage für die variationellen Analysealgorithmen oder die variationelle Datenassimilation. Der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung 5.5 ist ein Maß für die Abweichung von den Daten, der zweite Term beschreibt die Abweichung von zusätzlichen Informationen und Zwangsbedingungen, die in die Analyse einfließen.

Der allgemeine Algorithmus nach den Gleichungen 5.1 und 5.4 bedarf nun einiger Diskussion. Der Mangel an Information und Computerressourcen machen Approximationen bei der Anwendung des Verfahrens notwendig, aber ebenso notwendig ist eine möglichst genaue Kenntnis über den Einfluß dieser Vereinfachungen in bezug auf die ideale Lösung.

Es handelt sich bei dem vorgestellten Schema um ein globales Verfahren. In der Praxis wird entweder das Funktional 5.5 direkt minimiert, oder das Verfahren wird in vereinfachter Form lokal angewandt, da die Inversion der Matrix für die Bestimmung der Analysegewichte in Gleichung 5.4 zu aufwendig ist. Eine lokale Anwendung bedeutet, daß das Minimum für die Varianz des Analysefehlers kein absolutes sein muß; lokal heißt, die analysierten Werte werden nicht aus sämtlichen zur Verfügung stehenden Meßwerten berechnet. Eine Möglichkeit, die Zahl der nutzbaren Beobachtungen zu vergrößern, ist die Verwendung von Zeitreihen. Der Algorithmus erlaubt vierdimensionale Felder in Raum und Zeit für die Größe  $f$  und die Berücksichtigung der Modellgleichungen als Zwangsbedingungen in der Berechnung der Kostenfunktion bzw. der Vorwärtsinterpolation, um die Unterbestimmtheit des Analyseproblems zu beseitigen. Damit ist auch die Grundlage für die vierdimensionale variationelle Datenassimilation gelegt.

Ein großer Vorteil des Verfahrens ist die Möglichkeit, die Fehler in den Beobachtungen sowie der Vorwärtsinterpolation und des Hintergrundfeldes explizit einzubeziehen. Generell ist aber davon auszugehen, daß die Kovarianzmatrizen der Fehler des Hintergrundfeldes und der Vorwärtsinterpolation nicht auf dem gesamten Modellgebiet hinreichend genau bekannt sind und auch die Kovarianzen der Beobachtungsfehler nicht exakt abgeschätzt werden können. Das Problem besteht z. B. darin, daß eine Quantifizierung dieser Größen nur aus der Auswertung sehr langer Datenreihen möglich ist, die verwendeten Modelle selbst — oder auch die Beobachtungssysteme — aber in kürzeren Abständen modifiziert und verbessert werden. Eine Bestimmung der Varianzen der Fehler im Hintergrundfeld ist besonders in datenarmen Gebieten schwierig, wo die Bewertung von Vorhersagen erschwert ist. Die Fehlervarianzen können von niedrigen Werten, wie sie für Gebiete mit einer guten Datenlage, in denen auch die Vorhersagen üblicherweise besser sind, bis zu hohen Werten variieren, wo sich das Hintergrundfeld aus Mangel an aktuellen Daten an klimatologische Werte anlehnt. Die Annahme der Abwesenheit systematischer Fehler ist nicht unbedingt realistisch, nur bekannte systematische Fehler können vor der Analyse von den entsprechenden Werten subtrahiert werden. Nicht bestimmbare systematische Fehler werden in jedem Fall die Güte der Analyse negativ beeinflussen (siehe auch die Diskussion der Fehler in Beobachtungen aus Abschnitt 2.2). Bei verschiedenen Beobachtungssystemen können Korrelationen zwischen Beobachtungs- und Hintergrundfehlern auftreten. Zum Beispiel gibt es Verfahren, die zur Berechnung von Temperaturverteilungen aus satellitengestützten radiometrischen Messungen Hintergrundinformationen aus Vorhersagen benutzen. Dieses Problem kann umgangen werden, indem für die Analyse nur die Rohdaten (z. B. bei Satellitenmessungen die Strahlungsflußdichten in verschiedenen Spektralintervallen) benutzt werden.

## 5.2 Die Optimale Interpolation

Seit der Mitte der 70er Jahre wird die Methode der optimalen Interpolation<sup>3</sup> bei den meisten operationell arbeitenden westlichen Wetterdiensten für die objektive Analyse atmosphärischer Daten angewandt. Zurückzuführen ist dies auf den großen Einfluß, den das 1963 in der damaligen Sowjetunion erschienene Buch von L. S. Gandin in Ost und West hatte. Auch in der Ozeanographie ist das Verfahren verbreitet, dort unter der Bezeichnung „Gauß-Markov Methode“ bekannt.

In der ursprünglichen Form ist die OI ein rein räumliches Verfahren. Der Fortschritt, den die Einführung der OI seinerzeit mit sich brachte, war die explizite Berücksichtigung von Beobachtungsfehlern im Algorithmus. Vorausgesetzt wird die Kenntnis eines Hintergrundfeldes. Dieses wird, im Gegensatz zu dem Verfahren aus dem vorigen Abschnitt, als kontinuierlich angenommen. Auf die Vorwärtsinterpolation  $\underline{\Omega}$  wird somit verzichtet, die Hintergrundwerte — und damit auch die analysierten Werte — sind sowohl an den Gitterpunkten als auch an den Orten der Beobachtungen bekannt. Die Konsequenz ist, daß der Fehler der Repräsentativität der Beobachtungen nun in der Kovarianzmatrix der Beobachtungsfehler  $\underline{Q}$  enthalten ist. Das heißt, die in dem OI Verfahren benutzten Beobachtungsfehler sind abhängig von der verwendeten Auflösung des Gitters. Nach Lorenc (1986) besteht die Berechtigung, Repräsentativitätsfehler zu berücksichtigen, in einer dem Analyseproblem angepaßten Umdefinition des Begriffes der Wahrheit. Als „wahr“ sollen nur Informationen oder Phänomene bezeichnet werden, die zu den räumlichen Skalen gehören, die analysiert werden sollen. Daley (1991) weist darauf hin, daß die so definierte Wahrheit nur ein abgeschnittener Teil des Spektrums oder eine geglättete Version der tatsächlichen Wahrheit ist. Es liegt also in der Natur der gestellten Aufgabe, nur an einem Teil der Wahrheit interessiert zu sein.

Die Form der Analysegleichung ist wie im vorigen Abschnitt

$$f_A(\mathbf{r}_i) = f_B(\mathbf{r}_i) + \sum_{k=1}^K W_{ik} [f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k)]. \quad (5.6)$$

Da die Vorwärtsinterpolation entfällt, bezeichnet  $f_B(\mathbf{r}_k)$  den Wert des Hintergrundfeldes am Beobachtungspunkt  $\mathbf{r}_k$ . Die Analysegewichte  $W_{ik}$  werden hier als linear vorausgesetzt. Subtraktion des wahren Wertes  $f_T$  liefert

$$f_A(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) = f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) + \sum_{k=1}^K W_{ik} [f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k)]. \quad (5.7)$$

Das Hintergrundfeld und die Beobachtungen werden wieder als frei von systematischen Fehlern angenommen (falls solche bekannt sind, könnten sie vor der Analyse subtrahiert werden), also

$$\langle f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \rangle = \langle f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \rangle = \langle f_O(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \rangle = 0.$$

Wegen  $\langle f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k) \rangle = \langle f_O(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \rangle - \langle f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \rangle$  ist das Beobachtungsinkrement und aufgrund von Gleichung 5.7 auch der analysierte Wert  $f_A(\mathbf{r}_i)$  ohne systematische Fehler. Analog zur Herleitung im vorigen Abschnitt ergibt Quadrieren und Bildung des Erwartungswertes von Gleichung 5.7

$$\left\langle \left( f_A(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right)^2 \right\rangle = \left\langle \left( f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right)^2 \right\rangle$$

<sup>3</sup> *Optimale Interpolation* ist die in der Literatur gebräuchliche Bezeichnung. Da in der Praxis die Anwendung des Verfahrens aber nicht optimal sein kann, spricht z. B. Daley (1991) von *statistischer Interpolation*. In dieser Arbeit wird der übliche Ausdruck nur deshalb beibehalten, da die Abkürzung *OI* gefälliger erscheint.

$$\begin{aligned}
& + 2 \sum_{k=1}^K W_{ik} \left\langle \left( f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right) \right\rangle \\
& + \sum_{k=1}^K \sum_{l=1}^K W_{ik} W_{il} \left\langle \left( f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_O(\mathbf{r}_l) - f_B(\mathbf{r}_l) \right) \right\rangle.
\end{aligned}$$

Aus der Minimierung dieser Beziehung für die erwartete Varianz des Analysefehlers bezüglich der Gewichte  $W_{ik}$  erhält man

$$\sum_{l=1}^K W_{il} \left\langle \left( f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_O(\mathbf{r}_l) - f_B(\mathbf{r}_l) \right) \right\rangle = - \left\langle \left( f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right) \right\rangle. \quad (5.8)$$

Formt man z. B. die rechte Seite dieser Gleichung um

$$\begin{aligned}
\left\langle \left( f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right) \right\rangle &= \left\langle \left( f_O(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right) \right\rangle \\
&+ \left\langle \left( f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right) \right\rangle,
\end{aligned}$$

so tauchen — wie hier der erste Term auf der rechten Seite — Kovarianzen zwischen den Fehlern im Hintergrundfeld und den Beobachtungsfehlern der Form  $\langle (f_O(\mathbf{r}_m) - f_T(\mathbf{r}_m)) (f_B(\mathbf{r}_n) - f_T(\mathbf{r}_n)) \rangle$  auf. Unter der im vorigen Abschnitt diskutierten Annahme, daß solche Fehler unkorreliert sind, verschwinden diese Kovarianzen, und Gleichung 5.8 wird zu

$$\begin{aligned}
\sum_{l=1}^K W_{il} \left[ \left\langle \left( f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_B(\mathbf{r}_l) - f_T(\mathbf{r}_l) \right) \right\rangle + \left\langle \left( f_O(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_O(\mathbf{r}_l) - f_T(\mathbf{r}_l) \right) \right\rangle \right] = \\
\left\langle \left( f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k) \right) \left( f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i) \right) \right\rangle.
\end{aligned}$$

Wenn nun  $\underline{f}_B$  den Spaltenvektor der Länge  $K$  mit den Werten des Hintergrundfeldes an den Beobachtungsorten bezeichnet, kann diese Beziehung schließlich geschrieben werden als

$$\underline{W}_i = \left[ \underline{B} + \underline{Q} \right]^{-1} \underline{B}_i. \quad (5.9)$$

Dabei sind  $\underline{Q}$  und  $\underline{B}$  die symmetrischen  $K \times K$  Kovarianzmatrizen der Fehler in den Beobachtungen und im Hintergrundfeld zwischen den Stationen  $\mathbf{r}_k$  und  $\mathbf{r}_l$  mit den Elementen  $\langle (f_O(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k)) (f_O(\mathbf{r}_l) - f_T(\mathbf{r}_l)) \rangle$  und  $\langle (f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k)) (f_B(\mathbf{r}_l) - f_T(\mathbf{r}_l)) \rangle$ .  $\underline{B}_i$  ist der Spaltenvektor der Länge  $K$  mit den Kovarianzen der Fehler im Hintergrundfeld zwischen der Station  $\mathbf{r}_k$  und dem Gitterpunkt  $\mathbf{r}_i$  mit den Elementen  $\langle (f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k)) (f_B(\mathbf{r}_i) - f_T(\mathbf{r}_i)) \rangle$ . Die Beziehungen 5.6 und 5.9 bilden das Verfahren der OI. Die Gewichte aus Gleichung 5.9 sind nur dann optimal — der Erwartungswert der Varianz des Analysefehlers wird minimiert —, wenn die Fehlervarianzen in  $\underline{Q}$ ,  $\underline{B}$  und  $\underline{B}_i$  genau bekannt sind. Da sie aber auf der exakten Kenntnis der wahren Werte beruhen, können sie nicht optimal sein und müssen abgeschätzt werden.

Eine praktische Methode zur Bestimmung der nötigen Größen (z. B. Rutherford, 1972), die auch in Abschnitt 5.4 für die Analyse der chemischen Spurenstoffe angewandt wird, geht von folgenden Annahmen aus. Die Beobachtungen sind räumlich korreliert, nicht aber die Beobachtungsfehler, und die Kovarianzen der Beobachtungsfehler sind räumlich konstant. Davon kann meistens dann ausgegangen werden, wenn es sich um nur einen Instrumententyp handelt und

die Meßorte stationär sind (z. B. bei Radiosonden können Beobachtungsfehler vertikal korreliert sein). Dann ist die Kovarianzmatrix der Beobachtungsfehler diagonal, und es gilt

$$\underline{Q} = E_O^2 \underline{I}. \quad (5.10)$$

$E_O^2$  ist die erwartete Varianz in den Beobachtungsfehlern und  $\underline{I}$  die Identitätsmatrix. Die Varianz des Fehlers im Hintergrundfeld kann ebenfalls als konstant angenommen werden, diese Fehler sind aber in der Regel räumlich korreliert. Geht man von einer homogenen Verteilung der Fehler aus, kann man die Kovarianzen der Fehler im Hintergrundfeld mittels deren erwarteter Varianz  $E_B^2$  und Korrelationsmatrix  $\underline{\rho}_B$  — bzw. dem Vektor  $\underline{\rho}_B^i$ , der die Korrelationen zwischen dem Gitterpunkt  $\mathbf{r}_i$  und den Beobachtungsstationen enthält, — beschreiben

$$\underline{B} = E_B^2 \underline{\rho}_B \quad \text{bzw.} \quad \underline{B}_i = E_B^2 \underline{\rho}_B^i. \quad (5.11)$$

Aus der Homogenität der Verteilung folgt, daß man die Elemente  $\rho_B^{mn}$  der Korrelationsmatrix und des Korrelationsvektors aus einer Funktion  $\rho_B$  berechnen kann, die nur von der räumlichen Distanz und der Richtung abhängt. Da zusätzlich Isotropie in der Verteilung der Fehler des Hintergrundfeldes angenommen wird, gilt  $\rho_B^{mn} = \rho_B(r)$  mit  $r = |\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_n|$ .

„Lange“ Meßreihen an jedem Beobachtungspunkt des Meßnetzes können benutzt werden, um die Größen  $E_O^2$ ,  $E_B^2$  und  $\rho_B(r)$  zu bestimmen. Dazu wird zunächst die Korrelation der Beobachtungsinkremente — nach der Korrektur systematischer Abweichungen — an den Stationen  $k$  und  $l$  berechnet

$$R_{kl} = \frac{\overline{(f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k))(f_O(\mathbf{r}_l) - f_B(\mathbf{r}_l))}}{\sqrt{\overline{(f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k))^2} \overline{(f_O(\mathbf{r}_l) - f_B(\mathbf{r}_l))^2}}}$$

$\overline{(\dots)}$  bedeutet das Mittel über eine lange Meßreihe. In einem Streudiagramm wird  $R_{kl}$  als Funktion des räumlichen Abstandes  $r$  dargestellt. Unter homogenen Bedingungen sollte die Varianz  $\overline{(f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k))^2}$  unabhängig von der Station  $k$  sein. Des weiteren gilt für unkorrelierte Beobachtungs- und Hintergrundfelder

$$\begin{aligned} \frac{1}{K} \sum_{k=1}^K \overline{(f_O(\mathbf{r}_k) - f_B(\mathbf{r}_k))^2} &= \\ \frac{1}{K} \sum_{k=1}^K \overline{(f_O(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k))^2} + \frac{1}{K} \sum_{k=1}^K \overline{(f_B(\mathbf{r}_k) - f_T(\mathbf{r}_k))^2} &= E_O^2 + E_B^2. \end{aligned} \quad (5.12)$$

An die Werte  $R_{kl}$  kann eine Kurve  $R$  angepaßt werden. Obwohl nach Definition gilt  $R_{kk} = 1$ , ist i. d. R.  $R(0) \neq 1$ , da auch die beobachteten Werte dicht beieinanderliegender Stationen nicht perfekt korreliert sein werden. Es wird also ein Wert  $R_z = \lim_{r \rightarrow 0} R(r)$  aus den Punkten des Streudiagramms extrapoliert. Nun sind nach Voraussetzung die Beobachtungsfehler räumlich nicht korreliert, tragen also nur für  $r = 0$  zu  $R$  bei, anders als die räumlich korrelierten Fehler im Hintergrundfeld. Damit ist  $R_z$  ein Maß für den horizontal korrelierten Teil des gesamten Fehlers

$$R_z = \frac{E_B^2}{E_B^2 + E_O^2}. \quad (5.13)$$

$E_O^2$ , der räumlich unkorrelierte Anteil am Fehler, setzt sich aus den Beobachtungs- und Repräsentativitätsfehlern sowie aus subskaligen Fehlern im Hintergrundfeld zusammen, also der

nicht mehr auflösbaren Varianz. Anhand der Gleichungen 5.12 und 5.13 sind  $E_B^2$  und  $E_O^2$  bestimmbar. Für die Korrelation des Fehlers im Hintergrundfeld gilt dann

$$\rho_B(r) = \frac{R(r)}{R_z} \quad \text{mit} \quad \rho_B(0) = \lim_{r \rightarrow 0} \frac{R(r)}{R_z} = 1. \quad (5.14)$$

$E_B^2$  ist meist kleiner, wenn für das Hintergrundfeld eine vorausgegangene Vorhersage benutzt wird, als für einen klimatologischen Hintergrund (z. B. Schlatter, 1975), da Simulationen trotz ihrer Fehler näher an den wahren Werten liegen als Klimatologien.  $E_B^2$  und  $\rho_B$  werden üblicherweise als zeitlich konstant — zumindest während einer Jahreszeit — angenommen, eventuell können sie andere Werte abhängig vom Gebiet annehmen, da sie je nach Datenlage unterschiedlich genau bekannt sind. Führt man den normierten Beobachtungsfehler  $\varepsilon_O^2 = E_O^2/E_B^2$  ein, so vereinfacht sich die Berechnung der Analysegewichte aus Gleichung 5.9 unter Verwendung der Beziehungen 5.10 und 5.11 folgendermaßen

$$W_i = \left[ \underline{\rho}_B + \varepsilon_O^2 \underline{I} \right]^{-1} \underline{\rho}_B^i. \quad (5.15)$$

Um die Korrelationsfunktion effektiv berechnen zu können, werden analytische Funktionen angepaßt, die sogenannten Korrelationsmodelle werden in der Literatur diskutiert (siehe z. B. Julian und Thiebaux, 1975). Die Annahme einer diagonalen Matrix  $\underline{Q}$  verbessert die Eigenschaften der Matrix  $\underline{B} + \underline{Q}$ , die dadurch stärker diagonal bestimmt ist.

### 5.3 Die Methode Sukzessiver Korrekturen

Die Einführung der Nutzung eines klimatologischen oder prognostizierten Hintergrundfeldes in die räumliche objektive Analyse geht auf die Arbeit von Bergthorsson und Döös (1955) zurück. Gleichzeitig bestimmten sie die Analysegewichte empirisch aus der Statistik von Analysefehlern und kamen damit der späteren Entwicklung der optimalen Interpolation in gewisser Weise zuvor. Das Verfahren von Bergthorsson und Döös wurde in einer Weiterentwicklung iterativ angewandt und ist unter dem Namen „Methode sukzessiver Korrekturen (SCM)“ bekannt. Im Folgenden werden das Konzept und einige Eigenschaften und Möglichkeiten dieser Art von Algorithmen kurz dargestellt (siehe dazu auch Daley (1991) und die dort angegebene Literatur).

Das Schema ist ein lokales Verfahren, also wird zur Bestimmung des analysierten Wertes am Gitterpunkt  $\mathbf{r}_i$  nur ein Teil  $K_i$  der gesamten Beobachtungen benutzt. Der Index  $j$  ist der Zähler für die Iterationen. Damit schreibt sich die Analysegrundgleichung für die Iteration  $j + 1$

$$f_A^{j+1}(\mathbf{r}_i) = f_A^j(\mathbf{r}_i) + \sum_{k=1}^{K_i} W_{j+1}(r_{ik}) \left[ f_O(\mathbf{r}_k) - f_A^j(\mathbf{r}_k) \right], \quad (5.16)$$

dabei ist  $f_A^j$  das Ergebnis der  $j$ ten Iteration. Für  $j = 0$  wird entweder ein Hintergrundfeld benutzt ( $f_A^0 = f_B$ ), oder  $f_A^0$  wird z. B. nach  $f_A^0(\mathbf{r}_i) = \sum_{k=1}^{K_i} W_0(r_{ik}) f_O(\mathbf{r}_k)$  aus den Beobachtungen alleine berechnet. Ein vorgegebenes Hintergrundfeld wird als kontinuierlich, also an jedem Ort bekannt, vorausgesetzt. Die Werte  $f_A^j(\mathbf{r}_k)$  an den Meßorten werden für  $j > 0$  durch eine Vorwärtsinterpolation aus den analysierten Werten an den Gitterpunkten  $f_A^j(\mathbf{r}_i)$  berechnet. Die Analysegewichte  $W_j(r_{ik})$  sind eine Funktion des räumlichen Abstandes zwischen Gitterpunkt und Beobachtungsort, sie werden berechnet nach

$$W_j(r_{ik}) = \frac{w_j(r_{ik})}{\sum_{l=1}^{K_i} w_j(r_{il}) + \varepsilon_O^2}, \quad (5.17)$$

wird auf ein Hintergrundfeld verzichtet, wählt man  $\varepsilon_O^2 = 0$ . Die Berechnung der Werte  $w_j(r_{ik})$  erfolgt mittels einer vordefinierten analytischen Funktion, z. B.

$$w_j(r_{ik}) = e^{-\frac{r_{ik}^2}{2L_j^2}}.$$

Es ist ein großer Vorteil der SCM, die Analysegewichte in Abhängigkeit von der Iteration berechnen zu können. Für große Werte  $L_j$  werden zunächst die großskaligen Phänomene im analysierten Feld wiedergegeben. Mit fortschreitender Iteration wird  $L_j$  kleiner gewählt, und damit konvergieren auch die kleineren Skalen. Am effektivsten ist die Methode, wenn sie interaktiv angewandt wird.

Das Konzept der iterationsabhängigen Gewichtsfunktionen ist auf Barnes (1964, 1978) zurückzuführen und wurde lange Zeit für die mesoskalige Analyse von Radar- und Satellitendaten angewandt. Eine weitverbreitete Version dieses Algorithmus nach Barnes (Koch et al., 1983) benutzt nur zwei Iterationen. Dabei sind die Werte  $L_j$  abhängig von der Auflösung des Meßnetzes, es können subskalige Anteile an den beobachteten Werten herausgefiltert werden. Das Verhältnis  $\gamma = L_{j+1}^2/L_j^2$  ( $0 < \gamma \leq 1$ ) wird groß gewählt, wenn das Spektrum des Signals mit steigender Wellenzahl rasch abfällt oder große Beobachtungsfehler erwartet werden, um das Rauschen aus den Daten zu filtern.  $\gamma$  wird klein gewählt, wenn die Beobachtungsfehler klein sind und das Spektrum des Signals langsam mit steigender Wellenzahl abfällt. So kann ein Maximum an Details wiedergegeben werden. Brathseth (1986) zeigt, daß durch eine Modifikation der Gleichungen 5.16 und 5.17 die Methode für  $j \rightarrow \infty$  gegen die optimale Lösung konvergiert, also z. B. gegen die exakte „optimale“ Lösung des Verfahrens nach den Gleichungen 5.6 und 5.9 aus dem vorigen Abschnitt.

#### 5.4 Ein Algorithmus zur Analyse von Spurenstoffbeobachtungen

Auf dem Gebiet der Atmosphärenchemie findet man in der Literatur je nach Datengrundlage oder Aufgabenstellung verschiedene Ansätze, eine räumliche Verteilung z. B. von Schadstoffkonzentrationen oder Grenzwertüberschreitungen zu bestimmen. Das Umweltbundesamt veröffentlicht einfache Ozonkarten, die mit einem simplen Interpolationsverfahren mit dem Zusatz „Aufgrund des verwendeten Interpolationsverfahren ist eine kleinräumige Interpretation nicht zulässig“ (z. B. Umweltbundesamt, 1996; siehe auch die Abbildung 1.1 in der Einleitung). Ausgehend von solchen Verteilungen werden mit Hilfe von Daten, die in höherer räumlicher Auflösung vorliegen, Karten erzeugt, bei denen dieser Zusatz dann fehlt. Zum Beispiel Stedman et al. (1997) und PORG (1997) nutzen Emissionsabschätzungen und Daten über die Landnutzung, um Hintergrundkonzentrationen von  $NO_x$  oder Grenzwertüberschreitungen der Ozonwerte mit hoher Auflösung darzustellen. Diesen Interpolationen liegt eine einfache Regression und bilineare Interpolation zugrunde. Verbreitet ist die Methode des Kriging und Weiterentwicklungen dieses Verfahrens (z. B. Fedorov, 1989). Ursprünglich wurde Kriging hauptsächlich im Bereich des Bergbaus eingesetzt, findet nun aber auch Anwendungen in anderen Gebieten, wie der räumlichen Analyse von saurem Regen (Venkatram, 1988), dem Vergleich von Messungen und Modellergebnissen (Schaug et al., 1993) oder der Visualisierung (Casado et al., 1994). Die Methode ähnelt der OI auf verschiedene Weise. Es werden Wichtungsfunktionen angewandt, die von den Werten selbst unabhängig sind, und es können Hintergrundfelder benutzt werden. Neben den Resultaten von Ausbreitungsmodellen werden dazu auch andere Felder herangezogen. Loibl et al. (1994) ermitteln ein Hintergrundfeld der Ozonkonzentration anhand einer Regression, in die neben Meßwerten die relative Geländehöhe und die Tageszeit eingehen.

Nur aufgrund der hohen räumlichen Auflösung, in der die Terraindaten vorliegen, enthalten die analysierten Karten viel Feinstruktur. Auch die OI wird auf einfache Weise auf atmosphärenchemische Fragestellungen angewandt. Zum Beispiel Egmond und Onderlinden (1981) vergleichen diese Methode mit anderen Verfahren. Allerdings nutzen sie bei ihren Untersuchungen keine Hintergrundfelder.

Bei vielen Methoden aus der Literatur fällt auf, daß die Resultate — analysierte Karten von chemischen oder physikalischen Größen — nur bedingt physikalisch oder chemisch sinnvoll sind. Einerseits stehen oft zu wenig Daten zur Verfügung, so daß große Teile der Karten durch einzelne Stationen geprägt sind, z. B. Land-See-Unterschiede können nicht erfaßt werden. Andererseits wird durch zusätzlich eingebrachte Daten, die, wie z. B. Geländehöhen oder Landnutzung, in sehr hoher räumlicher Auflösung vorliegen können, eine zu große räumliche Genauigkeit impliziert. Durch die beschränkte Auswahl der benutzten Zusatzgrößen finden wichtige, die (Konzentrations-)Felder beeinflussende Größen, wie die Meteorologie oder die Vorgeschichte der Luftmassen, keinen Eingang in die Analysen. Aus diesem Grund benutzt EMEP Kriging hauptsächlich für Felder, die über lange Zeiten gemittelt sind. Aber auch dabei wird das Problem nicht vollständig umgangen, da z. B. (auch im Jahresmittel) manche Schadstoffe über Wasser nicht deponiert werden, was aus den Karten der Deposition aber nicht hervorgeht. In diesem Abschnitt wird deshalb ein neues Analyseverfahren für die bodennahen Ozonmischungsverhältnisse vorgestellt, das auf dem OI-Ansatz basiert. Diese Art von Verfahren bieten den Vorteil, sowohl unregelmäßig verteilte Messungen und auf einem regulären Gitter vorliegende Hintergrundfelder aus Modellsimulationen als auch statistische Informationen über beide Datenquellen und das chemische Verhalten des Ozons zu berücksichtigen. Dazu gehören auch Informationen über die Repräsentativität von Daten. In dem neuen Verfahren wird die chemische Repräsentativität der Daten durch den in Abschnitt 4.5 vorgestellten Index berücksichtigt. Auf diese Weise sollen unter Benutzung der Simulationsergebnisse des EURAD-Modelles als Hintergrundfelder die Analysen soweit wie möglich physikalisch und chemisch konsistent sein.

In den folgenden Unterabschnitten werden zunächst das Verfahren beschrieben und zwei Anwendungsbeispiele vorgestellt, schließlich folgt eine Diskussion des Algorithmus und seiner Verifikation.

#### 5.4.1 Beschreibung des Verfahrens

Die Grundgleichung des Verfahrens ist wieder Gleichung 5.6. Die Anwendung soll aber nur lokal sein. Als ausreichend hat sich erwiesen, nicht mehr als die zwanzig nächstgelegenen Stationen für die Bestimmung des Wertes an einem Gitterpunkt zu berücksichtigen. Auch eine Iteration nach Gleichung 5.16 wird später in die Diskussion aufgenommen. Die Bestimmung der Analysegewichte erfolgt nach Gleichung 5.15 (Rutherford, 1972, Daley, 1991). Da es sich in der Regel um einheitliche Meßmethoden und ähnliche Instrumententypen handelt und die Meßorte stationär sind, wird davon ausgegangen, daß die Beobachtungen im Gegensatz zu deren Fehlern räumlich korreliert und die Kovarianzen der Beobachtungsfehler räumlich konstant sind. Für die Fehler des Hintergrundfeldes wird ebenfalls von räumlich konstanten Varianzen aber von korrelierten Fehlern ausgegangen. Unter diesen Voraussetzungen sollen die Korrelationsfunktionen und die normierten Beobachtungsfehler, wie in Abschnitt 5.2 beschrieben, bestimmt werden. Nach der Bestimmung der Fehler und der räumlichen Repräsentativität wird der Einfluß der chemischen Repräsentativität auf die Korrelationsfunktion diskutiert.

Der erste Schritt ist die Berechnung der Korrelationen zwischen den Zeitreihen der Beobachtungssinkremente der verschiedenen Stationen — das sind die Differenzen von Meßwerten und

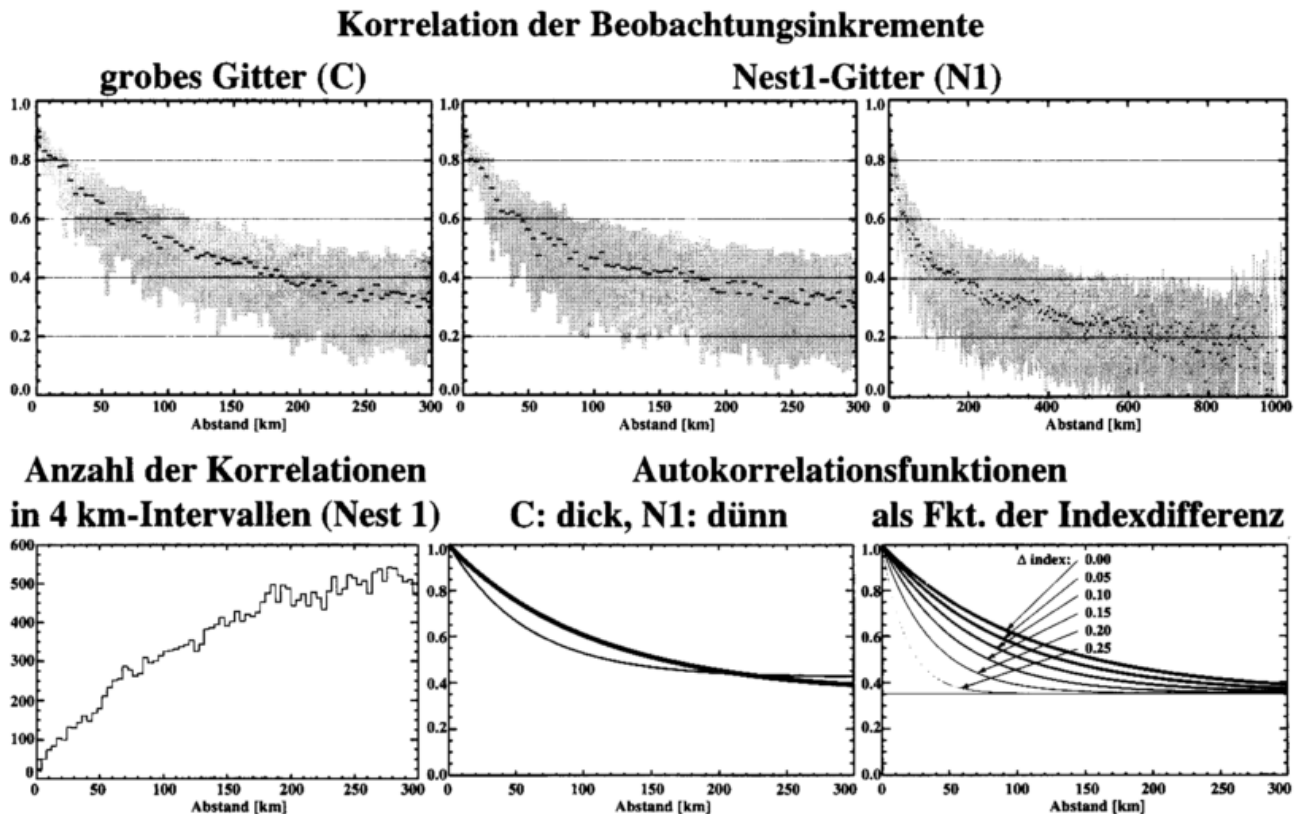


Abbildung 5.1: Ermittlung der Autokorrelationsfunktion zur Bestimmung der Analysegewichte; oben sind die Korrelationen der Beobachtungsinkremente zwischen den Stationen gegen deren Entfernung aufgetragen; links für das grobe Gitter, Mitte und rechts für das Nest 1-Gitter für verschiedene Entfernungsbereiche; es sind die Mediane der über 4 km-Intervalle zusammengefaßten Daten sowie (grau eingefärbt) die 25 und 75 % Perzentile gezeigt. Die Anzahl der Daten in den Entfernungintervallen ist unten links zu sehen. Die daraus gewonnenen Autokorrelationsfunktionen sind unten in der Mitte (dick für das grobe und dünn für das Nest 1-Gitter) und unten rechts (für das grobe Gitter in Abhängigkeit von der Differenz der Indizes) dargestellt.

Hintergrundfeld am Ort der Beobachtung. Abbildung 5.1 zeigt diese in der oberen Reihe gegen die Entfernung der Stationen aufgetragen. Es wurden jeweils 4 km-Entfernungsbereiche zusammengefaßt. Die Mediane (Linien) und der Bereich zwischen 25 und 75 % Perzentil (grau eingefärbt) für die Werte innerhalb dieser Intervalle sind dargestellt. Untersuchungen, bei denen die Breite der Intervalle variiert wurde, sprechen für den Wert 4 km. Dieser ist ein guter Kompromiß zwischen großer Streuung der Mediane und einer zu großen Glättung. Die Sensitivität der abgeleiteten Korrelationsfunktionen gegen diesen Parameter ist gering. Der interessierende Entfernungsbereich ist kleiner 300 km (Abbildung 5.1 oben links für das grobe, Mitte für das Nest 1-Gitter), denn bereits dort ist die mittlere Korrelation zwischen den Beobachtungsinkrementen (nicht die Korrelation zwischen den Ozonmischungsverhältnissen selber!) kleiner  $1/e$ . Zum Vergleich ist in der Abbildung oben rechts die gesamte Ausdehnung des Nest 1-Gitters zu sehen.

Im Gegensatz zu meteorologischen Größen, die, wie die geopotentielle Höhe, in der Literatur diskutiert werden (Schlatter, 1975, Julian und Thieboux, 1975, Thieboux, 1975), fallen die Werte mit der Entfernung sehr schnell ab und zeigen bei größeren Abständen keine größeren Anhäufungen negativer Korrelationen. Auch bei kleinen Abständen zeigen sich Unterschiede. Für das bodennahe Ozon flacht der Anstieg der Korrelationswerte gegen verschwindende Distanzen hin nicht ab. Aus diesem Grund bietet sich als erster Ansatz für eine Anpassung an

die Daten eine Funktion der Form  $fkt(r) = \cos(cr)(a \exp(-r/L) + b \exp(-r/D))$  an.  $r$  ist der räumliche Abstand in  $km$ ,  $a$  und  $b$  sind dimensionslos,  $c$  ist von der Dimension  $1/km$ , und die Parameter  $L$  und  $D$  haben die Einheit  $km$ . Der Faktor  $\cos(cr)$  stellt sicher, daß für große  $r$  ein Nulldurchgang der Korrelationskoeffizienten möglich ist. Hier werden aber nur vergleichsweise kleine Abstände betrachtet ( $\leq 300 km$ , im Vergleich zu  $\geq 1000 km$ , ab wo mittlere Korrelationen kleiner null auftreten), so daß  $\cos(cr) \approx 1$  angenommen werden kann. Der Term  $b \exp(-r/D)$  ist mitaufgenommen worden, um eine möglichst gute Anpassung für kleinere Distanzen zu erreichen. Für  $D \gg L$  kann dieser Term als großskaliger Einfluß interpretiert werden und für kleine Distanzen durch den Parameter  $b$  angenähert werden. Der Wert an der Stelle  $r = 0$  ist dann  $R_z = a + b$ , er ist ein Maß für den horizontal korrelierten Anteil des gesamten Fehlers. Da das „weiße Rauschen“ vom korrelierten Teil des Fehlers getrennt werden soll, ergibt sich die Korrelationsfunktion nach Abschnitt 5.2 durch die Normierung der an die Daten angepaßten Funktion mit  $R_z$ . Die für das Verfahren resultierende Form der Korrelationsfunktion (gültig für Entfernungsbereiche von wenigen hundert Kilometern) ist dann:

$$\rho_B(r) = \frac{1}{a+b} \left( a e^{-\frac{r}{L}} + b \right). \quad (5.18)$$

Für die Regression wurden nur die Werte innerhalb eines Entfernungsbereiches genutzt, der ungefähr dem Einflußradius  $r_{in}$  entspricht, also in dem die Korrelationen im Mittel größer  $1/e$  sind. Für jedes Gitter wird getrennt eine Autokorrelation angepaßt, da die modellierten Ozonkonzentrationen ebenfalls — direkt oder indirekt — von der Auflösung des Modelles abhängen (siehe Kapitel 3). Die ermittelten Parameter sind in Tabelle 5.1 aufgelistet, und in Abbildung 5.1 sind in der unteren mittleren Darstellung die resultierenden Funktionen gezeigt. Der Vergleich zwischen grobem und Nest 1-Gitter weist einen schnelleren Abfall der Korrelation für das Nest 1 auf. Dieser äußert sich am auffälligsten im Unterschied der Werte für den Parameter  $L$ , der eine Längenskala (aber aufgrund des Vorfaktors nicht eine Korrelationslänge) beschreibt. Die Einflußradien  $r_{in}$  sind deutlich kleiner als die Korrelationslängen der Ozonzeitreihen. Letztere sind zum größten Teil durch die Tagesgänge bestimmt. Die kleinen Einflußradien zeigen, daß auch Stationen gleichen Typs nicht über synoptische Skalen hinweg „Einfluß“ aufeinander haben, oder daß Informationen über diese Distanzen hinweg für das bodennahe Ozon ihre Gültigkeit verlieren. Die Bestimmung der Autokorrelation — die Form der Gleichung sowie die

Tabelle 5.1: Größen zur Bestimmung der Autokorrelationsfunktion für die Analysegewichte.

Gebiet	$r_{in}$ [km]	$L$ [km]	$a$	$b$	$E_O^2$ [ppbv <sup>2</sup> ]	$E_B^2$ [ppbv <sup>2</sup> ]	$R_z$	$\epsilon_O^2$
grobes Gitter	220	106.9	0.559	0.302	51.6	319.7	0.861	0.161
Nest 1-Gitter	210	58.0	0.501	0.364	51.3	328.6	0.865	0.156

sie bestimmenden Parameter — kann in dieser Arbeit nur vorläufig sein, da der zur Verfügung stehende Zeitraum zu kurz ist. Genausowenig können die Unterschiede für die beiden Gitter weitergehend diskutiert werden, da zusätzlich keine Vergleichsdaten zur Bewertung der Größe der Unterschiede z. B. in der Literatur existieren.

Mit Hilfe der so ermittelten Autokorrelationsfunktionen und der Varianz der Beobachtungsinkremente (die unter der vorausgesetzten Homogenität unabhängig von der gewählten Station sein sollte) können die einzelnen Fehleranteile bestimmt werden. Das ist einerseits die vom Gitter nicht auflösbare Varianz  $E_O^2$ . Diese setzt sich aus den Beobachtungs- und den räumlichen Repräsentativitätsfehlern der Messungen und dem subskaligen Fehler im Hintergrundfeld zusammen. Diese Fehler sind räumlich nicht korreliert. Für beide Gitter ergibt sich ein fast iden-

tischer Wert von ca. 51  $ppbv^2$ . Andererseits läßt sich die Varianz des Fehlers im Hintergrundfeld bezogen auf vom Gitter auflösbare Skalen  $E_B^2$  bestimmen. Diese stellt den räumlich korrelierten Anteil am Fehler dar.  $E_B^2$  ist für das Nest 1-Gitter etwas größer. Neben  $R_z$ , dem Wert der angepaßten Funktion für die Distanz null (nicht der Wert Autokorrelationsfunktion, der an dieser Stelle eins ist), wird für die Bestimmung der Analysegewichte der normierte Beobachtungsfehler  $\varepsilon_O^2$  benötigt. Er beschreibt das Verhältnis der Fehlervarianzen bzgl. nicht auflösbarer Skalen zur Varianz bezogen auf die auflösbaren Skalen ( $E_O^2/E_B^2$ ). Das Verhältnis ist ca. 1:6. Dies ist auch für die Evaluierung des Modelles ein wichtiges Ergebnis, da tatsächlich ein Anhaltspunkt für das Verhältnis von Meß- zu Modellfehlern gegeben wird.  $\varepsilon_O^2$  ist für das Nest 1-Gitter etwas kleiner als für das grobe Gitter, ein Teil des im groben Gitter subskaligen Fehlers ist nun auflösbar. Auch für die Abschätzung dieser Werte findet sich keine Referenz in der Literatur. Rutherford (1972), der diese Methode zur Analyse der geopotentiellen Höhe der 1000  $hPa$ - und 850  $hPa$ -Schichten angewandt hat, ermittelt für diese Größen ähnliche Verhältnisse für  $\varepsilon_O^2$ .

In den vorstehenden Kapiteln dieser Arbeit wurden systematische Unterschiede im Verhalten der Ozonkonzentrationen abhängig vom Regime oder dem Belastungsgrad der Luft beschrieben. Sowohl in den Messungen als auch in den Modellergebnissen zeigen sich größere Korrelationslängen zwischen Stationen bzw. Modellgitterpunkten mit ähnlichem Regime im Gegensatz zu solchen mit großen Unterschieden im Belastungsgrad der Luft. Andererseits wurde gezeigt, daß die Vorhersagegüte des Modelles generell vom Stationstyp abhängt bzw. ein Vergleich nur bei ähnlichen Regimen sinnvoll ist. Dies alles sind Zeichen einer Inhomogenität in den Daten, die aber nicht auf die Meßmethoden sondern einerseits auf physikalische und chemische Ursachen und andererseits auf Eigenschaften des Modelles zurückzuführen sind. Es ist eine Frage der Repräsentativität der Daten. Aber anders als bisher diskutiert, bezieht sich diese Repräsentativität nicht hauptsächlich auf die räumliche Skala, sondern auf das vorherrschende Regime. Nach den Vorarbeiten in den vorangegangenen Kapiteln steht mit dem in Abschnitt 4.5 beschriebenen Index<sup>4</sup> ein quantitatives Maß für das aktuelle Regime zur Verfügung. Nun wird nach einer Möglichkeit gesucht, diesen Parameter bei der Berechnung der Analysegewichte zu berücksichtigen. Einen ähnlichen Ansatz schlagen Benjamin und Seaman (1985) vor. Sie entwickeln die „bananenförmige“ Wichtung. Der üblicherweise kreisförmige Einflußbereich einer Messung wird in Windrichtung gedehnt, da stromauf bzw. stromab die Repräsentativität der Messung größer ist als senkrecht zum Wind.

Am geeignetsten erscheint eine Index-Abhängigkeit der Autokorrelationsfunktion, da damit der auflösbare Anteil am Fehler im Hintergrundfeld modifiziert wird. Aufgrund der knappen Datelage ist eine Untersuchung der Abhängigkeit der Autokorrelation vom Index nur eingeschränkt möglich. Sinnvoll ist eine Darstellung der Korrelationen der Beobachtungsinkremente gegen die Distanz (wie in Abbildung 5.1 oben) abhängig von den Stationstypen. Eine Typenklassifizierung der Meßstationen wurde in Abschnitt 2.3 eingeführt und auf die zur Verfügung stehenden Messungen angewandt. Zusätzlich konnte in Abschnitt 4.5 gezeigt werden, daß diese Stationstypen in guter Übereinstimmung mit Intervallen für mittlere (klimatologische) Indexwerte sind. Es können aufgrund des Datenmangels weder der Index der simulierten Daten noch der aktuelle Index der Beobachtungen bei der Untersuchung berücksichtigt werden. So wurden für alle Kombinationen von Stationstypen separat die Korrelationen der Beobachtungsinkremente gegen die Distanz der Stationen aufgetragen (hier nicht zusätzlich als Abbildung gezeigt). Das Ergebnis ist, daß sich der Verlauf der Werte qualitativ nicht ändert, aber die Korrelationen mit der Entfernung um so schneller abfallen, je größer die Differenz der mittleren Indexwerte bzw. Stationstypen der beteiligten Stationen sind. Die in Tabelle 5.1 gegebenen Werte für die Einflußradien werden bei der differenzierteren Untersuchung — insbesondere bei gleichen

<sup>4</sup>Das Maß zur Beschreibung des Regimes der Ozonwerte wird im Folgenden der Einfachheit halber nur „Index“ genannt.

Stationstypen — kaum überschritten, sind daher als obere Schranke geeignet. Eine Indexdifferenz von ca. 0.3 entspricht nach Abschnitt 4.5 in etwa dem Unterschied zwischen einer Wald- und einer Stadtstation bzw. der Spanne der Reinluftstationen (Wald- und Bergstationen, ca.  $\sim 0.7 - \sim 1.0$ ). Bei solchen Indexdifferenzen sind die Beobachtungsinckremente unkorreliert, auch bei kürzesten Distanzen werden kaum Korrelationen von 0.3 überschritten. Die Differenz der Indexwerte ist somit ein geeignetes Maß für die Vergleichbarkeit von Daten. Diese Ergebnisse werden wie folgt in das Analyseverfahren eingebracht. Es werden nur die Stationen zur Analyse der Konzentration eines bestimmten Gitterpunktes herangezogen, deren aktueller Index um weniger als 0.3 von dem für diesen Punkt prognostizierten Index abweicht. Zweitens werden die räumlichen Entfernungen zwischen Stationen und Gitterpunkten sowie zwischen verschiedenen Stationen nach

$$r^* = \begin{cases} \left(1 - \frac{|\Delta u|}{0.3}\right)^{-1} r & \text{für } |\Delta u| < 0.3, \\ 0 & \text{für } |\Delta u| \geq 0.3 \end{cases} \quad (5.19)$$

gewichtet. Dabei sind  $r$  der räumliche Abstand und  $\Delta u$  die Indexdifferenz,  $r^*$  ersetzt den Abstand  $r$  in der Autokorrelationsfunktion 5.18. In Abbildung 5.1 ist unten rechts die Indexabhängigkeit der Autokorrelationsfunktion für das grobe Gitter dargestellt. Somit ist nun eine Vergleichbarkeit der Modelldaten mit den Beobachtungen gewährleistet, so daß einem Modellgitterpunkt, der aufgrund der vorgegebenen Emissionen und des Landnutzungstypes ein ländliches Verhalten zeigt, mittels der Analyse nicht ein verkehrsnaher Charakter aufgezwungen wird.

Noch einmal in Kürze stellt sich das neue Analyseverfahren folgendermaßen dar. In die Analysegrundgleichung 5.6 gehen die Messungen und das Hintergrundfeld aus der Simulation ein. Die Analysegewichte werden nach Gleichung 5.15 berechnet. Dabei wird die Autokorrelationsfunktion 5.18 angewandt. Der dort benutzte räumliche Abstand zwischen Gitterpunkten und Beobachtungsorten wird nach Gleichung 5.19 mit der Differenz der jeweiligen aktuellen Indexwerte gewichtet. Ist die Indexdifferenz größer oder gleich 0.3, so wird die entsprechende Messung nicht berücksichtigt.

#### 5.4.2 Zwei Beispiele

Anhand von zwei Beispielen soll die Arbeitsweise des beschriebenen Analyseverfahrens demonstriert und im nächsten Unterabschnitt diskutiert werden. Als Termine werden der 26. Juli 1994 00 UTC und 14 UTC gewählt. Die verschiedenen Uhrzeiten bieten sich an, da nachts die größten Konzentrationsunterschiede zwischen den Regimen vorliegen und das Modell Schwierigkeiten hat, die Konzentrationsabnahme in der Stadt zu simulieren. 14 UTC ist der Zeitpunkt, an dem im Mittel die Tageshöchstwerte erreicht werden. Der 26. Juli ist einerseits aufgrund der allgemeinen Ozonsituation, andererseits aufgrund der Schwierigkeiten, die das Modell z. B. im Bereich des Ruhrgebietes an diesem Tag hat, interessant (siehe Abschnitte 3.2.2 und 3.3). Es sollen die Analysen für das Nest 1-Gitter betrachtet werden, da in diesem Gebiet die meisten Beobachtungen vorliegen. Die Diskussion ist auf das grobe Gitter übertragbar, da es auch im Nest 1 datenschwache Gebiete gibt und i. allg. die Unterschiede zwischen den Gittern, wie in Abschnitt 3.3 diskutiert, relativ gering sind. Zusätzlich waren außerhalb des Nest 1-Gebietes die Ozonkonzentrationen in der Episode recht niedrig, für die Diskussion des Verfahrens also nicht interessant.

Eingangsdaten sind die Indexwerte der Meßstationen und des Modelles (siehe Abbildung C.1) und die Ozonkonzentrationen zu den Analyseterminen (Abbildungen C.2 und C.3 jeweils obe-

re Reihe). Für die Berechnung der Indexwerte sind 24 zusammenhängende Stundenmittel, ein Tagesgang, erforderlich. Für die gezeigten Beispiele werden diese 24 Werte so gelegt, daß der Analysezeitpunkt in der Mitte des Zeitfensters liegt (also für den 00 UTC-Termin von 13 UTC des Vortages bis 12 UTC und für den 14 UTC-Termin von 02 UTC bis 01 UTC des Folgetages). In Abbildung C.1 ist zu sehen, daß schon innerhalb der 14 Stunden, die zwischen den beiden Analysezeitpunkten liegen, die Indexwerte großflächig andere Muster aufweisen können. Zum Beispiel zeigen die Indexwerte der Beobachtungen an der westlichen Küste der Niederlande zum 14 UTC-Termin ein mehr belastetes, in Schleswig-Holstein und Hamburg aber ein weniger belastetes Regime (ersteres ist leider nicht in den Modellwerten wiederzufinden). Bei den modellierten Werten fallen z. B. die um 14 UTC deutlich niedrigeren Werte im Bereich des Ruhrgebietes auf. Zum 14 UTC-Termin ist das Frontensystem entlang der Westküste von Dänemark bis über Berlin hinaus deutlich durch die Indexwerte gekennzeichnet. Genauso markiert der Index eine Luftmasse, die zum 00 UTC-Termin noch über der Nordsee am westlichen Rand des Gebietes zu sehen ist (aufgrund des nach oben beschränkten Wertebereiches ist in der Abbildung über der Nordsee im Indexfeld nicht mehr Struktur zu sehen).

Für beide Termine wurden mit dem vorgestellten Analyseverfahren verschiedene Versuche durchgeführt. Die Abbildungen C.2 und C.3 zeigen unten rechts die nach dem beschriebenen Verfahren berechneten Analysen. Jeweils links zu sehen sind die Analysen, bei denen lediglich auf die Berücksichtigung des Index verzichtet wurde. Für die Diskussion der Ergebnisse wird auf den folgenden Unterabschnitt verwiesen. Hier sollen nur einzelne qualitative Punkte angesprochen werden. Die indexunabhängige Berechnung der Analysegewichte bewirkt für den 00 UTC-Termin ganz offensichtlich eine Übergewichtung der städtischen Stationen. Die Analyse zeigt unrealistisch großflächig niedrige Ozonwerte. Die Ergebnisse für beide Termine zeigen z. B. über der Nordsee, daß die Indexwichtung physikalisch sinnvollere Strukturen erzeugt. Insbesondere sind Meßwerte, die auf dem Festland beobachtet werden, nicht aussagekräftig für Gitterpunkte, die im Meer in einigem Abstand von der Küste liegen. So erzeugt das Analyseverfahren ohne Indexwichtung für den 14 UTC-Termin ein großflächiges ausgeprägtes Ozonmaximum über der Nordsee. Beim 00 UTC-Termin zerstört dasselbe Verfahren die Strukturen der modellierten Abluftfahnen. Strukturbildend wirkt sich dabei ausschließlich die Größe des Einflußradius aus, da darüber hinaus die modellierten Strukturen unverändert bleiben (Beispiel Nordsee).

Für beide Termine ist offensichtlich, daß gegenüber den Hintergrundfeldern die Änderungen mit Indexwichtung geringer ausfallen als ohne. Bisweilen ist es vom Zweck der Analyse abhängig, ob das sinnvoll ist oder nicht. Als Beispiel sei das Gebiet der Niederlande in der 14 UTC-Analyse genannt. Die Analyse ohne Indexwichtung zeigt wesentlich höhere, den Meßwerten nähere Werte, während die Analyse mit Indexwichtung nahezu keine Änderung gegenüber dem Hintergrundfeld aufweist. Auch die Indexwerte aus Modell und Beobachtung sind in diesem Bereich sehr unterschiedlich. Ein systematischer Grund ist, daß im Modell weite Teile der Niederlande fälschlicherweise Wasserpunkte sind. Eine Analyse, die dort aber für Festland typische Ozonverhältnisse aufweist, wäre, wenn sie zur Bereitstellung von Anfangsdaten herangezogen würde, inkonsistent zu den das Modellverhalten bestimmenden Parametern.

### 5.4.3 Diskussion

Für die Diskussion des Verfahrens wird zuerst noch einmal zusammengefaßt, was die Anforderungen an die Analyse sind. Das Ziel ist eine physikalisch und chemisch konsistente Darstellung, die möglichst nahe an den Meßdaten liegt. Eine Verifizierung bzw. Validierung<sup>5</sup> des Verfahrens

<sup>5</sup>Auf eine Verifizierung oder Validierung der Begriffe Verifizierung und Validierung im gegebenen Zusammenhang wird verzichtet.

erfolgt also in erster Linie anhand von Messungen. Zwei Gründe sprechen nun dafür, daß die besten Analysen nicht die sein müssen, die am nächsten an den Beobachtungen liegen. Erstens weisen die Messungen — und auch das Modell — Fehler auf, die das Analyseverfahren berücksichtigt. Zweitens ist die Nähe zu den Messungen kein Beweis für die Konsistenz der Analyse in bezug auf die chemischen und physikalischen Gesetze (siehe z. B. Abbildung 1.1 rechts). Diese Konsistenz wird im Analyseverfahren durch die Verbindung der Beobachtungen mit den modellierten Daten erreicht. Im Rahmen der Modellauflösung, der im Modell behandelten Prozesse und der Güte der Eingangsdaten sind Simulationsergebnisse konsistent. Diese Eigenschaft wird bei dem vorgestellten Analyseverfahren dadurch erhalten, daß die Vergleichbarkeit der Daten überprüft wird. Dies geschieht durch den Vergleich der aktuellen Regime an den Meßstationen und den Gitterpunkten, es wird die chemische Repräsentativität der Daten füreinander festgestellt, bevor ein Meßwert den Wert an einem Gitterpunkt beeinflussen kann. Im Mittel sollte das Verfahren somit für die Stationsklassen am besten arbeiten, deren „Klima“ mit dem Modellklima übereinstimmen. Dazu ist noch einmal zu betonen, daß das Analyseverfahren kein spezielles Regime bevorzugt, sondern das „Klima“ der Analysen wird durch das Modell bestimmt, um so die Konsistenz der Resultate zu gewährleisten.

Bei der Verifizierung der Analysen ergibt sich das Problem, daß die Beobachtungen, die dazu herangezogen werden, selbst in die Analysen eingehen. Solange man das Verfahren testet, nutzt man also üblicherweise nur einen Teil der Daten für die Analyse und den Rest für deren Verifikation. Man kann auch die Analysen nach der Güte der Vorhersagen, als deren Anfangsdaten sie dienen, bewerten. Allerdings muß dabei ausgeschlossen werden können, daß das Verfahren Fehler des Modelles kompensiert (Lorenz, 1986). Dieses Vorgehen hat den Vorteil, daß ein neuer Satz von Daten für die Validierung zur Verfügung steht. Abschnitt 7.3 beschäftigt sich ausführlich mit der Nutzung von Analysen zur Datenassimilation und der damit erzielbaren Verbesserung der Ozonprognose.

Es zeigt sich, daß große Schwankungen in der Arbeitsweise der Verfahren auftreten (z. B. bedingt durch Tag/Nacht-Unterschiede, meteorologische Bedingungen oder die Datenlage und -qualität). Ermittelt man statistische Maßzahlen für die Güte der Analyse (Differenzstatistiken; wie sie im Folgenden vorgestellt werden), so zeigen diese große Schwankungen zwischen verschiedenen Terminen. Letztendlich kann ein Analyseverfahren nur im routinemäßigen Betrieb über lange Zeiträume hinweg validiert werden. Erst dann erreichen die Statistiken die nötige Signifikanz, so daß exakte Aussagen über die Eigenschaften des Analyseverfahrens möglich sind. Zum Beispiel Anthes et al. (1989) betonen, daß die üblicherweise benutzten Differenzstatistiken von Fall zu Fall sehr unterschiedlich ausfallen können, die klimatologische Güte also nur anhand der Untersuchung vieler Einzelfälle feststellbar ist. Die folgende Diskussion soll in zwei Schritten geschehen. Zuerst werden statistische Größen und anschließend die räumliche Verteilung der Differenzen von Beobachtungen bzw. Hintergrundfeldern und Analysen diskutiert. Eine Analyse und Auswertung mit einer wie oben beschriebenen Aufteilung der Daten führt aus den genannten Gründen hier nicht zu einer tieferen Einsicht als das vorgeschlagene Vorgehen und wäre nur zur Vorstellung der Methode nützlich.

Exemplarisch werden für die Differenzen Beobachtungen minus Hintergrundfeld bzw. Analyse für beide analysierten Termine (26. Juli 1994 00UTC und 14UTC) drei Maßzahlen bestimmt. Dies sind die Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers (*RMS*; root mean square error), die mittlere Abweichung (*Bias*) und der mittlere absolute Fehler (*AAE*; average absolute error). Bezeichnen *O* und *G* die Werte der Beobachtungen und des entsprechenden Gitterpunktfeldes und  $\overline{(\dots)}$  die Mittelung über die Stationen, so werden die Maßzahlen wie folgt definiert:

$$RMS = \sqrt{\overline{(G - O)^2}}, \quad (5.20)$$

$$Bias = \overline{(G - O)}, \quad (5.21)$$

$$AAE = \overline{|G - O|}. \quad (5.22)$$

Der *RMS* und der *AAE* geben einen Überblick über die Genauigkeit der Felder. Dabei ist der *RMS* sensitiv gegen große Fehler auch an wenigen Orten. Laut Anthes et al. (1989) ist eine Vorhersage „akzeptabel“, wenn sie einen *RMS* kleiner oder gleich dem Beobachtungsfehler aufweist. Beide Größen sagen nichts über eine mittlere Über- oder Unterschätzung aus, dafür wird der *Bias* betrachtet. Da die Werte bei der Berechnung des *Bias* ungewichtet sind, können einzelne große Fehler durch viele kleine Fehler mit anderem Vorzeichen kompensiert werden, das würde sich in kleinen Werten des *Bias* und hohen Beträgen des *RMS* äußern.

Für die Diskussion der Sensitivität dieser Maßzahlen wurden verschiedene Experimente mit dem Analyseverfahren durchgeführt. Neben den im vorigen Unterabschnitt vorgestellten Analysen ohne und mit Indexwichtung werden zwei Modifikationen der Analyse mit Indexwichtung vorgestellt. Die erste Modifikation besteht in einem zweiten Analysedurchgang, bei dem als Hintergrundfeld das analysierte Feld des ersten Durchganges benutzt und der Einflußradius halbiert wird. Wie in Abschnitt 5.3 diskutiert, kann so eine bessere Konvergenz auf kleineren Skalen erreicht werden. Dementsprechend zeigen die (hier nicht gezeigten) Analysen ausgeprägtere Extrema und Gradienten. Dabei läßt sich aber nicht ohne weiteres sagen, ob dies allgemein zu besseren Ergebnissen führt, da auch teilweise unphysikalische Strukturen so noch verstärkt werden. Falls ein solcher Weg für eine Verbesserung des Analyseverfahrens weiterverfolgt werden sollte, ist die Bestimmung einer eigenen Autokorrelationsfunktion für jede Iteration nach obigem Verfahren sinnvoll. Die zweite Modifikation ist die Wahl einer alternativen Berücksichtigung des Index. Anstelle von Gleichung 5.19 wird

$$r^* = \begin{cases} \left(1 - \frac{|\Delta u|}{0.6}\right)^{-1} r & \text{für } |\Delta u| < 0.6, \\ 0 & \text{für } |\Delta u| \geq 0.6 \end{cases}$$

und als Grenzwert für die Indextdifferenz 0.4 anstatt 0.3 benutzt. Beides wirkt in Richtung eines geringeren Einflusses des Index auf die Ergebnisse.

In Tabelle 5.2 sind die Differenzenstatistiken für die beiden Analysetermine dargestellt. Neben den oben erwähnten Analysen werden auch das Hintergrundfeld und eine Analyse ohne Berücksichtigung eines Hintergrundfeldes zum Vergleich in die Auswertung miteinbezogen. Die Maßzahlen wurden jeweils für alle Stationen sowie nach Stationstyp getrennt berechnet (die Anzahl der Beobachtungen, die in die Berechnung eingehen, sind ebenfalls aufgeführt). Generell sind große Unterschiede zwischen den beiden Terminen festzustellen. Außer für die Analyse ohne Hintergrundfeld sind die Werte für den 14 UTC-Termin allgemein besser als für den 00 UTC-Termin. Dies ist zu erwarten, da aufgrund der nächtlichen Konzentrationsunterschiede zwischen Stadt und Land der 00 UTC-Termin größere Schwierigkeiten mit sich bringt. Die Unterschiede zwischen den Analysen mit Indexwichtung sind relativ klein im Vergleich mit der Analyse ohne Indexwichtung und erst recht verglichen mit der Analyse ohne Hintergrundfeld.

Betrachtet man die Werte für alle Stationen, so schneidet die Analyse ohne Hintergrundfeld am besten ab, gefolgt von der Analyse ohne Indexwichtung. Erwartungsgemäß entspricht dies in umgekehrter Folge der Mühe, die man sich gibt, den Messungen nicht allzu nahe zu kommen. Nun müssen — angefangen mit dem 00 UTC-Termin — einige Details der Tabelle diskutiert werden, um diesen Aufwand zu rechtfertigen. Sowohl beim Hintergrundfeld als auch bei den Analysen mit Indexwichtung erreicht der *Bias* größte positive Werte für Verkehrsstationen, auf dem Gitter werden die niedrigen dort beobachteten Ozonwerte nicht erreicht. Dem generellen Modellverhalten entsprechend (siehe Abschnitt 3.3) wird der Betrag des *Bias* in Richtung

Tabelle 5.2: Differenzenstatistiken der Analysen auf dem Nest 1-Gitter für den 26. Juli 1994 00UTC und 14UTC; die Einheit für die Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers (*RMS*), die mittlere Abweichung (*Bias*) und den mittleren absoluten Fehler (*AAE*) ist *ppbv* (Stationstypen: v Verkehr, s städtisch, f flächenbezogen, w ländlich/Wald, b Berg).

Stationstyp	00UTC				14UTC			
	Anzahl	<i>RMS</i>	<i>Bias</i>	<i>AAE</i>	Anzahl	<i>RMS</i>	<i>Bias</i>	<i>AAE</i>
(Beobachtungen) – (Hintergrundfeld)								
alle	356	29.27	17.42	24.58	352	28.97	-11.25	20.54
v	160	35.30	31.43	31.88	160	32.41	-12.37	23.55
s	79	24.20	17.37	20.14	78	30.90	-8.92	18.89
f	64	23.30	7.82	17.95	61	23.87	-12.40	19.03
w	45	21.04	-13.05	16.77	44	19.22	-9.89	16.14
b	7	24.85	-18.51	19.85	8	13.30	-9.37	12.35
(Beobachtungen) – (Analyse)								
alle	356	30.14	19.47	24.64	352	25.92	-3.68	16.41
v	160	36.90	31.80	32.48	160	27.62	-2.31	18.25
s	79	26.19	19.83	21.89	78	31.48	-3.49	18.16
f	64	23.49	10.48	17.86	61	21.15	-8.50	14.72
w	45	17.37	-7.59	13.32	44	14.45	-2.34	10.97
b	7	17.85	-10.03	12.24	8	6.23	-1.62	5.17
(Beobachtungen) – (Analyse mit einer Iteration)								
alle	356	30.62	19.83	24.71	352	25.78	-2.34	16.16
v	160	37.40	31.66	32.61	160	27.20	-0.47	17.76
s	79	27.24	20.57	22.46	78	31.89	-2.39	18.72
f	64	23.59	10.93	17.98	61	20.95	-7.96	13.98
w	45	17.16	-6.50	12.56	44	14.13	-1.16	10.78
b	7	17.28	-8.01	10.47	8	5.71	-0.87	4.98
(Beobachtungen) – (Analyse mit anderer Indexwichtung)								
alle	356	28.77	17.88	23.14	352	25.08	-2.57	15.76
v	160	35.56	30.05	30.99	160	27.25	-1.22	17.93
s	79	24.72	17.89	20.13	78	30.38	-2.17	17.89
f	64	21.37	9.06	15.75	61	19.50	-7.03	13.26
w	45	17.04	-8.63	13.05	44	12.82	-2.21	9.72
b	7	15.25	-8.84	11.34	8	5.62	-0.68	4.81
(Beobachtungen) – (Analyse ohne Index)								
alle	356	18.86	3.11	14.72	352	21.06	0.52	12.80
v	160	19.54	12.68	15.78	160	24.26	1.99	14.80
s	79	13.25	3.53	10.38	78	23.95	0.62	13.36
f	64	13.67	-0.45	10.33	61	12.24	-1.82	9.88
w	45	28.12	-22.78	23.85	44	13.02	-1.07	9.78
b	7	24.13	-21.94	21.94	8	6.75	-1.87	6.15
(Beobachtungen) – (Analyse ohne Hintergrundfeld)								
alle	356	17.19	0.79	13.02	352	19.29	2.35	11.12
v	160	16.06	10.59	13.17	160	22.70	3.84	13.46
s	79	11.30	0.57	8.76	78	21.75	3.40	10.84
f	64	10.82	-2.47	7.88	61	9.74	-1.30	7.69
w	45	30.60	-25.08	25.71	44	10.95	0.86	8.78
b	7	23.86	-22.83	22.83	8	7.76	-0.47	6.39

ländlicherer Regime kleiner und wechselt zwischen flächenbezogenem und ländlichem Regime das Vorzeichen. Der kleinste *Bias* der Analyse ohne Hintergrundfeld findet sich allerdings für Stadtstationen. Für *AAE* und *RMS* läßt sich ähnliches beobachten. Hintergrundfeld sowie Analysen mit Indexwichtung haben die schlechtesten Werte für Verkehrs- und die besten für Wald- und Bergstationen. Aufgrund der unterschiedlichen Repräsentativität der Stationstypen ist dies für das Modell (mit seiner gegenwärtig noch groben Auflösung und den interpolierten Emissionsdaten) wünschenswert. Die beiden anderen Analysen erreichen die besten Werte für städtische und flächenbezogene Stationen. Da die Stationen, die von frischen Emissionen beeinflusst sind, bei weitem in der Überzahl sind, fallen die Maßzahlen für alle Stationen bei den Analysen mit Indexwichtung am schlechtesten aus.

Ein etwas anderes Bild vermittelt der 14 *UTC*-Termin. Die Unterschiede zwischen den Analysen sind nicht mehr so groß. Nur die flächenbezogenen Stationen weisen bei den Analysen mit Indexwichtung einen größeren (negativen) *Bias* auf. Dafür gibt es im Moment keine Begründung, besonders, da dieser Trend in den anderen Maßzahlen nicht zu beobachten ist. Die Reinluftstationen werden bei allen Versuchen mit vergleichbarer Güte analysiert. Dies hat zum einen den Grund, daß i. allg. um 14 *UTC* — wenn die Ozonwerte hoch sind — die Verteilung räumlich wesentlich homogener als um 00 *UTC* ist. Zum anderen wird ein großer Teil der Verkehrs- und Stadtstationen bei der Indexwichtung nicht berücksichtigt, da die Indextemperaturen zwischen Messungen und Modell meist zu groß sind.

Schließlich werden noch — mehr qualitativ — die räumlichen Verteilungen der Analyseinkremente (Differenzen des Hintergrundfeldes und der Analyse) sowie der Differenzen zwischen Beobachtungen und Analyse diskutiert. Die Analysen liegen irgendwo zwischen Beobachtung und Hintergrundfeld, und die Betrachtung der Differenzen gibt Auskunft darüber, wo genau sie liegen. Für den 00 *UTC*-Termin zeigt Abbildung C.4 und für den 14 *UTC*-Termin Abbildung C.5 oben die Differenzen zwischen Beobachtungen und Hintergrundfeld und unten die Analyseinkremente, jeweils rechts für die Analysen mit und links ohne Indexwichtung (die entsprechenden Meßwerte, Hintergrundfelder und Analysen sind in den Abbildungen C.1 – C.3 zu sehen).

Die Differenzen Beobachtungen minus Analyse (rot bedeutet jeweils höhere Werte der Analyse) zeigen zum 00 *UTC*-Termin für die Analysen keine ausgeprägten räumlichen Strukturen. Es ist zu beobachten, daß bei der Analyse ohne Indexwichtung die meisten Waldstationen von der Analyse unterschätzt werden. Bei der Analyse mit Indexwichtung gilt umgekehrt für den größten Teil der belasteten Stationen, daß die niedrigen Messungen von der Analyse nicht wiedergegeben werden. Die Analyseinkremente zeigen wesentlich mehr räumliche Struktur. Bei der Analyse ohne Indexwichtung werden fast flächendeckend die alten Bundesländer, die Niederlande und der südliche Teil der Nordsee um mehr als 20 *ppbv* niedriger wiedergegeben. Betrachtet man die Verteilung der Stationstypen, so fällt auf, daß genau über diesem Bereich (außer über der Nordsee) Verkehrs- und Stadtstationen zahlenmäßig dominieren. Die große Anzahl von Stationen dieser Typen bewirkt somit, daß sich über das gesamte Gebiet diese Regime ausbreiten. In Österreich und den neuen Bundesländern ist der Effekt gerade umgekehrt. Die Analyseinkremente der Analyse mit Indexwichtung haben insgesamt niedrigere Beträge. Ihre räumliche Verteilung ist wesentlich strukturierter. Zum Beispiel weist die Analyse im Ruhrgebiet niedrigere Werte, in den südlicheren Mittelgebirgen aber höhere Werte auf als das Hintergrundfeld und damit physikalisch und chemisch sinnvolle Änderungen.

Die Stationstypenabhängigkeit der Differenzen zwischen Beobachtungen und Analysen sind bei dem 14 *UTC*-Termin nicht festzustellen. Dort fallen nur, wie bereits erwähnt, für die Analyse mit Indexwichtung die zu niedrigen analysierten Werte an der Küste der Niederlande sowie

z. B. im Ruhrgebiet auf. Beides wurde bereits diskutiert und ist auch hier wieder ein Hinweis auf spezifische Schwächen des Modelles. Genauer gesagt sind diese im konkreten Fall auf die Eingangsdaten zurückzuführen. Die Landnutzung zeigt Wassergitterpunkte an, und die EMEP-Emissionsdaten deuten — bedingt durch des grobe Ausgangsgitter — ebenfalls Wasserflächen an. In ähnlicher Weise, wie die Analyse ohne Indexwichtung beim 00 UTC-Termin großflächig Ozonwerte erniedrigt, werden über einem etwas kleineren Gebiet beim 14 UTC-Termin die Werte erhöht. Im Südwesten der Nordsee werden großflächig die Werte erhöht, vor der dänischen Küste aber abgesenkt. Dort und an vielen Stellen mit geringer Stationsdichte erkennt man an den geometrischen Mustern der Analyseinkremente die Einflußbereiche einzelner Stationen. Wieder weisen die Analyseinkremente der Analyse mit Indexwichtung Strukturen auf, die physikalisch interpretierbar sind. Als Beispiel sei die Abluftfahne von Berlin erwähnt, die sich in nordwestlicher Richtung bis nach Schleswig-Holstein erstreckt. Auf der gesamten Länge sind die Werte der Fahne in der Analyse erhöht.

Bei der Diskussion wird deutlich, daß das neue Analyseverfahren seinen Zweck erfüllt. Die produzierten Ergebnisse, weisen eine höhere Konsistenz zum Modell und den physikalischen und chemischen Gesetzen auf als die Messungen und liegen näher an den Messungen als die Simulationsergebnisse. Die besten Resultate, von der Betrachtung der Differenzenstatistiken aus gesehen, werden für die Stationen erzielt, deren Klima dem mittleren Modellverhalten entsprechen. Die Parameter des vorgestellten Verfahrens sind in soweit optimiert, als daß sie auf den hier zur Verfügung stehenden Meß- und Modelldaten beruhen (Bestimmung der Fehlervarianzen, Indexwichtung). Eine Überprüfung des Verfahrens und der einflußnehmenden Parameter anhand größerer Datensätze ist wichtig, da die Ergebnisse teilweise sehr sensitiv gegen kleine Änderungen am Schema reagieren. Eine klimatologisch aussagekräftige Bewertung des Verfahrens oder leichter Modifikationen läßt sich nur anhand der Auswertung von Prognoseergebnissen und Analysen eines längeren Zeitraumes vornehmen, in diese Richtung geht die Diskussion der Datenassimilation in Abschnitt 7.3. Wenn die Datenlage es erlaubt, sind weitere Verbesserungen des Verfahrens in verschiedene Richtungen denkbar. Die Bestimmung des Indexes könnte überprüft werden, z. B. im Hinblick auf die Sensitivität der Analyse gegen die Lage des Termins in dem 24 Stunden-Zeitfenster oder auf die Nutzbarkeit eines klimatologischen Indexwertes. Ebenfalls müßte die Abhängigkeit der Beobachtungsinkremente von den aktuellen Indexwerten sowohl der Messungen als auch des Modelles untersucht werden. Ein weiterer wichtiger Punkt sind Methoden zur automatischen Qualitätsüberprüfung und -bewertung der einzelnen Messungen, bevor sie in die Analyse eingehen.

## Kapitel 6

# Ansätze zur Modellevaluierung und zur Qualitätskontrolle von Messungen

Chemie-Transportmodelle werden für verschiedene Zwecke entwickelt. Auf der einen Seite dienen sie der Grundlagenforschung, der Beschreibung und dem besseren Verständnis der physikalischen und chemischen Prozesse in der Atmosphäre. Auf der anderen Seite steht die Anwendung, z. B. die Prognose von Schadstoffverteilungen oder Szenarienrechnungen zur Abschätzung des Einflusses von Emissionsminderungsmaßnahmen auf die Luftqualität. Sämtlich setzen diese Anwendungen eine genaue Kenntnis der Modelleigenschaften voraus — des mittleren Modellverhaltens und der Modellfehler —, ohne die eine Nutzung der Ergebnisse schwierig wenn nicht gar wertlos ist. Unter der Evaluierung eines Modelles versteht man in dieser Beziehung das Erarbeiten von Aussagen über die Qualität des Modelles im Hinblick auf bestimmte Anwendungen. Die Datenassimilation und die Modellevaluierung beruhen in weiten Teilen auf denselben Grundlagen. Demzufolge wurden in den bisherigen Kapiteln in den Vorarbeiten für ein Assimilationschema viele Ergebnisse und Methoden herausgearbeitet, die auch der Evaluierung der Modelle von Nutzen sein können. Diese werden im Hinblick auf dieses Thema hier noch einmal zusammenfassend diskutiert. So gibt es verschiedene Arten, Modellergebnisse zu bewerten. Es bieten sich Vergleiche mit den analytischen Lösungen der entsprechenden Gleichungen genauso wie die Gegenüberstellung von Ergebnissen verschiedener Modelle und der Vergleich mit Messungen an. Alle Methoden haben Vor- und Nachteile und sind alleine für eine Modellevaluierung nicht ausreichend.

Der Vergleich mit analytischen Lösungen kann nicht entscheiden, ob das Modell korrekt prognostizieren wird, sondern nur, ob die im Modell betrachteten Prozesse korrekt behandelt werden. Die bestimmenden Gleichungen sind nicht allgemein analytisch lösbar, nur für wenige Teilaufgaben sind unter Einschränkungen oder idealisierten Bedingungen analytische Lösungen verfügbar. Zum Beispiel gibt es Standardtests für die Evaluierung der Advektionsalgorithmen. Eine Beschränkung liegt dabei unter anderem in der Voraussetzung einfacher divergenzfreier Strömungsfelder. Eine genaue Kenntnis des Advektionsverfahrens ist für die Interpretation der Modellergebnisse hilfreich — ob z. B. kleinskalige Strukturen numerisch oder physikalisch/chemisch bedingt sind. Physikalische Gesetze, wie die Massenerhaltung, können dagegen leicht überprüft werden, sagen aber wenig über die zu erwartenden Resultate des Modelles aus. Für die chemischen Mechanismen, in denen viele einzelne Stoffe nach den jeweiligen Geschwindigkeiten der Reaktion mit dem *OH*-Radikal in Gruppen zusammengefaßt behandelt werden, ist die Überprüfung der Erhaltung der Anzahl an Kohlenstoffatomen sinnvoll.

Auch bei Vergleichen von Modellen untereinander kann die korrekte Simulation der Natur

nicht gezeigt werden. Es können nur Verfahren verglichen und diskutiert werden. Vergleiche des EURAD-Modelles mit anderen regionalen Ausbreitungsmodellen finden sich z. B. in Hass et al. (1996, 1997). Der Vorteil dieses Vorgehens ist, daß außer den Modellergebnissen keine Daten benötigt werden und daß auch Ergebnisse einzelner Prozesse und Sensitivitätsstudien verglichen werden können. Der Nachteil ist, daß diese Methode sehr arbeitsaufwendig ist. Man kann einerseits die Standardkonfigurationen der Modelle vergleichen, andererseits versuchen, möglichst ähnliche Ausgangsbedingungen zu erzielen, z. B. bzgl. der Eingabedaten, der Modelauflösung und des Modellgebietes.

Schließlich ist es das Ziel eines Vergleiches mit Meßdaten festzustellen, wie gut ein Modell unter realistischen Bedingungen arbeitet. Probleme hierbei sind, daß die Modelle für einen vollständigen Vergleich die gemessenen dreidimensionalen Verteilungen von vielen Spurenstoffen zu vielen Zeitpunkten benötigen — als Mittel für die jeweiligen Gitterboxvolumen. Zusätzlich wird in den Chemiemechanismen eine große Anzahl von Stoffen in Klassen zusammengefaßt, und damit wird die Anzahl der zu messenden Spezies noch größer. Die meisten der behandelten Stoffe sind sehr schwer zu messen, besonders wird selten eine größere Anzahl verschiedener Spurengase gleichzeitig gemessen. Auch die horizontale oder vertikale Verteilung von Messungen ist unzureichend, so daß nur in den seltensten Fällen ein adäquater Datensatz zur Verfügung steht und in der Regel nur Teilfragen einer Evaluierung anhand von Meßdaten unterzogen werden können.

Die umfangreichsten Datensätze werden heutzutage während kurzer Meßkampagnen gewonnen, bei deren Planung die Nutzbarkeit der Daten zu Zwecken der Modellevaluierung aber nur untergeordnete Priorität besitzen (z. B. Ebel et al., 1995). Bei diesen Intensivmeßphasen werden Flugzeuge und Ballone sowie Bodenstationen mit einer breiten Palette an Meßmethoden eingesetzt. Aufgrund des beträchtlichen finanziellen Aufwandes und der meßtechnischen Schwierigkeiten sind diese Kampagnen auf räumlich eng begrenzte Gebiete — wie einzelne Ballungsräume — konzentriert. Die Meßunsicherheiten z. B. vieler Kohlenwasserstoffe sind oft zu groß, um dann einen Vergleich mit Modelldaten sinnvoll erscheinen zu lassen. Zusätzlich kann die meteorologische Situation der beobachteten Episode sehr komplex sein, so daß bei der Kleinräumigkeit des einbezogenen Gebietes schon kleine Fehler in den modellierten Windfeldern zur Folge haben können, daß die simulierten Konzentrationsverteilungen mit den beobachteten Strukturen nicht viel gemein haben. Das heißt, die Evaluierung der chemischen Simulation kann bereits an den Möglichkeiten scheitern, die Meteorologie genau genug zu simulieren und zu evaluieren. Für Modelle auf europäischer Skala, wie das EURAD-Modell, kommt hinzu, daß i. allg. Ergebnisse einer Teilevaluierung für einen Bereich des Gebietes auch für dieselbe Episode nicht auf andere Gegenden übertragbar sind. Aus diesem Grunde ist der Vergleich der Modelldaten mit Beobachtungen von routinemäßig messenden Netzwerken (mit all deren Nachteilen, siehe Kapitel 2) von großer Bedeutung. Für das EURAD-Modell wurde dieser Vergleich z. B. von Hass et al. (1993, 1995) größtenteils anhand der Daten des EMEP-Netzwerkes vorgenommen.

Es standen noch nie Daten einer so großen Anzahl von Stationen zur Verfügung, wie sie für diese Arbeit gesammelt wurden. Daraus ergeben sich neue Anforderungen an die Methoden zum Vergleich gemessener und modellierter Daten. Dies sind dieselben Probleme, die bei der Anwendung eines regionalen Chemie-Transportmodelles für eine operationelle Ozonprognose von Interesse sind. Es stehen ausschließlich routinemäßig erhobene Daten von unterschiedlichen Meßnetzen zur Verfügung. Einerseits sind dies bodennahe Messungen, daneben liegen aber auch einige Vertikalprofile von Ozon vor, die aufgrund ihrer geringen Zahl einer gesonderten Bearbeitung bedürfen. In den vergangenen Kapiteln wurde bereits deutlich, daß die Aussagen, die anhand der Vergleiche über das Modell gewonnen werden können, um so differenzierter

werden, je genauer die Meßdaten selbst evaluiert sind, je mehr Informationen über Stationen und Meßnetze vorliegen. Dabei ist die genaue Kenntnis von Meßunsicherheiten von mindestens ebenso großer Bedeutung wie die Größe der Meßunsicherheiten selber. In diesem Sinne haben die Evaluierung und die Datenassimilation viel Gemeinsames. Beide Thematiken suchen nach einer möglichst genauen Kenntnis des Modelles sowie der Messungen. Die Assimilation geht dann einen Schritt weiter und versucht mit dieser Kenntnis beide Datenquellen zu kombinieren, um damit der Realität näher zu kommen. In den früheren Kapiteln dieser Arbeit haben sich viele Ansätze für Vergleiche und Bewertungen ergeben. Diese sollen im Folgenden noch einmal zusammengefaßt und ergänzt werden. Die Wahl der Methoden bezieht sich hauptsächlich auf die Fragestellung, wie gut mit dem Modell das bodennahe Ozon prognostiziert werden kann. Daneben werden Aussagen über die Messungen angestrebt. Zusätzlich wird nach Ursachen für Abweichungen gesucht.

Die Diskussion beginnt mit der Gegenüberstellung von Beobachtungen und modellierten Daten. Dies ist die direkteste, aber auch subjektivste Art der Auswertung. Der darauf folgende Abschnitt beschäftigt sich mit statistischen Maßzahlen. Diese quantifizieren zwar auf eine objektive Weise die Ergebnisse, jedoch sind auch die Auswahl der Maßzahlen, die Art, sie darzustellen, sowie letztendlich deren Interpretation dazu geeignet, Aussagen zu beeinflussen oder Ergebnisse zu suggerieren. Schließlich liefern auch Methoden, mit denen die Daten aufgearbeitet oder postprozessiert werden, interessante Informationen. Im letzten Abschnitt des Kapitels werden die Ergebnisse noch einmal zusammengefaßt.

## 6.1 Direkter Vergleich Messung/Modell

Vor der Interpretation — aber eigentlich schon Teil davon — ist die Darstellung das zentrale Problem bei der direkten Gegenüberstellung gemessener und modellierter Daten. Bisweilen sind dies Probleme technischer Art (sind mein Rechner und ich in der Lage, ein Plotprogramm zu schreiben und auszuführen), oft aber sind sie eher wissenschaftlicher Natur: was soll gezeigt werden, wie kann man bestimmte Fragestellungen untersuchen, ohne durch die Darstellung bestimmte Resultate zu suggerieren. Konkret formuliert sich die Aufgabe so: es gibt eine Anzahl von Freiheitsgraden, die man berücksichtigen muß oder kann. Dies sind Meßwerte und Modellwerte, räumliche Dimensionen (üblicherweise mindestens zwei, bei Profilen reicht oft eine) und die Zeit, eventuell noch Zusatzinformationen wie z. B. der Stationstyp. Auf der anderen Seite hat man auf Papier zwei räumliche Dimensionen und Farbe/Graustufen oder z. B. Linienarten und Symbole zur Verfügung. Man kann die Werte gegen Zeit, Raum oder andere Werte darstellen. Im Folgenden werden verschiedene Ansätze dazu diskutiert.

Die „klassische“ Gegenüberstellung ist die von Zeitreihen modellierter und gemessener Mischungsverhältnisse. Dargestellt wird üblicherweise eine Meßreihe und eine oder mehrere simulierte Zeitreihen. Die simulierte Zeitreihe ist entweder die der Gitterbox, die den Meßpunkt enthält, oder es wird von den umliegenden Gitterpunkte (meist einfach bilinear) auf den Meßort interpoliert. Dies ist die genauere Darstellung. Allerdings ist es für die Interpolationsverfahren von Bedeutung, ob die modellierten Werte nur für den Mittelpunkt des Gitterboxvolumens oder als Mittelwert über das Volumen gültig sind. Wohl kein Modell ist in dieser Hinsicht für alle Prozesse konsistent. Wichtig ist auch die Frage der vertikalen Repräsentativität. Modellwerte gelten für Schichten (entweder Schichtmitten oder Mittelwerte über unterschiedlich dicke Schichten), bei den Messungen ist die Meßhöhe oft unbekannt (zusätzlich ist wenig bekannt darüber, wie dies gehandhabt werden sollte). Die Messungen liegen darüber hinaus z. B. als Stundenmittel vor, die Modelldaten als Werte zu den vollen Stunden (dieses Problem wurde

### Modellierte und gemessene Ozonmischungsverhältnisse [ppbv] in Berlin, Juli 1994; Gitterpunkte C: (42, 38), N1: (39, 39)

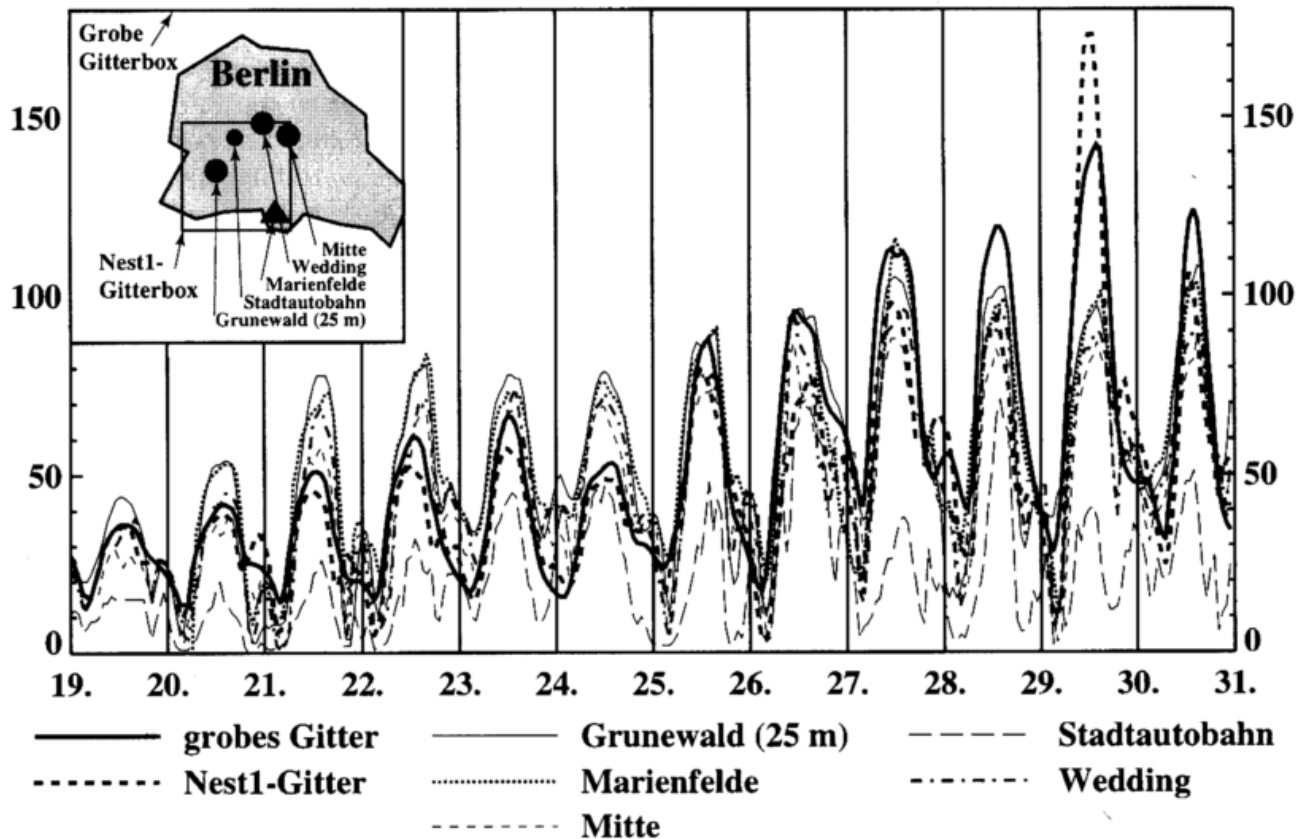


Abbildung 6.1: Zeitreihen von Ozonmischungsverhältnissen in ppbv für den modellierten Zeitraum; gezeigt sind Meßwerte von fünf Berliner Stationen, die in einer Nest 1-Gitterbox liegen, sowie die Werte für diese Gitterbox und die der zugehörigen Gitterbox des groben Gitters; das Quadrat links oben zeigt die Gitterbox des groben Gitters und die Lage der Nest 1-Gitterbox sowie der Stationen.

bereits in Abschnitt 2.2 angesprochen, spielt aber in diesem Abschnitt keine so große Rolle und wird nur der Vollständigkeit halber erwähnt). Abbildung 6.1 zeigt nun ein Beispiel für eine solche Darstellung. Zu sehen sind die modellierten Zeitreihen der bodennächsten Schicht für die Gitterboxen des groben und des Nest 1-Gitters, die das Zentrum von Berlin enthalten. Zusätzlich sind auf Kosten der Übersichtlichkeit fünf Meßreihen gezeigt von Stationen, die innerhalb der Nest 1-Gitterbox liegen. Die Station Stadtautobahn ist offensichtlich nicht für den Vergleich geeignet, sie ist zu stark lokal belastet und wird nicht weiter in die Diskussion einbezogen (dies ist z. B. ein erstes, schnell ersichtliches Resultat alleine der Art der Darstellung).

Es zeigt sich anhand der Darstellung in Abbildung 6.1, daß die Gegenüberstellung von modellierten Daten und einzelnen gemessenen Zeitreihen, kritisch ist. Für die meisten Tage findet sich eine Station, die vom Modell sehr gut wiedergegeben wird. Dies ist nicht immer dieselbe Station, aber es gibt auch keinen Grund dafür, daß es immer dieselbe Station sein muß. Einheitliche Trends zwischen den Stationen lassen sich anhand der kurzen Zeitreihen nicht feststellen. Die beobachteten Tagesmaxima liegen teilweise über 20 ppbv auseinander. Wenn man also nur die Tage berücksichtigt, an denen Modellwerte mehr als 20 ppbv von den Beobachtungen der vier Stationen abweichen, bleiben nur der 24. mit einer deutlichen Unterschätzung und der 29. mit einer sehr großen Überschätzung durch das Modell. Es ist also fraglich, ob die übrigen Tage

überhaupt bewertet werden dürfen außer durch die Aussage, daß das Modell „gute“ Resultate liefert. Des weiteren kann eine solche Darstellung dazu dienen, die Form der Tagesgänge und eventuelle Phasenfehler zu untersuchen. Die Beobachtungen zeigen oft – aber nicht immer und nicht einheitlich — ein zweites Maximum in der Nacht. Ein solches wird nur einmal vom groben Gitter angedeutet, während das Nest 1 mehrmals eines simuliert. Die simulierten nächtlichen Maxima stimmen nicht gut mit den beobachteten überein, aber sie weisen darauf hin, daß das grobe Gitter weniger gut solche Phänomene als das Nest 1 simulieren kann. Zusammenfassend kann man zu dieser Art der Darstellung sagen, daß es möglich ist, verschiedene Schlüsse — wenn auch nur recht grobe — zu ziehen. Zum Beispiel ist sie aber auch hilfreich, um Ausreißer unter den Meßstationen zu identifizieren oder die lokale Ozonsituation anhand der Streuung der Messungen zu beschreiben. Bei Betrachtung nur einer Meßreihe ist die Interpretation von Abweichungen zwischen Modell und Messung nur schwer zu bewerten. Die Länge des gezeigten Zeitraumes ist ebenfalls ein Parameter, mit dem Eindrücke beeinflussbar sind. Zu kurze Zeiträume begünstigen eine Überinterpretation ermöglichen aber eine genauere Betrachtung z. B. von Unterschieden in der Form von Tagesgängen (es kommt also nur auf den Standpunkt an). Zum Beispiel bedingt durch ausgeprägte Tagesgänge wirkt der Vergleich langer Zeitreihen oft beschönigend, hilft aber, Trends oder systematische Unterschiede zu erkennen.

Für dreidimensionale Eulersche Modelle ist die vertikale Verteilung von großer Bedeutung. Allerdings ist die Datenlage dafür, wie in Kapitel 2 diskutiert, sehr dünn. Zur Zeit werden nur an wenigen Stellen in Europa routinemäßig Vertikalprofile von Ozon mit Hilfe von Sondaufstiegen gemessen. LIDAR-Messungen oder troposphärische Satellitendaten sind noch nicht routinemäßig verfügbar. Bei Ozonsonden kann man von mittleren relativen Fehlern von 10 %, in Einzelfällen mehr, ausgehen (Claude, pers. Mitteilung, 1998). Mangels Vergleichsmöglichkeiten sind genaue Angaben schwer zu machen. Bisweilen gibt es detailliertere Informationen von Vergleichsmessungen mit anderen Sonden, LIDAR-Messungen, Daten von Bergstationen oder Verkehrsflugzeugen. Für die vorliegende Arbeit standen Sondendaten von verschiedenen europäischen Stationen zur Verfügung. Ein Vergleich mit Modelldaten bietet sich allerdings nur für den 27. Juli an, da an diesem Tag vier Sonden — die alle im Nest 1-Gebiet liegen — aufgestiegen sind (eine außergewöhnlich hohe Anzahl).

Bei der Darstellung von Sondendaten gelten dieselben Schwierigkeiten, wie beim Vergleich mit Stationsdaten. Zusätzlich ergibt sich das Problem, daß die gesamten Profile weder zu einem Zeitpunkt (ein Aufstieg kann weit über eine Stunde dauern) noch an einem geographischen Ort gemessen werden. Allerdings ist es allgemein üblich, sich die Arbeit einfach zu machen und trotzdem genau davon auszugehen. Abbildung 6.2 zeigt die Daten der vier Sondaufstiege und Modelldaten des groben und des Nest 1-Gitters. Als vertikale Koordinate wurde der lineare Druck gewählt, da der hier interessierende Höhenbereich von der mittleren Grenzschichthöhe bis zur oberen Troposphäre reicht. Der bodennahe Bereich ist also am schlechtesten dargestellt. In diesen Höhen sind aber auch die Meßdaten am unzuverlässigsten, da die Sonden dafür ausgelegt sind, bis in Höhen weit über 10 hPa zu messen. Wie erwähnt wird das Problem der horizontalen Variationen der Messungen ignoriert, für die Darstellung der Modelldaten werden die Werte der vier umliegenden Gitterpunkte entfernungsgewichtet interpoliert. Schwieriger ist die Darstellung des vertikalen Gitters, da die Änderungen in den Ozonwerten in vertikaler wesentlich größer sind als die in horizontaler Richtung. Meist werden nur die Werte an den Schichtmitten aufgetragen und durch Linien verbunden, was in der Regel recht brauchbare Kurven gibt. Dabei geht aber die Information über die vertikale, meist nicht äquidistante Gitteraufteilung verloren, die aber wichtig für die Beurteilung ist, wie gut Schichtgrenzen — wie Tropopause oder planetare Grenzschicht — wiedergegeben werden bzw. überhaupt wiedergegeben werden können. Deshalb sind in Abbildung 6.2 die Ozonmischungsverhältnisse als konstant über die

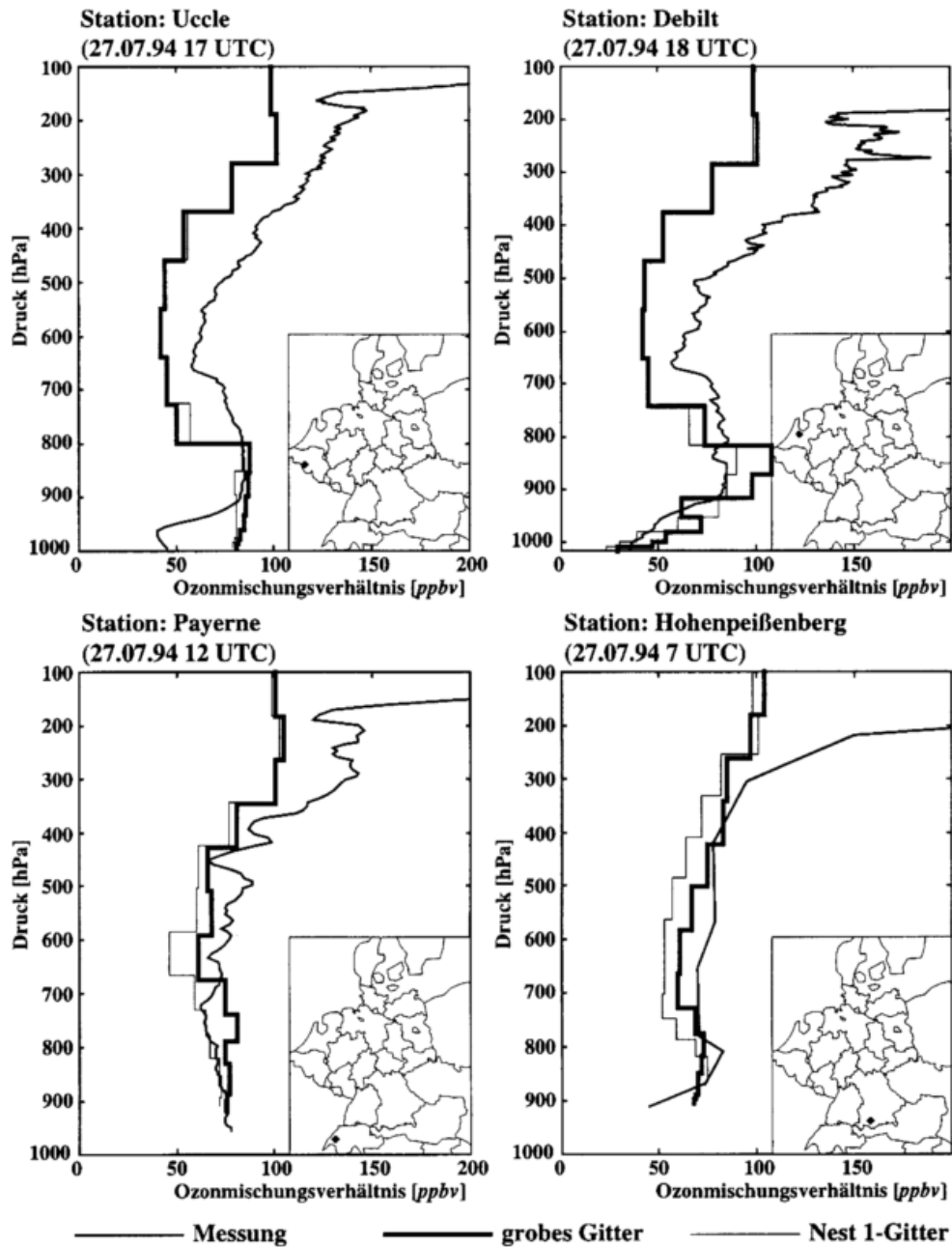


Abbildung 6.2: Vergleich von Ozonmischungsverhältnissen in *ppbv* von Sondenaufstiegen (mitteldick) und modellierten Profilen des groben (dick) und des Nest 1-Gitters (dünn) für den 27. Juli 1994; die Lage der Stationen ist jeweils durch eine Raute in den Landkarten markiert.

entsprechende Modellschicht dargestellt. Die Daten der Aufstiege, in der Regel im Abstand von wenigen Sekunden aufgezeichnet, zeigen wesentlich mehr Vertikalstruktur, als das Modell auflösen kann. Eine geglättete Darstellung der Messung kann sinnvoll sein. Ein Beispiel dafür ist der Aufstieg der Station Hohenpeißenberg. Die Daten dieser Station liegen nur an markanten Punkten vor. In Anbetracht der Meßunsicherheit ist dies eine sinnvolle Darstellung. Vor allem ist sinnvoll, daß dies bereits ein Teil der Datennachbearbeitung ist und nicht vom Datennutzer gemacht werden muß.

Der Vergleich mit den modellierten Profilen zeigt zuerst die großen Diskrepanzen in den obersten beiden Modellschichten. Das Modell vollzieht den raschen Anstieg oberhalb der Tropopause

nicht nach. In diesen Höhen weichen die Modellwerte kaum von den Randwerten ab — diese liegen bei der bisher üblichen Methode bei 100 *ppbv* (siehe Kapitel 7). Bei keinem der Profile zeigen sich große Abweichungen von diesem Wert in den oberen zwei Schichten. Inwieweit der Einfluß der Randwerte auch in der mittleren Troposphäre eine Rolle spielt, ist schwieriger zu sagen. Interessant ist der Unterschied der beobachteten Profile von Uccle und Debilt, die mit nur einer Stunde zeitlichem Versatz am Abend gemessen wurden. Zwischen ca. 950 und 400 *hPa* zeigen sie einen sehr ähnlichen Verlauf mit einer vertikal gut durchmischten Schicht zwischen ca. 900 und 700 *hPa*. Wahrscheinlich sind dies die Überreste der Mischungsschicht, eine Reservoirschicht. Der vorangegangene Zusammenbruch der Mischungsschicht ist in beiden Profilen an den bereits niedrigen bodennahen Werten zu sehen. Die zugehörigen modellierten Profile unterscheiden sich nur in den untersten acht Schichten unterhalb ca. 750 *hPa* voneinander. Für Uccle wird eine gut durchmischte Schicht prognostiziert, deren Wert sehr gut getroffen wird. Allerdings wird die Höhe der Schicht um ca. 100 *hPa* — was in dieser Höhe ein bis zwei Modellschichten ausmacht — unterschätzt. Auch sind die Werte in Bodennähe noch nicht zurückgegangen. Die Unterschiede zwischen beiden Gittern sind klein. Für Debilt hingegen wird keine so gut durchmischte Schicht prognostiziert. Die Werte des Nest 1-Gitters liegen in den entsprechenden Höhen zwar auch recht gut um die Messungen herum, ihrer Struktur nach stellen sie aber keine durchmischte Schicht dar. Das grobe Gitter weist zwischen 900 und 850 *hPa* zu hohe Werte auf, dort liegen die Werte des Nest 1 näher an den Messungen. Das Nest 1-Gitter kann — mit den genannten Einschränkungen — für Uccle den vertikalen Verlauf unterhalb 800 *hPa* gut wiedergeben. Den Anstieg mit der Höhe simuliert auch das grobe Gitter, dort hängt die Frage ob gut oder schlecht nur davon ab, ob der Wert der vierten oder der fünften Schicht in das modellierte Profil paßt oder eher einen Ausreißer darstellt. In der Troposphäre oberhalb ca. 750 *hPa* werden die Profile vom Modell deutlich unterschätzt.

Die Profile Payerne und Hohenpeißenberg im Süden des Nest 1-Modellgebietes bieten ein anderes Bild. Am Hohenpeißenberg ist um 7 *UTC* ebenfalls eine Reservoirschicht zu beobachten, die vom Modell recht gut wiedergegeben wird. Der niedrige bodennahe Wert wird allerdings nicht simuliert. Interessant ist der Unterschied zwischen den beiden modellierten Profilen. Das grobe Gitter liegt bzgl. der Werte näher am Sondenaufstieg, während das Nest 1-Gitter den Verlauf allerdings mit einem negativen Versatz besser wiedergibt. Zu beobachten ist ebenfalls, daß für das Nest 1-Gitter ein zu niedriger Bodendruck prognostiziert wurde. Das in Payerne gemessene Profil zeigt einen nahezu konstanten Verlauf bis ca. 400 *hPa*. Dies wird von beiden Gittern sehr gut wiedergegeben, wobei im unteren Bereich das Profil des Nest 1-Gitters genau auf den Meßwerten liegt. Allerdings ist in der neunten Schicht (ca. 600 – 650 *hPa*) ein Minimum zu beobachten, das in den Messungen nicht zu sehen ist. Für beide Gitter liegt der Bodendruck zu niedrig, die Ursache dafür liegt hauptsächlich in der Wiedergabe der Geländehöhe im Modell. Die Orographie des Modelles ist — abhängig von der Gitterweite — stark geglättet, um numerische Probleme zu umgehen. Diese Abweichungen von der tatsächlichen Geländehöhe haben großen Einfluß auf das Feld des Bodendruckes. Wie in den übrigen Profilen auch, können die großen Anstiege der Ozonwerte mit der Höhe in den obersten drei Schichten nicht wiedergegeben werden.

Der Vergleich von Vertikalprofilen liefert viele Ansatzpunkte für eine Diskussion. Für die vier gezeigten Profile kann man wohl sagen, daß das Modell „qualitativ recht gute“ Ergebnisse — außer im oberen Bereich — produziert und daß es nur wenige, kleine (nicht aussagekräftige) Unterschiede zwischen grobem und Nest 1-Gitter gibt. Definitiv ist, daß für Uccle und Payerne die Höhe der Mischungsschicht unterschätzt wird. Alle übrigen oben angesprochenen Punkte sind nur recht vage. Mehr — signifikante — Aussagen sind nur möglich, wenn eine wesentlich größere Anzahl von Profilen verglichen wird und mehr Information über die horizontale

Verteilung in größeren Höhen zur Verfügung steht. Erst dann kann daran gedacht werden, die Diskussion mit Statistiken zu untermauern und diese Daten eventuell für eine Assimilation zu nutzen.

Nach diesen zwei Beispielen eindimensionaler folgt nun eine zweidimensionale Darstellung der Werte als Karte. Bereits mehrfach sind in dieser Arbeit Karten von Werten gezeigt worden. Werte — auch verschiedener Art übereinander — können mit Kontourlinien, farbig ausgefüllten Kontouren oder als Symbole kodiert dargestellt werden. Im vorigen Kapitel wurden Analyseverfahren diskutiert. Man muß bedenken, daß viele der dort besprochenen Probleme auch für die Bestimmung der Kontourlinien durch die Plotsoftware existieren. Oft ist es deshalb angebracht anstelle von Kontouren eine Rasterdarstellung zu wählen (wie z. B. in Abbildung 4.13). Zumindest kann man auf diese Art über die Routinen der Plotprogramme lernen. Die Wahl von Farben oder der Anzahl von Farben/Linien ist meist ein Problem. Soll im Plot genau der Wert an einem Punkt abgelesen werden, dürfen nicht zu viele (dann nicht mehr unterscheidbare) Farben/Linien benutzt werden. Üblicherweise gibt es bei den Plotprogrammen keine für das menschliche Auge äquidistanten Farbskalen. Bei Graustufen ist eine logarithmische Abstufung für das Auge äquidistant, helle Töne können besser unterschieden werden als dunkle. Bestimmte Farbskalen sind typisch für bestimmte Größen (z. B. für die Geländehöhe), andere Farbtafeln heben extreme Werte oder bestimmte Wertebereiche hervor. Wichtig ist, die Farben für jedes Bild bewußt zu wählen.<sup>1</sup>

Abbildung 6.3 zeigt nun ein Beispiel für die Darstellung von Stationsmessungen und Gitterpunktwerten. Die Werte der Felder und auch die Beobachtungen sind mittels Graustufen kodiert. Zusätzlich ist der Stationstyp an der Form der Symbole abzulesen. Zu sehen sind Resultate des groben Gitters (links), des Nest 1-Gitters (Mitte) und der Analysen auf dem Nest 1-Gitter (rechts) für die beiden im vorigen Kapitel diskutierten Termine (26. Juli 1994 00 UTC in der ersten und dritten Reihe, 14 UTC in der zweiten und untersten Reihe, dieser Termin ist auch in Abbildung 3.4 für die gesamten Gebiete zu sehen). Es wurden zwei gleich große Teilgebiete ausgesucht: Nordrhein-Westfalen in der oberen Hälfte und darunter Brandenburg mit Berlin. Die jeweils zur Verfügung stehenden Messungen sind als ausgefüllte Symbole zu sehen. Für die geringe Gebietsgröße der Ausschnitte des groben Gitters von  $5 \times 5$  Gitterboxen ist eine Rasterdarstellung besser geeignet, aber die Vergleichbarkeit mit dem Nest 1-Gitter spricht in diesem Fall für die ausgefüllten Kontouren.

Die Darstellung erlaubt eine subjektive Analyse von Strukturen in der Übereinstimmung oder Abweichung der Felder von den Stationswerten. In der obersten Reihe fällt z. B. eine geringe Ost-West-Verschiebung der niedrigen nächtlichen Werte der Linie Duisburg-Düsseldorf-Köln-Bonn auf dem Nest 1-Gitter auf, und das grobe Gitter sieht dort besser aus. Genau dieser Bereich und das Ruhrgebiet sind auch der Teil des Ausschnittes, der zum 14 UTC-Termin schlecht wiedergegeben wird, ein Minimum wird prognostiziert anstelle der beobachteten maximalen Konzentrationen. Laut Memmesheimer et al. (1995a, 1996) und Hass et al. (1994) kann die Ursache in einem falschen Kohlenwasserstoff/Stickoxid-Verhältnis in den Emissionen liegen. Sensitiv sind die prognostizierten Werte in vergleichbarem Ausmaß aber auch z. B. gegen die berechneten Photolyseraten. Auch die bereits mehrfach diskutierte niederländische Küste weist systematische Fehler auf. Im übrigen Ausschnitt fällt das extreme Verhalten der Verkehrsstationen im Vergleich mit den übrigen Stationen auf und die bessere Übereinstimmung des Modelles mit den Reinluftstationen. In Nordrhein-Westfalen beruhen die Unterschiede zwischen den Git-

<sup>1</sup>Hier ist nicht der geeignete Ort, solche Fragen zu diskutieren, sie müssen aber angesprochen und berücksichtigt werden, da jede Präsentation wissenschaftlicher Ergebnisse neben dem wissenschaftlichen Gehalt stark von der angemessenen Darstellung abhängt. Ressentiments gegen bestimmte Arten von Darstellungen im wissenschaftlichen Bereich beruhen vielleicht gerade auf einer nicht adäquaten Auseinandersetzung mit diesem Thema.

## Ozonmischungsverhältnisse [ppbv], 26. Juli 1994

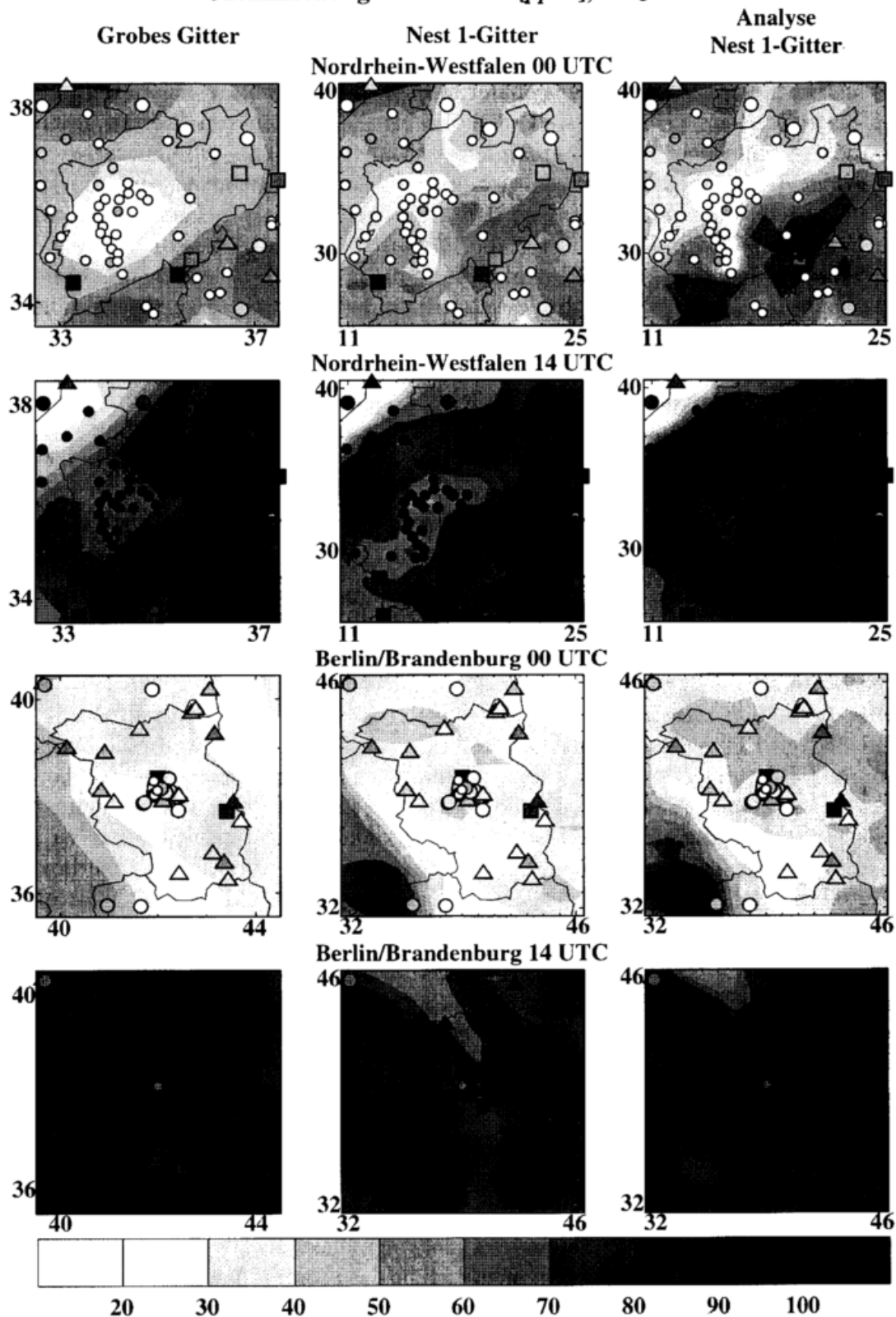


Abbildung 6.3: Modellierete, analysierte und gemessene Ozonmischungsverhältnisse in ppbv für zwei Termine und zwei Gebiete; kleine/große Kreise stehen für Verkehrs-/Stadtstationen, Dreiecke/Quadrate für flächenbezogene/ländliche Stationen.

tern hauptsächlich auf der verschiedenen Auflösung.

Der Brandenburger Ausschnitt zeigt größere Unterschiede zwischen den Gittern. Diese sind z. B. nicht auf die unterschiedliche Auflösung der Topographien durch die Modellgitter zurückführbar, da das Gelände ziemlich eben ist. Besonders zum 14 UTC-Termin sind Abweichungen der Lage von Extremwerten zu sehen, die aber anhand der Stationen nicht zu bewerten sind. Auch in dieser Abbildung fällt die Station Stadtautobahn in Berlin durch die niedrigen nachmittäglichen Werte auf. Auf diesem Ausschnitt des Gitters arbeitet das Modell für diese Termine besser als auf dem Gebiet von Nordrhein-Westfalen.

Der Vergleich mit den analysierten Feldern (in der Abbildung die rechte Spalte) gibt Auskunft über das Modell und die Messungen und auch über das Analyseverfahren. Am Beispiel des 00 UTC-Termins für Nordrhein-Westfalen läßt sich die Wirkung der Indexwichtung auf die Analyse gut feststellen. Nur lokal im Ruhrgebiet übernimmt die Analyse die niedrigen an den Verkehrsstationen beobachteten Werte. Großflächig höhere — ländlichere — Werte als in den Simulationen weisen Eifel und Sauerland auf. Die dortigen Verkehrsstationen weichen zu sehr vom Regime des Modelles ab und gehen deshalb nicht in die Analyse ein. Die Station Essen-Bredeney fällt durch hohe Werte im Ruhrgebiet auf. Dort beeinflußt die Station die Analyse nicht. Wie schon vorher bemerkt, scheinen die Gitterpunkte mit verkehrsnahem Regime des Köln-Bonner Raumes im Modell und auch in der Analyse etwas nach Osten verschoben. Der Nachmittagstermin in Brandenburg zeigt in der Analyse die Abluftfahne von Berlin, die in der Modellsimulation nicht so deutlich hervorgehoben war. Sie zeigt erst in einem gewissen Abstand im Lee der Stadt hohe Konzentrationen, wie es für die Ozonbildung typisch ist (Imhoff et al., 1995).

Es zeigt sich, daß bei dieser Abbildung die Klassifizierung der Stationen dargestellt durch die verschiedenen Symbole sehr hilfreich ist. Sie bietet eine wesentliche Unterstützung bei der Beurteilung der Meßwerte. Aber es muß beachtet werden, wieviel zusätzliche Information bereits in die Klassifizierung eingeflossen ist, die in dieser Hinsicht weit über die gezeigten Werte hinausgeht. Des weiteren soll die Abbildung zeigen, wie wichtig es ist, die Modellergebnisse über das gesamte Gebiet zu verifizieren. Einzelne kleine Ausschnitte können kein repräsentatives Bild für die Validierung bieten, was (auch für den Nachmittagstermin — sogar zum selben Zeitpunkt) besonders am Unterschied zwischen dem Ruhrgebiet und Berlin zu sehen ist. Andererseits können an ihnen Hinweise auf Schwächen im Modell abgelesen werden.

Die letzte Darstellungsart dieses Abschnittes sind Streudiagramme (Meßwerte gegen Modellwerte). Üblicherweise werden in einem Bild alle Meßwerte gegen simulierte Daten, die auf die Orte der Stationen interpoliert sind, aufgetragen, um Auskunft über eventuelle systematische Abweichungen zu erhalten. Auch hier zeigt sich, daß eine Differenzierung zwischen Stationen verschiedener Typen unbedingt nötig ist, um die Informationen beurteilen zu können. Für das grobe Gitter zeigt dazu Abbildung 6.4 für Stadt-, flächenbezogene und Waldstationen und für alle Daten gemeinsam Streudiagramme für vier Termine, den 26. und 27. Juli 1994 jeweils 00 und 14 UTC.

Für die Nachmittagstermine sind nur geringe mittleren Abweichungen zu sehen, und der weitaus größte Teil der Punkte liegt innerhalb der Geraden, die einen Unterschied um den Faktor zwei markieren. Die Ergebnisse sind somit „zufriedenstellend“. Deutlich anders sieht es in der Nacht aus. Bei den Streudiagrammen für alle Stationen ist eine erhebliche systematische Überschätzung durch das Modell zu beobachten. Bei Betrachtung der Bilder für die einzelnen Stationstypen läßt sich dieses differenzieren. Die Streuung ist dabei wesentlich geringer, und das Vorzeichen der mittleren Abweichungen variiert. Je städtischer das Regime, desto stärker ist die systematische Überschätzung der Meßwerte durch das Modell. Erst für Waldstationen

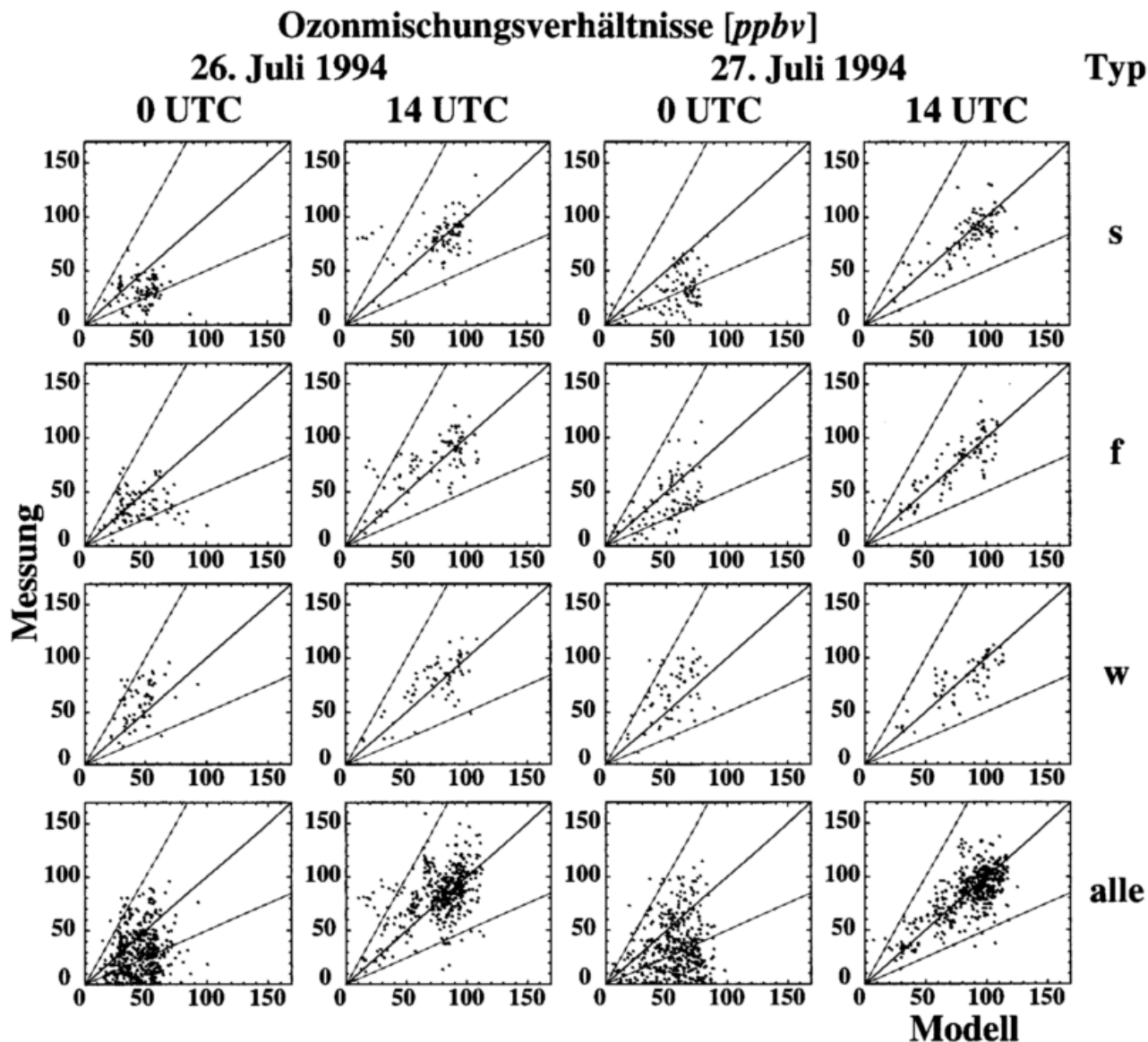


Abbildung 6.4: Streudiagramme gemessener gegen simulierte Ozonmischungsverhältnisse in ppbv für den 26. und 27. Juli 1994 00 und 14 UTC sortiert nach Stationstypen, oben für Stadtstationen (v), zweite Reihe für flächenbezogene (f), dritte für Waldstationen (w), unten für alle Typen zusammen.

zeigt sich eine leichte Unterschätzung. Im Einklang mit Ergebnissen anderer Abschnitte dieser Arbeit zeigt dies, daß das mittlere Modellverhalten zwischen flächenbezogenen und ländlich liegt.

Der Vergleich der 00 UTC-Termine für beide Tage zeigt eine größere Streuung der Wertebereiche sowohl in den Messungen als auch im Modell für den 27. Juli, die qualitativen Ergebnisse sind für beide Termine gleich. Aufgrund der Menge an Punkten fällt am deutlichsten bei den Bildern für alle Stationen auf, daß es so etwas wie eine Obergrenze für die modellierten Daten gibt. Diese Grenze hat zwar für alle Termine unterschiedliche Werte, ist aber — bis auf den 14 UTC-Termin am 27. Juli — sehr ausgeprägt. Bei dieser Art Abbildung ergeben sich nur wenige, deshalb hier nicht ausgeführte Unterschiede zwischen grobem und Nest 1-Gitter.

Bei allen Abbildungen dieses Abschnittes fällt auf, daß Zusatzinformationen für die Auswertung äußerst hilfreich sind. Die Wichtigkeit der Stationskategorisierung deutet darauf hin, daß

es ebenso sinnvoll sein wird, auch Gitterpunkte zu kategorisieren. Die simulierte Episode ist für eine signifikante Untersuchung leider zu kurz, aber mit der Berechnung des Index für das Ozonregime ist eine Methode gegeben, die dazu in der Lage ist (siehe Abschnitt 4.5). Interessant wird dies, wenn Emissionsdaten in besserer Auflösung vorliegen, so daß sich auch im Modell stärker differenzierte Regime ausprägen können. Vor der statistischen Auswertung ist eine genaue Sichtung der Beobachtungs- und simulierten Daten — z. B. mit den hier aufgeführten Methoden — sehr hilfreich. Letztendlich ist der größte Teil der Statistik dafür gut, diese ersten hier gewonnenen Eindrücke (im Nachhinein) zu quantifizieren und evtl. zu objektivieren.

## 6.2 Vergleich mittels statistischer Maße

Für den Vergleich mittels statistischer Maße ist es hilfreich zu wissen, was man zeigen will, da meist nur eine Auswahl objektiver Maßzahlen dargestellt wird. In Unterabschnitt 5.4.3 wurden bereits verschiedene Maßzahlen für die Beurteilung des Analyseverfahrens herangezogen (Gleichungen 5.20 – 5.22). Die Wurzel des mittleren quadratischen Fehlers (*RMS*) ist ein Standardmaß für die Genauigkeit von Vorhersagen, wobei wenige große Fehler stärker gewichtet werden als viele kleine. Der mittlere Fehler (*Bias*) ist ein wichtiges Maß für klimatologische Eigenschaften einer Vorhersage, er zeigt systematische Abweichungen des Modelles von den Meßwerten an. Der mittlere absolute Fehler (*AAE*) ist weniger sensitiv gegen wenige große Fehler als der *RMS*, er kann — wie der *RMS* — das Vorzeichen einer systematischen Abweichung nicht anzeigen. Ein weiteres Maß, der mittlere relative Fehler (*MRE*; mean relative error oder fractional difference) nach Middleton et al. (1988), soll zusätzlich eingeführt werden:

$$MRE = \frac{\overline{G - O}}{\overline{G + O}}, \quad (6.1)$$

mit *G* und *O* als den Werten des Gitterpunktfeldes sowie der Beobachtungen und  $\overline{(\dots)}$  der Mittelung über die Stationen. Da modellierte und gemessene Werte gleich gewichtet werden, ist diese Definition geeignet, wenn die Unsicherheiten beider Datenquellen vergleichbar sind (was hier nicht ohne weiteres gegeben ist). Die Werte des *MRE* liegen für positiv definite Größen zwischen  $-1$  und  $1$ . Ein Fehlerfaktor von zwei entspricht einem *MRE* von  $\pm 0.33$ . Negative Werte zeigen eine Unter-, positive eine Überschätzung durch das Modell an. Middleton et al. (1988) und Middleton und Chang (1990) diskutieren dieses Maß ausführlich.

Wenn extreme Episoden vorliegen, kann der *RMS* einer Vorhersage groß im Vergleich mit sonst üblichen Werten sein. Wenn aber die zeitliche und räumliche Entwicklung der Episode bis auf die Absolutwerte der Extrema gut getroffen werden, kann man trotzdem von einer „brauchbaren“ Vorhersage sprechen. Dafür ist die für Zeitreihen berechnete Korrelation ein gutes Maß (Anthes et al., 1989). Der räumliche Korrelationskoeffizient zeigt, ob die in den Messungen enthaltene Variabilität vom Modell wiedergegeben wird. Informationen über die klimatologischen Eigenschaften des Modelles geben auch Vergleiche zwischen Mittelwerten sowie Standardabweichungen, die jeweils für Modell und Messung getrennt berechnet werden. Zum Beispiel Hass et al. (1995) und Anthes et al. (1989) diskutieren weitere Maßzahlen, die für andere prognostische Größen interessant sind. Diese sind z. B. geeignet, um Felder zu verifizieren, die — wie der Bodendruck — Änderungen auf größeren Skalen oder — wie der Niederschlag oder die Deposition — sehr kleinskalige Strukturen aufweisen.

Mit den vorhandenen Meßdaten und der Information über die Stationstypen ist es in dieser Arbeit möglich, über die einfache Berechnung dieser Maßzahlen hinauszugehen. Im ersten Schritt

kann die zeitliche Entwicklung der Maßzahlen für einen Zeitpunkt über das gesamte Modellgebiet in Abhängigkeit vom Regime der Stationen untersucht werden, um so z. B. Driften in den Vorhersagen festzustellen. Auch im nächsten Kapitel über Anfangs- und Randdaten ist die Betrachtung der zeitlichen Verläufe der räumlich berechneten Maßzahlen sehr hilfreich. Im zweiten Schritt wird am Episodenmittel des *RMS* und der zeitlichen Korrelation die horizontale Verteilung der Fehlergrößen für die einzelnen Stationen diskutiert. Diese Betrachtung ermöglicht als eine Anwendung einen guten Vergleich zwischen der Vorhersagegüte verschiedener Modelle. Sie gibt auch Auskünfte über die Messungen sowie lokale Unterschiede im Verhalten der Modelle.

Die Abbildungen 6.5 und 6.6 zeigen die Zeitreihen der verschiedenen Maßzahlen für das grobe und das Nest 1-Gitter für den Zeitraum 27. – 31. Juli 1994 (jeweils 00 UTC). Die Darstellung der Anzahl verfügbarer Messungen für verschiedene Stationstypen zeigt eine Abnahme der Signifikanz der Statistiken hin zu ländlicheren Regimen. Ergebnisse für Bergstationen werden aber teilweise dadurch bestätigt, daß sie oft den Trend von belasteten zu Reinluftregimen fortsetzen.

Für die Mittelwerte und Standardabweichungen wurden genauso wie bei den übrigen Maßen nur die auf die Meßorte interpolierten Gitterpunktwerte berücksichtigt. Der Vergleich der Mittelwerte zeigt zwei markante Unterschiede. Erstens weisen die Messungen wesentlich stärkere nächtliche Unterschiede zwischen den Stationstypen auf. In den Beobachtungen der Bergstationen ist kein Tagesgang mehr festzustellen. Das Modell zeigt hingegen nur geringe Unterschiede in den Mittelwerten für die verschiedenen Regime. Von Tag zu Tag sind diese Unterschiede verschieden groß. Während sie am 28. und 29. fast verschwinden, sind sie am 30. tagsüber sogar größer als bei den Messungen. Bei den Beobachtungen sind die Differenzen tagsüber kleiner als nachts, beim Modell ist es eher umgekehrt. Der zweite Unterschied ist bereits in Abschnitt 4.4 bei der Berechnung der Eigenvektoren aufgefallen (siehe Abbildung 4.8). Die mittleren Tagesgänge der Messungen sind in ihrem Maximum schmaler als bei den simulierten Werten, nur am 29. stimmen die Formen gut überein.

Bei der Betrachtung der Korrelationen ist zu beachten, daß die Berechnung dieses Maßes eine Normalverteilung sowie eine große Anzahl an Werten voraussetzt. Ersteres könnte für die nächtlichen Ozonwerte von Verkehrsstationen verletzt sein, und die Zahl der Bergstationen kann keine signifikanten Ergebnisse versprechen. Die Korrelationen sind am höchsten für die flächenbezogenen Stationen, gefolgt von den Waldstationen, die niedrigsten Korrelationen werden für die Verkehrsstationen berechnet. Erwartungsgemäß sind die Werte tagsüber höher als nachts. Auffallend ist ein Trend, der bei den übrigen Differenzmaßen gerade umgekehrt zu beobachten ist: während die Korrelationskoeffizienten am 27. und 28. zwischen den Regimen stark streuen, ist die Streuung — besonders tagsüber — für den 29. und 30. weniger ausgeprägt.

*RMS*, *Bias*, *AAE* und *MRE* zeigen vergleichbare Verläufe mit geringen Unterschieden zwischen den Größen. Verkehrs- und Stadtstationen haben die schlechtesten Statistiken, flächenbezogene und ländliche die besten. Die Maßzahlen sind nachts in der Regel schlechter als tagsüber. Während die Tageswerte für die vier Tage vergleichbar sind, wird z. B. die Nacht vom 28. auf den 29. besser als die übrigen Nächte modelliert. Die Reinluftregime weisen für *Bias* und *MRE*, bei denen negative und positive Werte möglich sind, einen zu den belasteten Stationen an der *x*-Achse gespiegelten Verlauf auf. Für diese beiden Größen gilt auch, daß tagsüber am 27. und 28. die Werte nahezu null sind, beim 28. über einen längeren Zeitraum als beim 27. Die beiden letzten Tage zeigen eine größere Streuung zwischen den Regimen, und die Vorhersage an den belasteten Stationen ist schlechter, die Messungen werden überschätzt.

Eine Beurteilung der Werte der Maße ist hier noch nicht möglich, dafür fehlt die Erfahrung in dieser Art der Anwendung der Maßzahlen. Einen Anhaltspunkt liefert der Vergleich mit einer

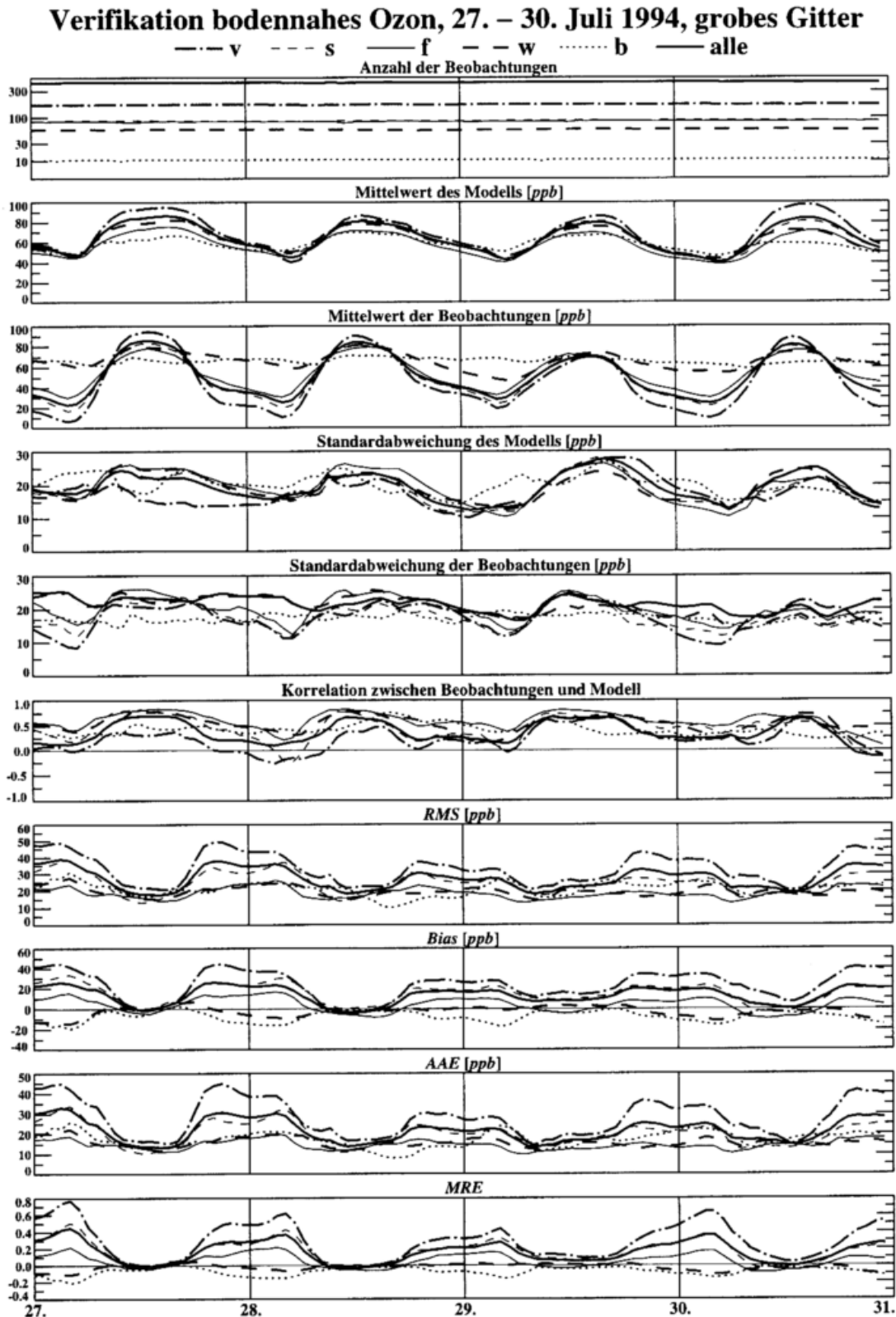


Abbildung 6.5: Verifikation der Ozonprognose des groben Gitters für den 27. – 30. Juli 1994 anhand verschiedener Maßzahlen; außer für die dimensionslosen Größen Anzahl der Messungen, Korrelation und mittlerer relativer Fehler ist die Einheit *ppbv*; Stationstypenbezeichnung wie in Abbildung 6.4, *v* und *b* entsprechen Verkehrs- und Bergstationen.

Persistenzvorhersage (morgen wird es genauso wie heute sein) weiter unten in Abbildung 6.7. Die Episode beginnt am 19. mit dem Vorlauf. In einer entsprechenden (hier nicht gezeigten) Abbildung für den gesamten Zeitraum gibt es bei den allgemeinen Schwankungen der Maßzahlen keinen Hinweis auf eine Drift der Vorhersage. Natürlich ist die Abbildung ziemlich überladen, und die Werte der einzelnen Größen sind dadurch schlecht abzulesen; dafür ermöglicht die Darstellung einen guten Überblick zum Vergleich der verschiedenen Zeitreihen.

Der Vergleich mit den Ergebnissen für das Nest 1-Gitter (Abbildung 6.6) bringt einige Hinweise auf die — eher geringen — Unterschiede und zeigt, daß diese Methode sinnvoll für den Vergleich verschiedener Modelle einsetzbar ist. Deutliche Unterschiede zeigen z. B. die Standardabweichungen. Während diese beim groben Gitter einen Tagesgang aufweisen, ist dieses Verhalten beim Nest 1-Gitter wesentlich schwächer ausgeprägt. Auch scheinen sie für die größere Auflösung eher niedriger als bei den Messungen auszufallen. Während der *Bias* für das grobe Gitter am 27., 28. und 29. tagsüber nahezu null wird, ist für das Nest 1-Gitter eine systematische Unterschätzung festzustellen. An diesen Tagen, an denen hauptsächlich auf dem Gebiet des Nest 1-Gitters die Ozonwerte hoch sind, werden diese unterschätzt. Es läßt sich hier nicht feststellen, ob auch das grobe Gitter dieses Verhalten zeigt, da die Statistik für das gesamte Gebiet gilt. Der 30. wird dagegen vom Nest 1-Gitter insgesamt etwas besser modelliert. Für die Verkehrsstationen fällt auf, daß die Fehler des groben Gitters in der ersten Nachthälfte eher größer sind als in der zweiten, beim Nest 1-Gitter ist es deutlich umgekehrt. Auch für das Nest 1-Gitter geben die Zeitreihen der Maßzahlen keinen Hinweis auf eine Drift des Modelles.

Abbildung 6.7 zeigt die Differenzenstatistiken für das grobe Gitter und eine Persistenzvorhersage im direkten Vergleich. Als prognostizierter Wert wird dabei der Wert angenommen, der an der Station am Vortag zur selben Uhrzeit gemessen wurde. Der Vergleich ist sehr hilfreich, um ein Gefühl für die Größen der Maßzahlen zu bekommen. Die Verhältnisse am 27. waren ähnlich wie am 26. Am 28. und 29. überquert eine Luftmassengrenze das Nest 1-Gebiet (und damit die meisten Stationen), am 30. sind verbunden mit einer Winddrehung die Werte nur noch in einigen Gegenden erhöht (siehe Unterabschnitt 3.2.2). Diese großräumigen Wechsel schlagen sich direkt in einer deutlichen Verschlechterung der Persistenzvorhersage nieder, besonders tagüber schneidet die Modellvorhersage für den 29. und 30. besser ab. Unterschiede treten zwischen den Stationstypen auf, Bergstationen werden am besten vorhergesagt, da sie die geringsten Variabilitäten aufweisen. Dementsprechend sind die Verkehrsstationen am schlechtesten. Auch zwischen den verschiedenen Maßzahlen ergeben sich Unterschiede. Für flächenbezogene Stationen sind die Verläufe der Korrelationen für alle vier Tage zwischen beiden Vorhersagen vergleichbar. Der *MRE* ist für die Modellsimulation grundsätzlich höher, bei *AAE* und *RMS* ist dies unterschiedlich. Allgemein zeigt sich, daß die Persistenz durch das Modell im Mittel nicht leicht zu übertreffen ist. Der Vergleich hilft bei der Beurteilung des Modellverhaltens und zeigt, in welchen Situationen das Modell gut arbeitet.

In den Abbildungen C.6 und C.7 werden nun die räumlichen Verteilungen der Korrelationen und des *RMS* der Zeitreihen in unterschiedlichen Darstellungen diskutiert. Die zeitlichen Korrelationen sind aufgrund der Dominanz des Tagesganges sehr groß. Insbesondere sind sie um so größer, je städtischer das Regime also je ausgeprägter der Tagesgang ist (siehe Abschnitt 2.3). Deshalb werden für beide Größen — Korrelation und *RMS* — einmal die gesamte Zeitreihe und einmal nur die Stunden 10 – 18 UTC betrachtet. Für dieses Zeitfenster zeigen Streudiagramme ähnlich den 14 UTC-Terminen in Abbildung 6.4 nicht die systematischen Abweichungen, die für die nächtlichen Termine gültig sind. In Abbildung C.6 sind oben die Korrelationen für das Nest 1-Gitter zu sehen, links für den gesamten Zeitraum, rechts für das Zeitfenster. Für den ganzen Zeitraum zeigen die verschmutzten Regime wesentlich höhere Korrelationen auf als die

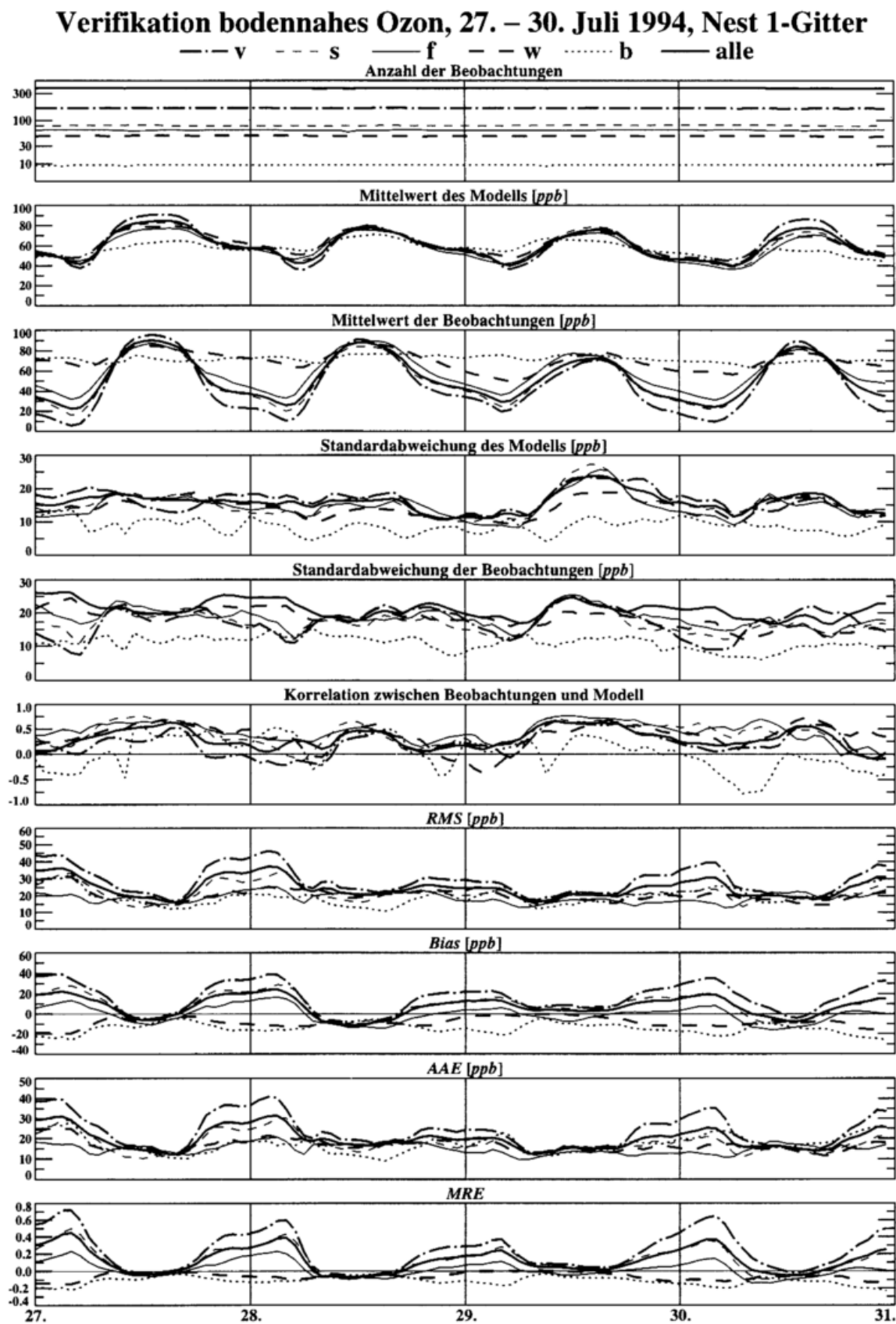


Abbildung 6.6: Wie Abbildung 6.5 nur für das Nest 1-Gitter.

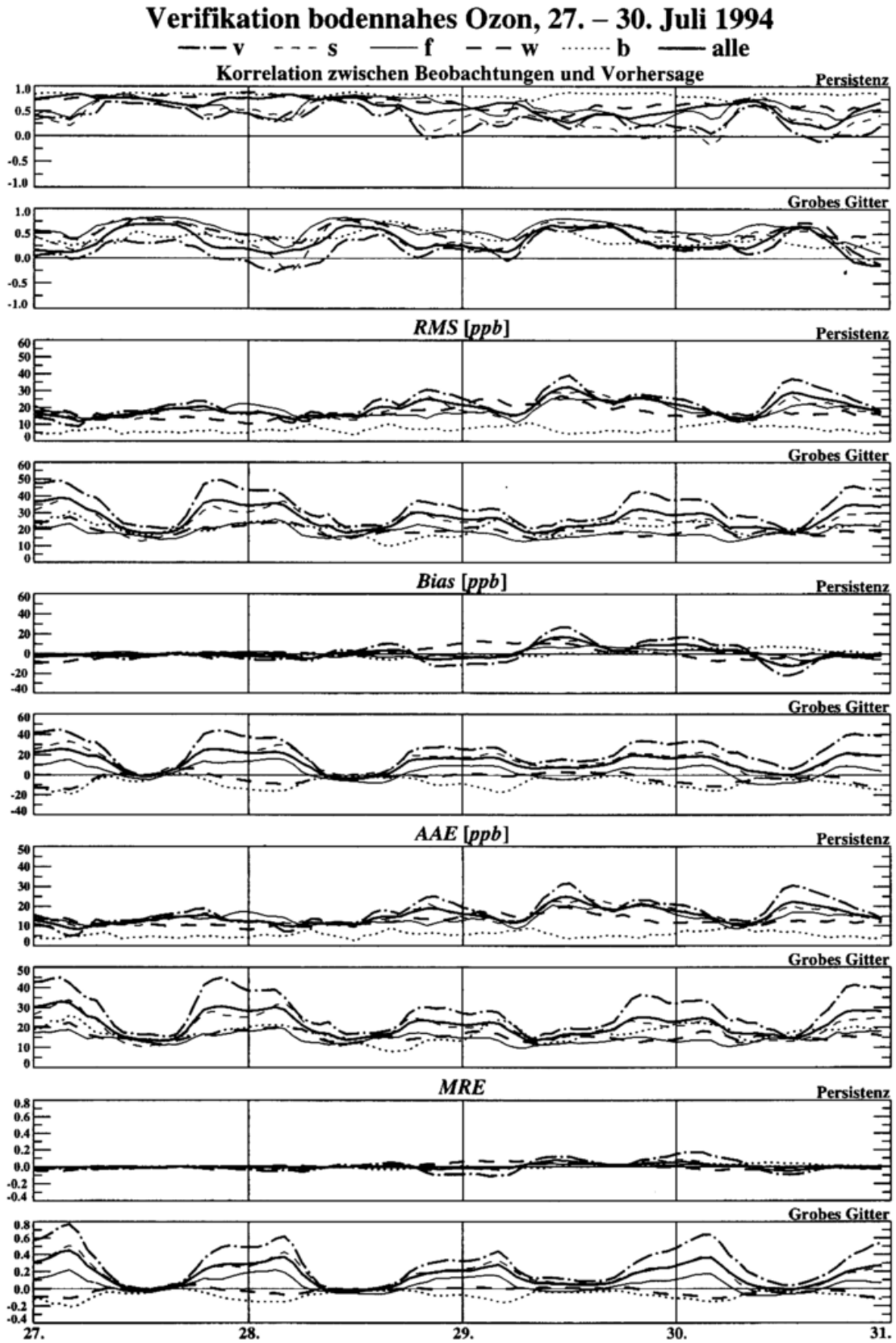


Abbildung 6.7: Vergleich der Zeitreihen räumlicher Differenzstatistiken (wie Abbildung 6.5) zwischen einer Persistenzvorhersage und der Prognose auf dem groben Gitter.

ländlichen. Dies ändert sich völlig bei der Betrachtung des Zeitfensters. Während die Reinluftstationen kaum Unterschiede aufweisen, sind die Korrelationskoeffizienten der belasteten Stationen generell wesentlich niedriger. Es lassen sich regionale Unterschiede beobachten: im Norden/Nordosten Deutschlands treten fast keine Korrelationen unter 0.3 auf, während an diversen — meist verkehrsbezogenen — Stationen im Süden die Korrelationskoeffizienten kleiner 0.3 sind. Viele Stellen dieser Arbeit (z. B. Kapitel 3) deuten darauf hin, daß das eine Besonderheit der simulierten Episode ist aber auch an der Auslegung der Meßnetze liegt. Besonders fallen z. B. der Küstenbereich der Niederlande (wie erwähnt auf Mängel im Modell zurückzuführen), weite Bereiche von Bayern (wahrscheinlich bedingt durch die Wahl der Meßstandorte) und Nordhessen auf.

Die entsprechenden Differenzen der Korrelationskoeffizienten für die beiden Gitter sind in Abbildung C.6 unten zu sehen (rot bedeutet eine bessere Vorhersage des groben Gitters). Auffällig ist, daß die größeren Differenzen für das Zeitfenster zu beobachten sind, in dem die Korrelationskoeffizienten eher niedrigere Werte aufweisen. Einige Beobachtungen sind für beide Zeiträume zu machen. Die Küste der Niederlande wird im Gegensatz zum Inland besser vom groben Gitter wiedergegeben, genauso wie sämtliche Berliner Stationen (die Station Stadtautobahn ist auch hier auffällig). Die Stationen in Nordrhein-Westfalen werden für den gesamten Zeitraum durchweg ebenfalls vom groben Gitter besser wiedergegeben, das Zeitfenster weist dort aber für das Nest 1-Gitter an den meisten Stationen höhere Werte auf. Zum Beispiel ist aber die Vorhersage des Nest 1-Gitters in Baden-Württemberg generell besser.

Bei der Darstellung des *RMS* sind weniger große Unterschiede zu sehen. Abbildung C.7 zeigt oben links die horizontale Verteilung des *RMS* für die gesamten Zeitreihen simuliert auf dem Nest 1-Gitter. Die Differenz des *RMS* für die beiden unterschiedlichen Zeitfenster auf dem Nest 1-Gitter sind oben rechts dargestellt. In der Abbildung sind unten die *RMS*-Differenzen zwischen den beiden Modellen links für den gesamten Zeitraum, rechts für die Werte von 10 – 18 UTC zu sehen. Es entsteht der Eindruck, daß bzgl. des *RMS* der Westen des Modellgebietes besser vorhergesagt wird als der Osten, die Differenzendarstellung oben rechts relativiert dies ein wenig für das Zeitfenster. Auffallend sind der Westen der Niederlande und das Zentrum von Nordrhein-Westfalen, dort werden die Tageswerte schlechter simuliert als die gesamten Tagesgänge. Einzelne Stationen zeigen große Unterschiede zwischen den Zeitfenstern, aber auch für die unterschiedlichen Auflösungen, Trends lassen sich aber aus der Abbildung nicht weiter ablesen. Für beide Abbildungen zeigen sich große Unterschiede in bezug auf den betrachteten Ausschnitt, die verschiedenen Stationstypen und die gewählten Zeitfenster.

Zum Abschluß dieses Abschnittes sei noch einmal auf die Darstellung von Werten mittels Häufigkeitsverteilungen hingewiesen. In den Kapiteln 2, 3 und 4 wurden diese eingesetzt und diskutiert. Sie liefern Hinweise über das klimatologische Verhalten der Daten und Möglichkeiten, die Klimatologie von Messungen und verschiedenen Modellen zu diskutieren. Anhand der Betrachtung der Statistiken lassen sich Hinweise über Eigenschaften oder Verhalten der Modelle quantifizieren. So konnte in diesem Abschnitt nicht gesagt werden, ob die Vorhersage des Nest 1- oder des groben Gitters besser sind. Vielmehr konnte gezeigt werden, daß die räumlichen und zeitlichen Schwankungen in der Vorhersagegüte größer sind, als die Unterschiede zwischen den Modellen der verschiedenen Auflösung. Dies gilt nur im speziellen Fall, auf die Ergebnisse bei einer weiteren Verfeinerung der Auflösung oder dem Einsatz anderer Emissionsdaten sind die Ergebnisse nicht übertragbar — wohl aber die Methoden. Es konnte auch hier die Aussage über das mittlere Modellverhalten unterstützt werden, das zwischen ländlich und flächenbezogen liegt, wobei das Nest 1 zu etwas städtischerem Verhalten hin tendiert.

### 6.3 Untersuchung postprozessierter Daten

In diesem Abschnitt soll auf die Nutzung aus Daten abgeleiteter Größen eingegangen werden. Mehr noch als bei der Auswahl und Präsentation der statistischen Größen zur Modellevaluierung besteht hierbei die Gefahr einer mehr oder weniger bewußten Subjektivität. Aus diesem Grund sollen nur die Ansätze angesprochen werden, die in den vorangegangenen Kapiteln erarbeitet und deshalb einigermaßen durchschaubar sind.

Bereits zu Beginn der Arbeit (und im weiteren Verlauf immer wieder) hat sich gezeigt, wie hilfreich eine Kategorisierung der Beobachtungen ist, also eine systematische Beschreibung der Ozonklimatologie für jede Meßstation. Besonders für die Beurteilung der Vergleiche zwischen Meßdaten und Modelldaten ist dies ein wichtiges Werkzeug. Allerdings ist die Methode zur Klassifizierung diskutierbar. Sie konnte aber im Verlauf der Arbeit mit anderen Methoden verglichen und bestätigt werden. Trotzdem besteht die Gefahr, bei der Betrachtung der Abbildungen zu übersehen, daß die Stationstypen nur das Resultat einer Auswertung einer dreimonatigen Zeitreihe sind. Sinnvoller wäre es, wenn eine (im Sinne der Modellierung „brauchbare“) Klassifizierung von den Betreibern der Meßnetze erstellt würde, die die Stationen besser kennen. Es ist auch zu beachten, daß der Stationstyp nur ein Mittelwert ist und das aktuelle Regime davon stark abweichen kann.

Mit Hilfe der PCA (Kapitel 4) bieten sich Ansatzpunkte, Beobachtungen und Simulationen in gleicher Weise sowohl klimatologisch als auch aktuell auszuwerten. Die PCA liefert eine Zerlegung der Daten in ein System von Freiheitsgraden, das nach der Größe der Anteile an der Varianz geordnet ist. Die Varianzstruktur in den Daten der verschiedenen Quellen läßt sich anhand der Form der führenden Eigenvektoren sowie an den Beträgen und Verhältnissen der Eigenwerte ablesen. Es ergeben sich Hinweise darauf, ob die Variabilität in den Daten klimatologisch ähnlich ist, oder ob z. B. vom Modell gewisse typische Varianzstrukturen, die in den Messungen enthalten sind, fehlen oder ein anderes Gewicht haben. Die PCA erlaubt eine Abschätzung des Rauschens und der Repräsentativität der Meßdaten und eine Filterung der Beobachtungen. Mit Hilfe der PCA ist es möglich, einen objektiven Weg zur Quantifizierung des Ozonregimes zu beschreiben. Es konnte gezeigt werden, daß die Stationskategorisierung und der Index für das Ozonregime zu vergleichbaren Klassifizierungen führen. Für die Evaluierung sowohl der Messungen als auch der Modellsimulationen können diese Verfahren genutzt werden. Abbildung 4.14 zeigt Häufigkeitsverteilungen der Indexwerte, anhand derer Eigenschaften der verschiedenen Datenquellen (Meßnetze und Modelle) verglichen werden können. Es zeigt sich, daß der Bereich zwischen „flächenbezogen“ und „ländlich“ in den Meßnetzen unterrepräsentiert ist und es keine Möglichkeit gibt, Modelle über dem Meer zu evaluieren. Die räumliche Verteilung der mittleren simulierten Indexwerte in Abbildung 4.13 liefert Informationen über das Modell. Es zeigt sich, daß (z. B. aufgrund der gegenwärtig benutzten Emissionsdaten und Auflösungen) nur an wenigen Orten der Simulationsgebiete im Mittel städtisches Verhalten des Ozons simuliert werden kann. Das heißt aber auch, daß von vorn herein der Vergleich der Simulationen mit vielen sehr belasteten Stationen z. B. nachts sinnlos ist. Aktuelle Indexwerte sind neben den Mischungsverhältnissen Parameter, die über die Güte einer Vorhersage Auskunft geben. Bei der Bestimmung der Ursachen z. B. für große Abweichungen in gemessenen und modellierten Ozondaten ist ein Vergleich der jeweiligen aktuellen Regime hilfreich, die im Einzelfall stark von der Klimatologie abweichen.

Auch die objektive Interpolation bietet verschiedene Möglichkeiten für die Evaluierung von Modellen und Messungen. In Abbildung 6.3 sind rechts Beispiele analysierter Felder zu sehen. Der Vergleich mit den Eingangsdaten zeigt, wo die Analyse in Richtung Hintergrundfeld und wo

sie in Richtung Messungen tendiert. Die genaue Kenntnis des Analyseverfahrens hilft, die resultierenden Strukturen und Abweichungen zu bewerten. Die Auswertung der Beobachtungsinkremente (Differenzen Modell minus Messung) ermöglicht Aussagen über die Repräsentativität und Abschätzungen für das Verhältnis von skaligen Fehlern der Simulation zu Repräsentativitätsfehlern der Beobachtungen und subskaligen Modellfehlern. Ein solches Verfahren ist zum Vergleich der Klimatologien unterschiedlicher Modelle geeignet. In Abschnitt 5.1 wurde gezeigt, daß eine Untersuchung der Differenzen zwischen Analysen und Beobachtungen sowie zwischen Analysen und modellierten Hintergrundfeldern für die Evaluierung nützlich ist. Rutherford (1972) schlägt ein Verfahren zur Feststellung der Plausibilität von Messungen mittels der OI vor. Wenn die Abweichung Analyse minus Meßwert für eine Analyse, in die der spezielle Meßwert nicht eingeht, bestimmte Grenzen überschreitet, wird diese Messung als nicht plausibel angenommen. Beispiele dafür sind die Stationen Essen-Bredeneu und Stadtautobahn in Berlin in Abbildung 6.3. Auch Hollingsworth et al. (1986) berichten über die Überwachung von Beobachtungsnetzen mit Hilfe von Messungen und Analysen. Der Grund dafür, daß dies hier nicht vorgenommen wird und — entgegen der eingangs des Abschnittes gemachten Bemerkung — nur aus der Literatur zitiert wird, liegt darin, daß für die Anwendung solcher Methoden die Informationen aus Beobachtungen und Analysen für lange Zeiträume vorliegen müssen.

## 6.4 Diskussion der Evaluierung

Die Auswahl von Daten und Vergleichsmethoden, aber auch die Art der Darstellung beeinflußt in starkem Maße die abzulesenden Informationen. Die korrekte Information zu vermitteln ist deshalb äußerst schwierig. Der Vergleich mit nicht repräsentativen Daten ist eher kontraproduktiv, aber die Möglichkeit, die Daten zu bewerten, muß erst einmal gegeben sein. Die Fortschritte bei der Entwicklung der Modelle ermöglichen neue Anwendungen, wie Szenarierechnungen oder Prognosen der Luftqualität. Dies setzt wiederum voraus, daß die Modelle genau für diese Aufgabenstellung evaluiert sind — für längere Zeiträume und auf dem ganzen Gitter, das den Anwendungen entsprechend groß ist (wie z. B. die in dieser Arbeit benutzten). In der Literatur sind ausreichende Ansätze in diese Richtung zur Zeit nicht zu finden, weshalb in diesem Kapitel einige Methoden zusammengefaßt wurden.

Ein Ergebnis ist, daß ein sehr großer Aufwand nötig ist. Es geht nicht mit wenigen Stationen. Es reicht ebenfalls nicht aus, einfache Maßzahlen zu berechnen oder Vergleiche anzustellen. Die späteren Anwendungen erfordern die Evaluierung anhand großer Datenmengen und langer Zeiträume, was zur Zeit nur mit den Daten der operationell betriebenen Meßnetze durchzuführen ist. Vergleiche müssen sowohl räumlich als auch zeitlich differenziert erfolgen. Es gibt viele Methoden, dies durchzuführen, direkte Vergleiche der Daten, die Berechnung statistischer Maße sowie komplizierte Aufbereitungsverfahren für die Daten. Allerdings ist es notwendig, auf viele verschiedene Methoden zurückzugreifen, um durch deren Kombination Informationen zu gewinnen, die aussagekräftig, objektiv, belastbar und vollständig sind. Einfache Vergleiche reichen aus, solange nur nach Fehlern gesucht wird, und helfen, schnell Hinweise auf grobe Defizite der Simulationen zu liefern. Beachtung verdient in diesem Zusammenhang das Problem der Darstellung. Dieses Kapitel hat auch gezeigt, daß die Datenmenge Abbildungen beliebig kompliziert und unüberschaubar machen kann, daß die Art der Präsentation wesentlichen Anteil daran hat, ob und wie gut und welche Informationen abgelesen werden können.

Nicht zuletzt erwachsen durch diese Ansprüche an die Evaluierung neue Qualitätsanforderungen an die Messungen. Mindestanforderungen sind exakte Angaben über die Meßstationen und die Meßgenauigkeit. Wünschenswert wäre eine bessere Abstimmung der Meßstandorte in be-

zug auf deren Repräsentativität, was nicht nur den Modellen, sondern auch der Aussagekraft der Messungen selbst zugute käme. Bei der Planung von Meßnetzen und der Qualitätskontrolle sind Modelle ein wichtiges Hilfsmittel. Zwingend erforderlich, aber gegenwärtig wohl nicht durchsetzbar ist der Aufbau repräsentativer Meßstellen in ausreichender Zahl für weitere Spurengase wie z. B. *PAN* — ganz abgesehen von dem Defizit an Informationen über die vertikale Verteilung von Schadstoffen.

## Kapitel 7

# Zum Problem der Anfangs- und Randwerte

Das Ziel dieses Kapitels ist die Nutzung der Datenassimilation der bodennahen Ozonmessungen zur Verbesserung der Kurzfristvorhersage mit dem EURAD-CTM. Eingebettet ist dies in eine allgemeinere Diskussion darüber, wie die Meßwerte atmosphärischer Spurenstoffe, die zur Zeit zur Verfügung stehen, zur Verbesserung der Vorhersagegüte des CTMs genutzt werden können und welchen Einfluß sie auf die Simulation haben können. Bei der Diskussion kann auf eine große Zahl von früheren und aktuellen Arbeiten der EURAD-Gruppe zu diesem Thema zurückgegriffen werden. Als erstes in diesem Zusammenhang ist Petry (1993) zu zitieren. Es wird der Einfluß der Anfangswerte der verschiedenen modellierten Spurenstoffe auf die Simulation getestet, dabei wurde mit synthetischen Daten gearbeitet. Diese Arbeit ist für die Diskussion der Nutzung klimatologischer Daten als Anfangs- und Randwerte in Abschnitt 7.2 von besonderer Bedeutung. Im Zusammenhang mit Flugzeugemissionen untersucht Lippert (1996) anhand von Sensitivitätsstudien den Einfluß von Anfangs- und Randwerten auf die Simulation in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Elbern et al. (1996) diskutieren die Möglichkeiten der Datenassimilation mit aktuellen Beobachtungen im CTM, und Schmidt (1996) und Elbern et al. (1997) entwickeln Methoden der variationellen Datenassimilation für das CTM. Schell (1997) vergleicht die Anfangs- und Randdaten des CTMs mit Messungen aus der Literatur und führt dazu Sensitivitätsstudien mit einem Boxmodell durch.

Hier soll nun das Problem der Anfangs- und Randdaten vom Blickwinkel der Beobachtungen aus betrachtet werden: was kann mit den Meßdaten erreicht werden, um Anfangs- oder Randwerte zu verbessern. Es wurde bereits herausgearbeitet, daß von den aktuellen Messungen zur Zeit nur das bodennahe Ozon den Ansprüchen des Modelles, aber auch der Qualitätssicherung genügt. Als zweite Quelle können Informationen über Messungen aus der Literatur auch für verschiedene andere Spurenstoffe herangezogen werden (Schell, 1997). Diese Daten wurden in der Regel nicht in den simulierten Zeiträumen erhoben und können folglich nur klimatologisch genutzt werden. Aus diesem Grund erfolgt die Diskussion in diesem Kapitel in drei Schritten. Der Einfluß der Anfangswerte auf die Simulation wird im ersten Abschnitt angesprochen. Dann wird ein neues Verfahren zur Nutzung klimatologischer Daten für die Bestimmung der Anfangs- und Randwerte, aufbauend auf Lippert (1996), vorgestellt. Dazu werden Versuche auf dem groben Gitter ausgewertet. Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Schema zur Assimilation aktueller Ozondaten, aufbauend auf der OI, wird in Abschnitt 7.3 beschrieben. Aufgrund der Datenlage werden dafür Tests auf dem Nest 1-Gitter durchgeführt. Anschließend wird die Problematik im letzten Abschnitt zusammengefaßt.

## Verifikation bodennahes Ozon, 27. – 30. Juli 1994, grobes Gitter

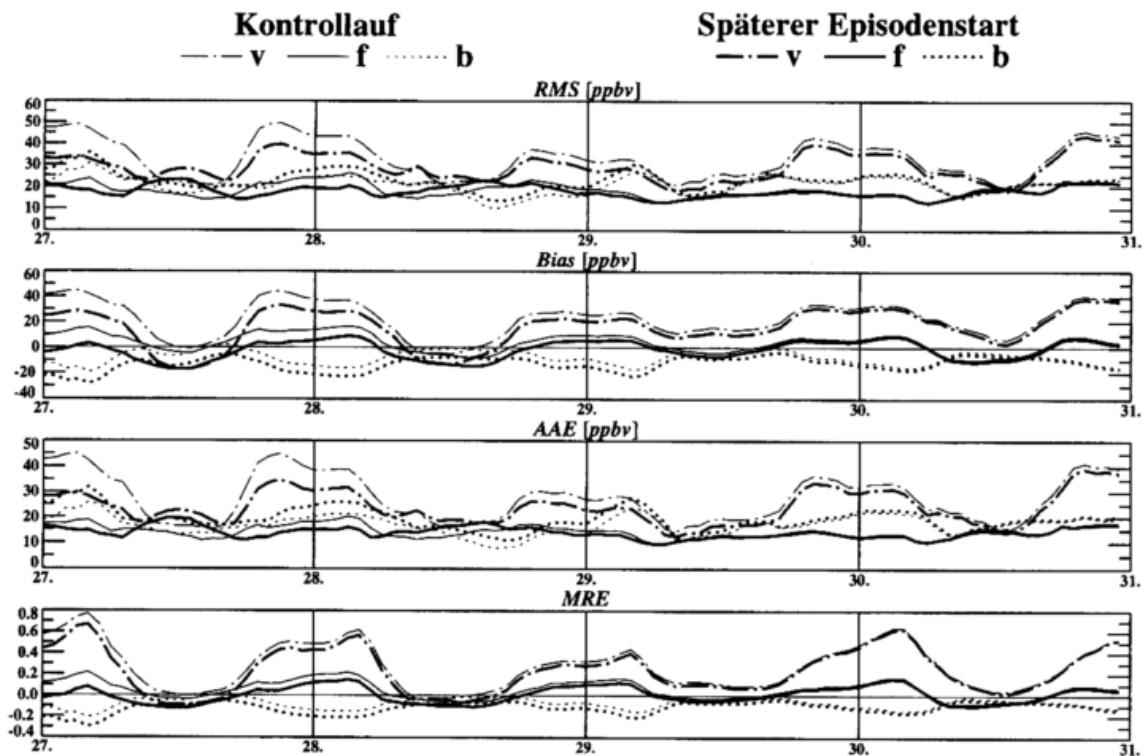


Abbildung 7.1: Vergleich der Zeitreihen räumlicher Differenzstatistiken (wie Abbildung 6.5) zwischen dem Kontrolllauf und dem Lauf mit späterem Startzeitpunkt für die Stationstypen Verkehr (strichpunktiert), Fläche (durchgezogen) sowie Berg (gepunktet).

### 7.1 Der Einfluß von Anfangswerten

Zuerst soll anhand der Beispiele in den Abbildungen 7.1 und 7.2 gezeigt werden, wie lange und in welchem Ausmaß die Anfangswerte einen Einfluß auf die modellierten Ozonkonzentrationen haben. Dazu wurde der Zeitraum vom 27. – 30. Juli 1994 auf dem groben Gitter noch einmal gerechnet — nur mit dem Unterschied, daß der Vorlauf des CTMs anstatt am 19. erst am 25. Juli beginnt. Wie bereits in Kapitel 3 und auch in Anhang B beschrieben, erhält das CTM die Anfangsdaten für die chemischen Spezies aus einem 48stündigen Vorlauf. Dieser Vorlauf ist ein „Kaltstart“ des Modelles, der von klimatologischen Verteilungen der Konzentration ausgehend startet. In Abbildung 7.1 sind Zeitreihen der zu festen Zeitpunkten berechneten Differenzstatistiken dargestellt, einmal für den am 19. mit dem Vorlauf startenden Kontrolllauf (dünn) und zusätzlich für das Experiment, dessen Vorlauf am 25. beginnt. Es ist zu sehen, daß am 27. Juli, nach über 48 Stunden Vorhersage, die Anfangswerte noch nicht „vergessen“ sind. Für die gezeigten Stationskategorien sind die Kurven für beide Läufe qualitativ sehr ähnlich. Das CTM modelliert den qualitativen Verlauf der Konzentrationen somit weitgehend unabhängig von den variierten chemischen Anfangsdaten. Nur noch am 27., zur Zeit der täglichen Maximalwerte des Bodenzons, zeigt der Kontrolllauf deutlich bessere Werte für die Maßzahlen (zur Definition und Diskussion der statistischen Maße siehe die Abschnitte 5.4.3 und 6.2). Aufgrund der allgemein niedrigen Anfangswerte für Ozon nicht nur in Bodennähe und nicht nur in Städten (siehe Anhang B) fallen die Statistiken für die Verkehrsstationen nachts zu Beginn der dargestellten Zeitreihen für den späteren Episodenstart besser aus. Es dauert verhältnismäßig lange — länger als die 48 Stunden des Vorlaufes —, bis das hohe mittlere Ozonniveau aufgebaut werden

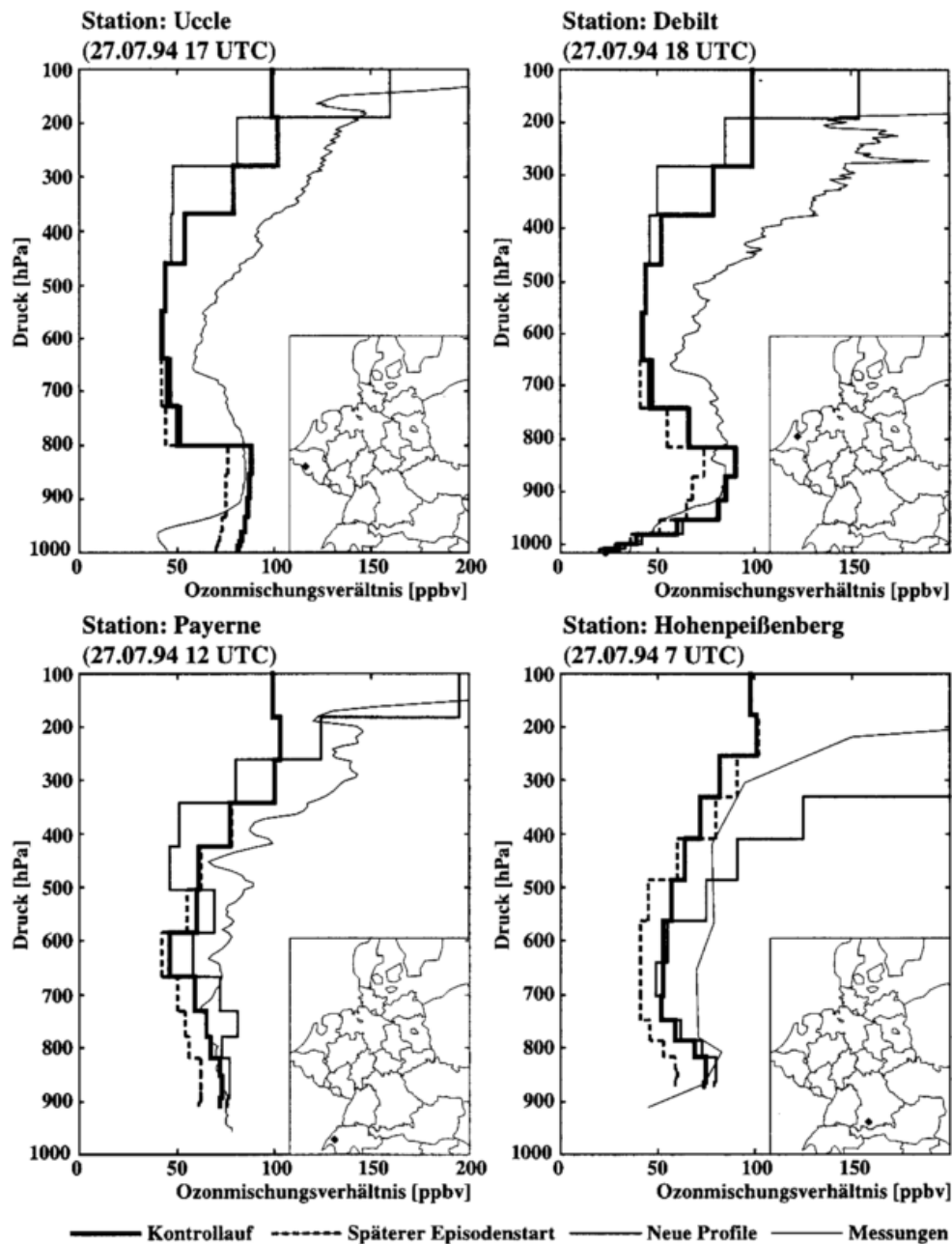


Abbildung 7.2: Vergleich von Ozonmischungsverhältnissen in *ppbv* von Sondenaufstiegen (dünn) und den modellierten Profilen des Kontrolllaufes (dick), des Laufes mit späterem Startzeitpunkt (gestrichelt) und des Laufes mit neuen Anfangs- und Randprofilen (mitteldick, diskutiert in Abschnitt 7.2).

kann. Für die Bergstationen ist der Kontrolllauf grundsätzlich besser, was diese Aussage in anderer Richtung bestätigt, da das höhere nächtliche Ozonniveau von den niedrigen Anfangswerten unterschätzt wird. Ein weiteres Ergebnis des Experimentes ist, daß sich mit fortschreitender Simulationsdauer die Resultate der Experimente einander nähern — ein Zeichen dafür, daß das CTM die Anfangsdaten des Ozons vergißt und sich einem „Modellklima“ nähert, das allerdings von den Randwerten mitbestimmt sein kann. Andererseits wird deutlich, daß 48 Stunden nicht lang genug sind, um den Einfluß der Anfangsdaten vernachlässigen zu können, dieser ist auch noch fünf Tage nach dem Start des Vorlaufes spürbar.

Daß sich dies aber hauptsächlich auf die Grenzschicht und die untere freie Troposphäre aus-

wirkt, zeigt Abbildung 7.2. Für den Kontrolllauf (dick) und das Experiment mit dem späteren Start des Vorlaufes (gestrichelt) werden wie in Abbildung 6.2 die Modelldaten den am 27. gemessenen Ozonprofilen gegenübergestellt. Alle Profile zeigen im unteren Bereich niedrigere Konzentrationen als das Kontrollexperiment, also einen deutlichen Hinweis auf den Einfluß zu niedriger Anfangskonzentrationen. Die obere Hälfte der Profile wird weniger durch die Anfangsdaten geprägt, da dort üblicherweise höhere Windgeschwindigkeiten als im unteren Bereich der Troposphäre vorliegen. Auch in Abbildung 7.2 weicht der qualitative Verlauf der Profile nicht von dem des Kontrolllaufes ab.

## 7.2 Klimatologische Anfangs- und Randwerte

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein neues Verfahren entwickelt, um klimatologische Daten zur Bestimmung von Anfangs- und Randwerten der chemischen Konstituenten des CTMs zu nutzen. Das Schema, das auf den Arbeiten von Lippert (1996) und Schell (1997) aufbaut, ist in Anhang B beschrieben. Das Ziel des neuen Ansatzes ist es, die Anfangs- und Randdaten flexibel den aktuellen meteorologischen Bedingungen anzupassen und den Einfluß klimatologischer Daten auf die Prognose zu untersuchen.

Im Unterschied zu den bisher im EURAD-CTM möglichen Optionen werden mehrere vom meteorologischen Modell aktuell prognostizierte Parameter mit den zur Verfügung stehenden klimatologischen Beobachtungen der chemischen Spurenstoffe kombiniert. Dies sind, wie die in Anhang B zitierte Literatur zeigt, die Höhen der Grenzschicht und der Tropopause sowie das vertikale Profile der potentiellen Vorticity in der oberen Troposphäre und unteren Stratosphäre. Die Korrelationen mit der potentiellen Vorticity und die vertikalen Schichtgrenzen sind charakteristisch für die Vertikalprofile vieler Spezies. Ein Vorteil des neuen Verfahrens, das diese Parameter nutzt, ist die große Flexibilität, z. B. durch die höhenabhängige Korrelation zwischen Ozon und potentieller Vorticity und der Einfachheit, neue Erkenntnisse über die räumliche oder zeitliche Verteilung der Spurengase einzubauen.

Schnell werden aber auch die Grenzen eines solchen Verfahrens und damit der Nutzung klimatologischer Daten deutlich. Für die RADM-Klasseneinteilung der chemischen Spezies im CTM (Stockwell et al., 1990) gibt es nur wenige Informationen, wie eine dreidimensionale Verteilung aussehen könnte. Die Stoffe sind meist schwer zu messen, und die einzelnen RADM-Klassen können nur zum Teil durch Daten zugehöriger Spezies abgedeckt werden. Über die Variationen in der Vertikalen oder bzgl. der verschiedenen geographischen Breiten und Jahreszeiten ist wenig bekannt. Ein weiterer Faktor ist die Korrelation zwischen der potentiellen Vorticity und Ozon. Wie in Anhang B beschrieben gibt es noch große Unsicherheiten in bezug auf den linearen Zusammenhang sowie auf dessen vertikalen Gültigkeitsbereich.

Hier soll nun untersucht werden, wie groß der Einfluß des neuen Verfahrens ist. Dazu wurde eine weitere Simulation auf dem groben Gitter durchgeführt, die sich vom Kontrolllauf nur durch die Methode der Bestimmung von Anfangs- und Randwerten unterscheidet, also ebenfalls am 19. Juli mit einem Kaltstart beginnt. Abbildung 7.3 zeigt, wie Abbildung 7.1, den Einfluß auf die Mischungsverhältnisse des bodennahen Ozons anhand von Differenzenstatistiken. Wieder ändert sich sehr wenig am qualitativen Verlauf der Zeitreihen. Im Gegensatz zu Abbildung 7.1 zeigt sich aber, daß die Differenzen der beiden Experimente mit der Dauer der Episode nicht abnehmen. Von den Randdaten wird also das Modellklima des bodennahen Ozons deutlich mitbestimmt (die meisten Stationen liegen im Zentrum des Gebietes). Außer für den *RMS* zeigen die Maßzahlen durchgehend eine Verbesserung der Vorhersage für Bergstationen. Dies

### Verifikation bodennahes Ozon, 27. – 30. Juli 1994, grobes Gitter

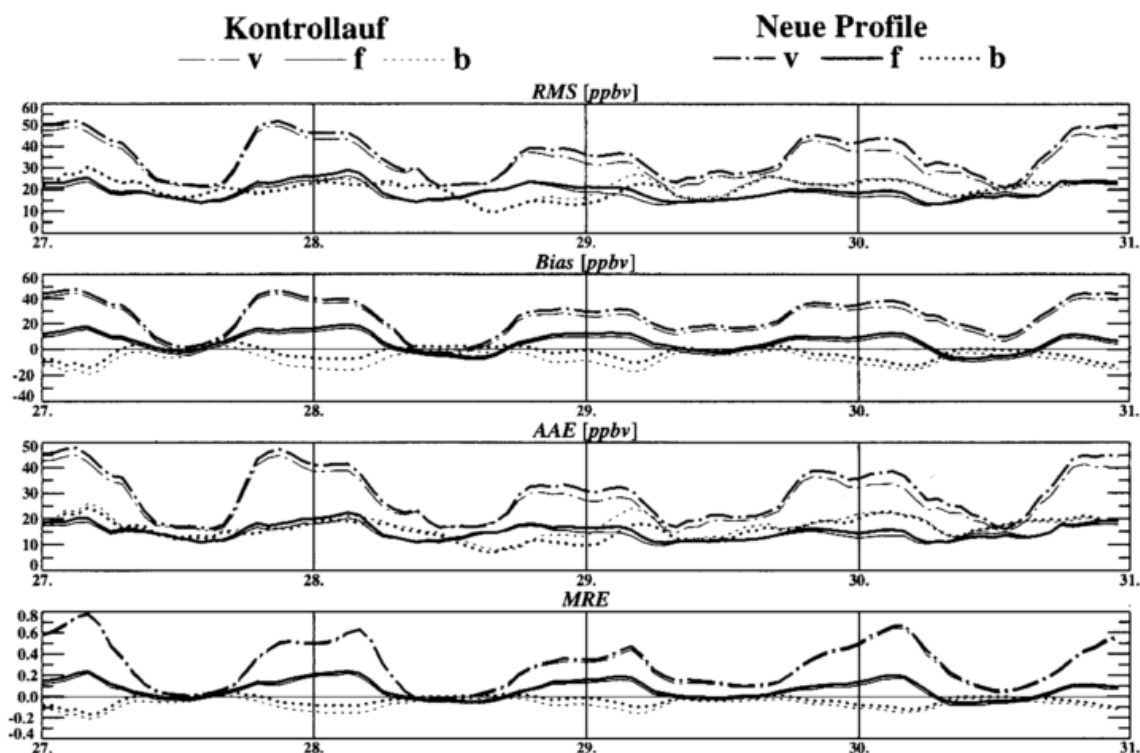


Abbildung 7.3: Vergleich der Zeitreihen räumlicher Differenzenstatistiken zwischen dem Kontrolllauf (dünn) und dem Lauf mit neuen Anfangs- und Randdaten für die chemischen Spezies (dick); Stationstypen wie in Abbildung 7.1.

wird ein Effekt davon sein, daß bei dem neuen Verfahren die bodennahen Ozonwerte von der Geländehöhe abhängen: die klimatologischen Profile werden in der entsprechenden Höhe über dem Meeresniveau ausgewertet. Für Verkehrs- und Flächenstationen wirkt sich eine leichte Erhöhung der bodennahen Anfangs- und Randwerte in einer Verschlechterung der Maßzahlen für die nächtlichen Werte aus.

Eine Möglichkeit, die durch das neue Verfahren erreichte Verbesserung zu zeigen, ist der Vergleich mit den am 27. gemessenen Ozonprofilen in Abbildung 7.2. Deutlich wird der positive Effekt der Berücksichtigung der Tropopausenhöhe und der Kopplung des Ozons an die potentielle Vorticity darüber. Drei von vier Profilen zeigen unterhalb der Tropopause zu niedrige Werte, niedriger noch als beim Kontrollexperiment. Eventuell muß dort das Standardozonprofil modifiziert werden. Dafür ist die Auswertung weiterer simulierter Episoden erforderlich. Auf die planetare Grenzschicht haben die Änderungen an der Bestimmung der Anfangs- und Randwerte nur einen geringen Einfluß. Übereinstimmend mit der Diskussion zu Abbildung 7.3 ist für Payerne und Hohenpeißenberg eine leichte Erhöhung der bodennahen Werte zu beobachten.

Eine weitere Verifizierung der Ergebnisse ist mangels Meßdaten nicht möglich, aber verschiedene Aspekte der Einflüsse der Anfangs- und Randdaten auf die Modellergebnisse können noch diskutiert werden. Da der Einfluß klimatologischer Daten untersucht wird, müssen die Auswirkungen auf das mittlere Modellverhalten betrachtet werden. Dieses wird anhand der Abbildungen 7.4 und 7.5 vorgenommen. Die Größe des Modellgebietes bringt es mit sich, daß klimatologisch sehr verschiedene Regionen darin enthalten sind. In der Literatur sind gegenwärtig noch zu wenige Informationen zu finden, die, außer z. B. für  $NO_x$  und Ozon, eine Abhängigkeit der klimatologi-

schen Profile von der geographischen Breite zulassen würden. Trotzdem — oder gerade deshalb — sind mittlere, modellierte Verteilungen der Spurengase für verschiedene Gebiete interessant. Für diesen Abschnitt wurden dazu fünf Ausschnitte separat betrachtet, die in Abbildung 7.4 unten zu sehen sind. Für diese fünf Regionen wurden über die simulierte Episode und das entsprechende Gebiet gemittelte Vertikalprofile berechnet und für beide Experimente anhand von einigen Beispielen in der Abbildung dargestellt (Ozon und PAN werden in Abbildung 7.5 gesondert betrachtet). Es bietet sich ein Vergleich mit den klimatologischen Ausgangsprofilen aus Abbildung B.1 an. Dabei ist erstens zu beachten, daß im Anhang eine logarithmische Skala in  $z$ -Koordinaten, hier aber linear aufgetragene  $\sigma$ -Koordinaten auf der Ordinate verwandt wurden. Zweitens ist beim Vergleich von Höhen zu beachten, daß die neuen, im Anhang gezeigten Profile an Standardhöhen für die PBL und die Tropopause gekoppelt sind, der direkte Vergleich also schwierig ist. In der Arbeit von Petry (1993) sind eine große Anzahl von Sensitivitätsstudien mit einem Boxmodell insbesondere in bezug auf die Anfangsdaten zu finden. Viele Ergebnisse dieser Arbeit können anhand der CTM-Simulationen bestätigt werden und helfen in der folgenden Diskussion.

Es sind Effekte verschiedener Art in Abbildung 7.4 zu beobachten. Am Beispiel der Salpetersäure  $HNO_3$  ist die Berücksichtigung der Höhe der dynamischen Tropopause gut zu beobachten. Die lange atmosphärische Lebensdauer bewirkt, daß das  $HNO_3$  oberhalb der PBL zum großen Teil durch die Anfangs- und Randwerte geprägt ist. Die Werte in der Grenzschicht sind hauptsächlich durch Emissionen und chemische Produktion (siehe besonders die hohen Werte im Teilgebiet „Deutschland“) bzw. Deposition bestimmt.

Das Wasserstoffperoxid  $H_2O_2$  wird in der simulierten Episode nicht stark von den Anfangs- und Randwerten bestimmt. Innerhalb der PBL sind die Profile für beide Simulationsläufe sehr ähnlich. In den oberen Modellschichten zeigen der Kontrolllauf und das Experiment mit den neuen klimatologischen Daten Unterschiede auf. Die neuen klimatologischen Profile entsprechen besser den mittleren modellierten Profilen, z. B. ist die Abnahme der Konzentration zum Boden hin in allen Modellprofilen zu beobachten.

Auch die Aldehyde  $ALD$  und  $HCHO$  sind Beispiele für Stoffgruppen, die kaum von Anfangs- und Randwerten beeinflusst sind. Die höheren Werte in Bodennähe der neuen Standardprofilen stimmen ebenfalls besser mit dem mittleren Modellverhalten überein.

Die klimatologischen Daten der organischen Peroxide  $OP_1$  und  $OP_2$  wurden nur wenig geändert. Die generell höheren Werte beider Gruppen in der Simulation mit den neuen klimatologischen Daten sind also auf Quereffekte durch die Modifikation der Profile anderer Stoffe zurückzuführen.

Die Ameisensäure  $ORA_1$  wird in der Gasphase im CTM nicht chemisch abgebaut, sie wird deutlich von Anfangs- und Randdaten beeinflusst. Die Werte des Kontrolllaufes sind im Vergleich durchweg niedriger. Zumindest in der PBL gibt es in den verschiedenen Teilgebieten unterschiedlich starke Produktion, so daß „Großbritannien“ und „Griechenland“ weitestgehend den klimatologischen Profilen entsprechende Verläufe aufweisen. Dagegen sind die Werte z. B. in „Deutschland“ wesentlich höher. Diese Unterschiede in der chemischen Produktion von  $ORA_1$  sind u. a. bedingt durch den Verlauf der Episode, die vor allem in „Deutschland“ einen ausgeprägten Sommersmogcharakter aufwies.

Die langen Lebenszeiten des Ethans  $ETH$  und auch der Alkanklasse  $HC_3$  bewirken eine deutliche Prägung der Profile durch die Anfangs- und Randwerte. Nur in „Deutschland“ sind die Werte innerhalb der PBL höher als die der Standardprofile. Dies ist auf hohe Emissionen zurückzuführen.

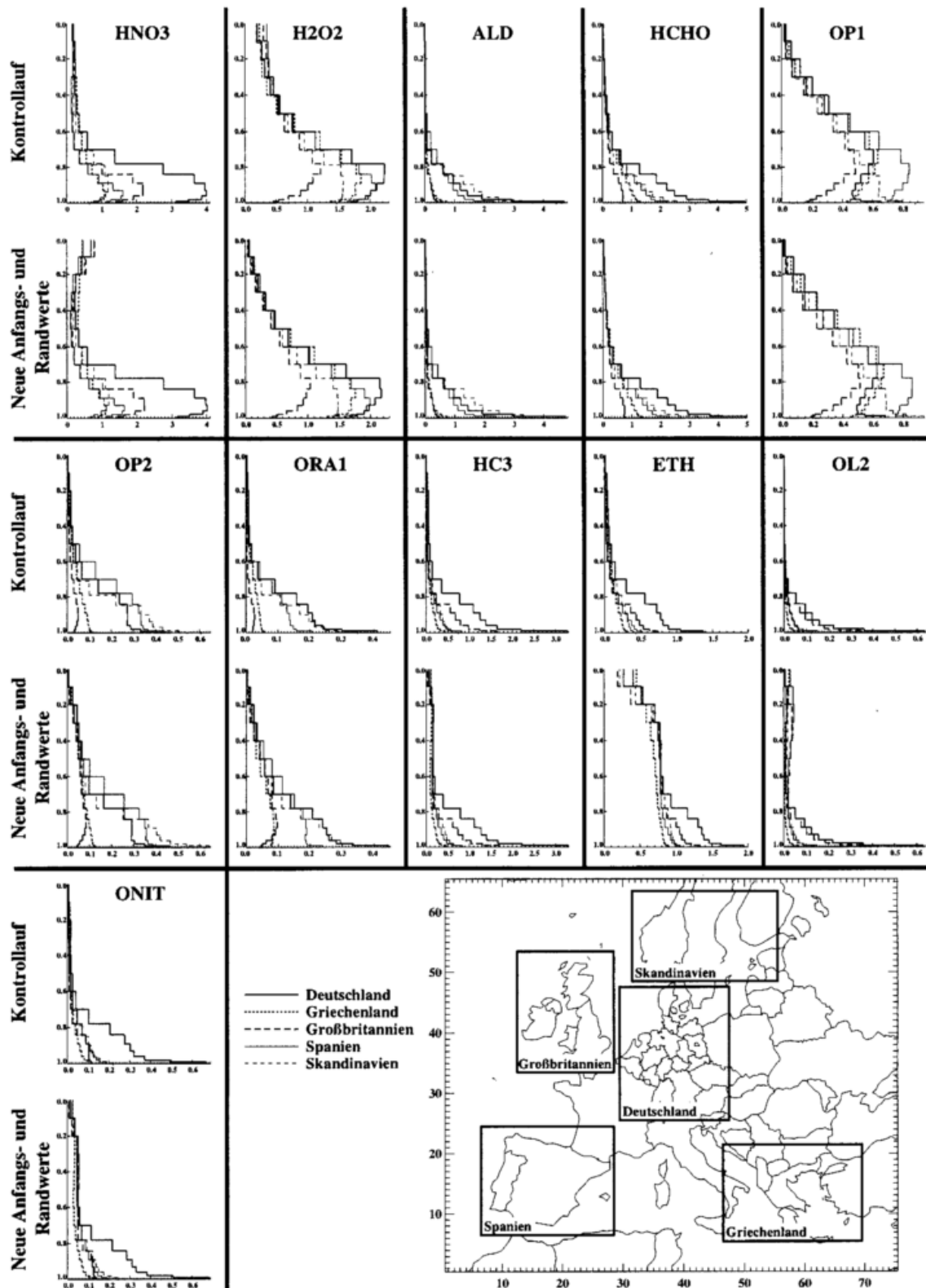
Mittlere Vertikalprofile ( $\sigma$ -System) [ppbv], 21. – 30 Juli 1994

Abbildung 7.4: Vergleich von Kontrolllauf und der Simulation mit den neuen Anfangs- und Randdaten mittels über die Episode zeitlich und über die unten rechts dargestellten Teilgebiete räumlich gemittelten Vertikalprofilen verschiedener RADM-Stoffklassen; die Einheit ist ppbv.

Für das Ethen *OL2* gibt es keine chemische Produktion im CTM. Oberhalb der PBL wird es recht schnell abgebaut. Innerhalb der PBL hingegen ist es größtenteils durch die Emissionen bestimmt. Der Einfluß der neuen klimatologischen Profile ist somit nur in leicht erhöhten Werten in der freien Troposphäre zu beobachten. Die simulierten Werte sind dabei wesentlich niedriger als in der Literatur (z. B. Rudolph, 1988) beschrieben und niedriger als die der Standardprofile.

Die „anderen organischen Nitrate“ *ONIT* stellen ein besonderes Problem dar (Schell, 1996), da ihre Zusammensetzung in der Literatur uneinheitlich definiert ist. Oberhalb der PBL folgen sie den klimatologischen Daten, innerhalb der PBL haben die Anfangs- und Randdaten — auch die der anderen Stoffklassen — keinen signifikanten Einfluß.

Die übrigen Stoffklassen des CTM zeigen ein Verhalten in den unterschiedlichen Simulationen, das im Trend einer der oben diskutierten entspricht. Insgesamt zeigt sich eine große Abhängigkeit der Profile besonders in der PBL vom Simulationsgebiet. Qualitativ ändert sich daran durch die geänderten Anfangs- und Randdaten wenig, da die Effekte der speziellen Wetterlage, der klimatologischen Wetterbedingungen sowie der Verteilung der Emissionen dominieren. Die klimatologischen Daten beeinflussen in größerem Maße die absoluten Werte, haben aber nur einen geringen Einfluß auf die relativen Beziehungen zwischen den einzelnen Stoffen für die verschiedenen Gebiete. Insgesamt spielen die klimatologischen Daten besonders oberhalb der PBL für die Konzentrationen in allen Teilgebieten eine große Rolle. Aus Abbildung 7.4 kann somit der Schluß gezogen werden, daß die neue Methode zur Bestimmung der Anfangs- und Randdaten dem alten Verfahren vorzuziehen ist.

Schließlich wird in Abbildung 7.5 anhand von Ozon und Peroxiacetylnitrat *PAN* die zeitliche Variation gemittelter Vertikalprofile diskutiert. Es wurde für die fünf Teilgebiete und zusätzlich für das gesamte Simulationsgebiet über dreimal zwei Tage zeitlich gemittelt. Dies sind die Perioden 21. – 23.07.94 (dünn dargestellt), 25. – 27.07.94 (mitteldick) sowie 29. – 31.07.94 (dick), jeweils 00 – 00 UTC. Die Vertikalkoordinate bezeichnet in dieser Abbildung den oberen Rand der entsprechenden Modellschicht. Die Skalierung ist zwischen den Spezies und Teilgebieten unterschiedlich, um die Differenzen zwischen beiden Modellläufen besser hervorzuheben.

Über das Ozon erfolgt im neuen Verfahren der Einfluß der dynamischen Tropopause auf die Bestimmung der Anfangs- und Randdaten. Während die Ozonmischungsverhältnisse der oberen beiden Modellschichten im Kontrolllauf immer ca. 100 ppbv betragen — das ist der entsprechende „alte“ klimatologische Wert —, variieren sie im Experiment mit dem neuen Verfahren stark in Abhängigkeit vom Teilgebiet und von der zeitlichen Periode. In bezug auf die Teilgebiete ist der Trend zu höheren Werten bei höheren geographischen Breiten (siehe „Großbritannien“ und „Skandinavien“) deutlich, dort ist im Mittel die Tropopause am niedrigsten. Die Dynamik bewirkt außerdem Variationen, die für die Teilgebiete unterschiedliche zeitliche Entwicklungen hervorruft. Im Fall von „Griechenland“ ist der Anstieg der Ozonwerte mit der Höhe in Tropopausennähe und darüber weniger steil, als z. B. in „Großbritannien“. Das neue Verfahren vollzieht also sehr sensitiv die lokalen dynamischen Gegebenheiten nach. In den Höhen unterhalb der durch die potentielle Vorticity bestimmten Schichten, zeigen die mittleren Ozonprofile nur vergleichsweise geringe Unterschiede zwischen den beiden Modellläufen, da auch die alten und neuen klimatologischen Standardprofile dort vergleichbar sind. Die Profile der einzelnen Teilgebiete unterscheiden sich ebenfalls wenig voneinander. Nur für „Deutschland“ — und in geringerem Maße für „Skandinavien“ — sind für die dritte und fünfte Periode erhöhte Werte in der unteren freien Troposphäre und der PBL zu beobachten. Diese sind wieder auf die lokal ausgeprägte Sommersmogepisode während dieser Zeiträume zurückzuführen. Auch das gilt für beide Simulationen. Diese Ähnlichkeit in der PBL und der freien Troposphäre zwischen den beiden Experimenten ist ein deutlicher Hinweis darauf, daß das mittlere Modellverhalten

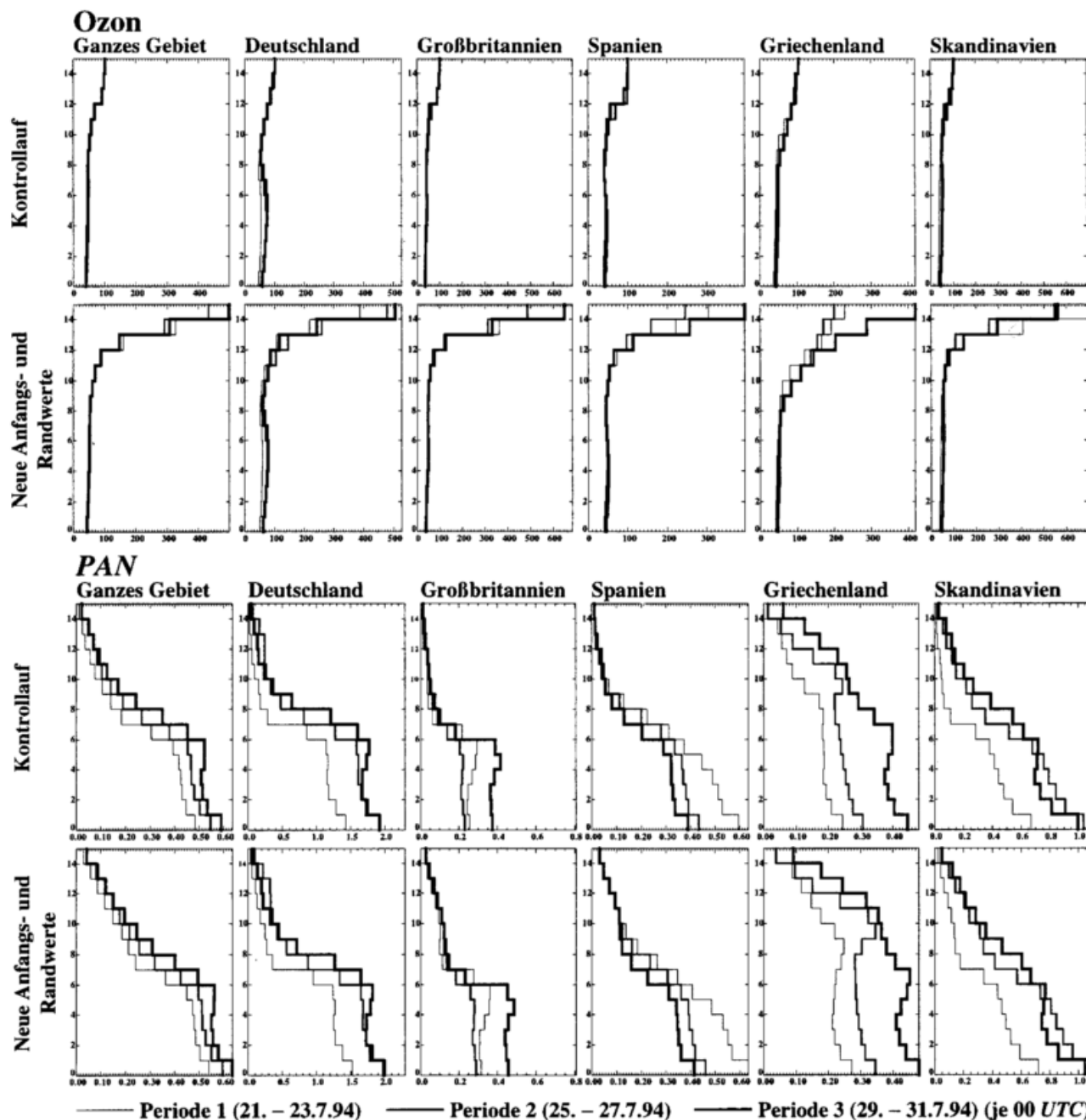


Abbildung 7.5: Ähnlich Abbildung 7.4 für Ozon und PAN; hier erfolgte die zeitliche Mittelung über jeweils zwei Tage; dünn: 21. - 23.07.94, mitteldick: 25. - 27.07.94 und dick: 29. - 31.07.94, jeweils 00 - 00 UTC; vertikal ist die Obergrenze der entsprechenden Modellschicht markiert.

von Ozon durch die (speziellen) Änderungen der übrigen klimatologischen Profile nur mäßig beeinflusst wird.

Für PAN gilt, daß sich die Unterschiede zwischen dem alten und neuen klimatologischen Profil nicht in den mittleren Profilen der beiden Modellläufe widerspiegeln. Zwar sind die Werte des Kontrolllaufes generell leicht niedriger, dies entspricht jedoch nicht dem Betrag der Differenz in den Standardprofilen. Dagegen weisen die modellierten Profile große zeitliche und räumliche Variationen auf. Ähnlich dem Ozon fallen die Teilgebiete „Deutschland“ und auch „Skandinavien“ auf. Hier durch relativ hohe Werte in der PBL, die den Charakter der Episode entsprechen.

Die Gebiete zeigen für beide Experimente Profile, die eher dem neuen Standardprofil gleichen als dem alten. Das mittlere Modellverhalten liegt näher an den Beobachtungen als das alte Ausgangsprofile, und die Anfangs- und Randwerte des *PAN* sind nicht von dominierendem Einfluß auf die *PAN*-Verteilung.

Zusammenfassend zeigt sich, daß mit dem neuen Verfahren das mittlere Modellverhalten näher an den Beobachtungen der Spurengase liegt als mit dem bisher üblichen Ansatz. Dieser Schluß folgt aus einer größeren Ähnlichkeit der mittleren modellierten Profile mit den als Anfangs- und Randwerte benutzten klimatologischen Daten, da diese weitestgehend aus der Literatur abgeleitet sind. Eine Verifizierung — bis auf die für Ozon gezeigten Beispiele — ist nicht möglich, so daß härtere Aussagen nicht begründbar sind. Zu beachten ist auch, daß die Standardprofile eher für Reinluftbedingungen repräsentativ sind. Mittlere Profile in stark belasteten Gebieten weichen besonders in der PBL stark davon ab. Eine zeitlich variable Umrechnung von den klimatologischen Standardprofilen zu den Anfangs- und Randwerten des CTMs ist also empfehlenswert, da es sowohl dem Modellverhalten als auch den Beobachtungen entgegenkommt. Für kleinere Integrationsgebiete sollten Randwerte aus einer Simulation mit größerem Gitter und größerem Modellgebiet gewonnen werden. Dies ist jedoch auf der hier betrachteten europaweiten Skala des groben Gitters nur mit einem globalen oder hemisphärischen Modell möglich. Das vorgestellte Verfahren stellt einen wirtschaftlichen Kompromiß dar, besonders, da auch die Anfangsdaten der globalen Modelle mit denselben Annahmen über die Klimatologie der Konzentrationsverteilungen bestimmt werden müssen. Von großer Wichtigkeit ist, ständig neueste Erkenntnisse über die mittleren Verteilungen der Spurengase in das Verfahren zur Bestimmung der Anfangs- und Randdaten zu integrieren.

### 7.3 Assimilation von Messungen des bodennahen Ozons

Nach den notwendigen Vorarbeiten kann nun die tatsächliche Assimilation von Meßwerten in das Modell diskutiert werden. Üblicherweise werden mit dem CTM 48-Stunden-Vorhersagen (jeweils von 00 – 00 UTC) gerechnet. Eine simulierte Episode setzt sich somit aus mehreren solcher Perioden zusammen. Die Vorhersage am Ende einer Periode dient als Anfangszustand für die folgende, da die Vorhersagen nach 48 Stunden näher an der tatsächlichen Verteilung der Schadstoffe liegen als die klimatologischen Daten eines Kaltstarts. Für die meisten Schadstoffe läßt sich dies nicht verifizieren, auf jeden Fall befindet sich das Modell aber in einem dem Modellklima näheren Zustand. Die einzige Möglichkeit, die Anfangsdaten einzelner Perioden mit aktuellen Messungen zu beeinflussen, bietet zur Zeit das vergleichsweise dichte Beobachtungsnetz für bodennahe Ozonkonzentrationen. Dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Assimilationsverfahren entwickelt, das auf den in Abschnitt 5.4 vorgestellten Analysen des Bodenozons aufbaut. Der gewählte Ansatz beruht auf denselben Verfahren, wie sie heutzutage die meisten Wettervorhersagezentren in ihren Assimilationszyklen verwenden. Die Analysen bilden eine Synthese aus Meß- und Modelldaten, sie weisen die chemische und physikalische Konsistenz der simulierten Verteilungen auf, liegen dabei aber näher an den tatsächlichen Beobachtungen. Aus diesen Eigenschaften resultiert die besondere Eignung der Analysen für die Datenassimilation zur Bereitstellung von Anfangsverteilungen für nachfolgende Modellsimulationen. Ein weiterer Vorteil ist nicht zuletzt der geringe Aufwand an Rechenrecourcen, der es erlaubt, die Methode routinemäßig auch bei beschränkten Computerkapazitäten einzusetzen. Im folgenden Unterabschnitt wird das Assimilationsverfahren vorgestellt. Danach werden die Resultate verschiedener Experimente zur Datenassimilation diskutiert.

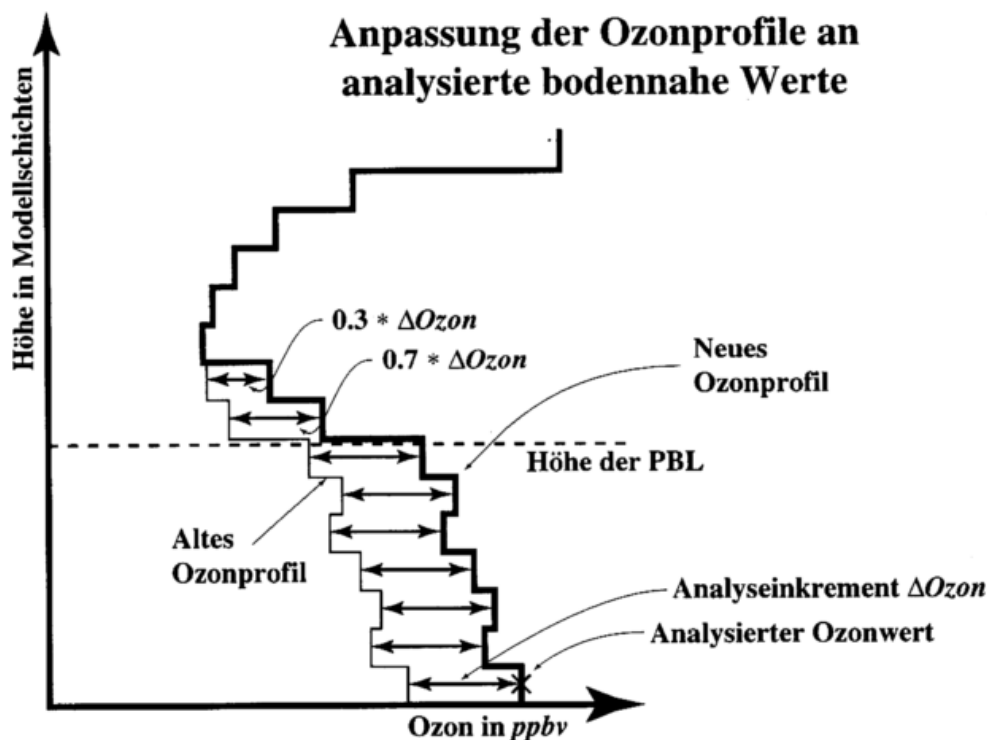


Abbildung 7.6: Schematische Darstellung der Assimilation von bodennahen Ozonwerten in der Vertikalen; Beschreibung siehe Text.

### 7.3.1 Beschreibung des Assimilationsverfahrens

Ausgegangen wird bei dem Verfahren von Analysen der bodennahen Ozonmischungsverhältnisse, die nach dem Ansatz aus Abschnitt 5.4 berechnet werden. Diese Informationen werden zuvor zusätzlich in vertikaler Richtung ausgewertet, da das Ozon eine atmosphärische Lebensdauer hat, die lang genug ist, damit die PBL bzgl. des Ozons gut durchmischt ist. Abbildung 7.6 zeigt schematisch, wie diese Interpolation vorgenommen wird. Die Höhe der PBL wird im CTM berechnet und steht der Assimilation zur Verfügung. Zu einem Assimilationszeitpunkt wird nun im ersten Schritt eine Analyse erstellt. Aktuelle Eingangsdaten für die Analyse sind die vorhergesagte Ozonverteilung, die Meßdaten der Stationen sowie die jeweiligen Indexwerte für das beobachtete und modellierte Regime. Die Analyse ersetzt die Ozonverteilung der untersten Modellschicht. Im zweiten Schritt werden die Analyseinkremente — die Differenzen zwischen analysiertem und vorhergesagtem Ozonwert (in Abbildung 7.6 mit  $\Delta\text{Ozon}$  bezeichnet) — berechnet. Die Ozonverteilungen der höheren Modellschichten innerhalb der PBL werden nicht durch die analysierten Bodenwerte ersetzt, sondern die Analyseinkremente werden zu den vorhergesagten Werten aufaddiert. Dies entspricht der Grundidee der OI, da dort die Analyseinkremente und nicht die absoluten Werte bestimmt werden. Die Verteilung des Ozons in Schichten oberhalb der PBL hängt weniger von den unteren Modellschichten ab als innerhalb der PBL, der horizontale Transport hat eine höhere Bedeutung. Frische Emissionen gelangen nur selten in diese Höhen, z. B. das  $\text{NO}_x$ -Mischungsverhältnis nimmt mit der Höhe bereits innerhalb der PBL stark ab. Die Analysen sind somit nur für die PBL repräsentativ. Um aber einen zu krassen Übergang in vertikaler Richtung zu vermeiden, wird auch, wie in Abbildung 7.6 angedeutet, zu den ersten zwei Schichten oberhalb der PBL das 0.7- bzw. 0.3-fache des Analyseinkrementes addiert. Die Form der Vertikalprofile ändert sich somit nur gering, der Bereich innerhalb der Grenzschicht wird verschoben, und der Übergang zur freien Troposphäre geschieht fließend.

## Übersicht über die Assimilationsexperimente

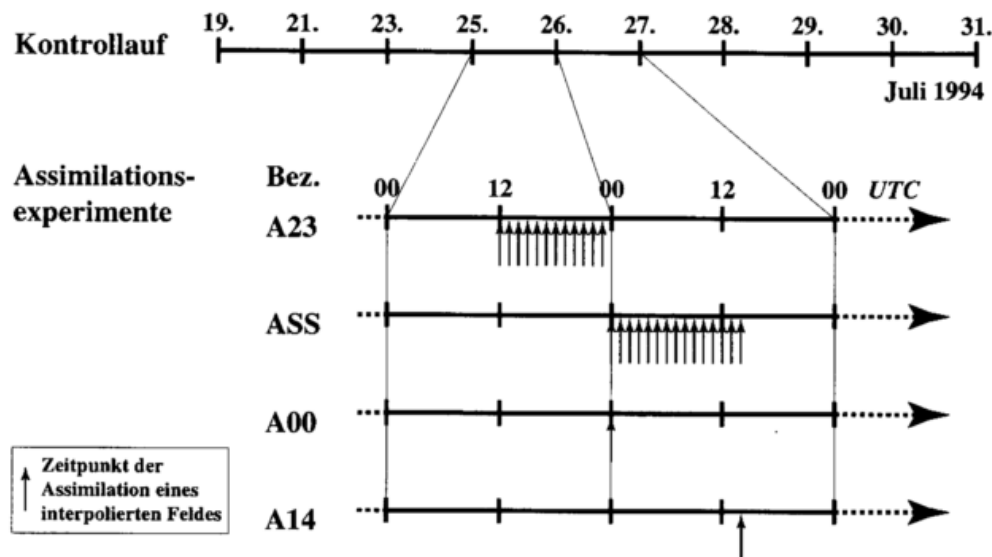


Abbildung 7.7: Schematische Übersicht über die Modellexperimente zum Einfluß der Assimilation der objektiv analysierten Ozonverteilungen.

Die Überlegung, zu welchem Zeitpunkt die Assimilation erfolgen sollte, verdient einige Beachtung. Die Ergebnisse aus Abschnitt 5.4 zeigen, daß der Einfluß der Meßdaten auf die Analysen nachts anders ist als tagsüber, wenn die Konzentrationen ihr Maximum erreichen. Die Stadt-Land-Unterschiede werden nachts besonders deutlich, wenn in den verschmutzten Gebieten die Ozonwerte sehr niedrig sind. Diese Unterschiede könnten durch die Analyse besser als vom Modell wiedergegeben werden. Andererseits erreicht zu Zeiten der Tageshöchstwerte des Ozons auch i. allg. die PBL ihre größte vertikale Ausdehnung. Das heißt, daß von der Assimilation zu diesen Tageszeiten ein höherer Einfluß zu erwarten ist als nachts, da in einer größeren Anzahl von Modellschichten die Ozonwerte modifiziert werden. Eine weitere zu untersuchende Frage ist, ob die Assimilation nur zu einem Zeitpunkt oder periodisch in einem Zeitfenster vorgenommen werden sollte. Da sich das  $NO_x$  und das Ozon in einem quasistationären Gleichgewicht befinden (siehe Reaktionen R2.1 – R2.3), ist es möglich, daß sich bei einer einmaligen Änderung der Ozonkonzentrationen dieser Einfluß schnell über das  $NO_x$  abschwächt. Eine periodische Assimilation über mehrere Stunden hinweg, wie sie in der Meteorologie üblich ist, könnte die Ozonverteilung nachhaltiger beeinflussen. In der Meteorologie ist es darüberhinaus notwendig, die resultierenden Felder zu filtern, um die in den Analysen enthaltenen Informationen bestimmter störender Wellenlängen zu beseitigen. Analog stellt sich für das CTM die Frage, inwieweit das Modellgleichgewicht durch die Assimilation gestört wird. Allgemein gesehen ist es aufgrund der Nichtlinearität der chemischen Zusammenhänge möglich, daß durch von außen in das System eingebrachte Störungen unphysikalische („unchemische“) numerische Instabilitäten erzeugt werden. Da das Ozon aber chemisch recht „gutmütig“ ist, eine relativ lange Lebensdauer besitzt, und die Änderungen durch die Analysen moderat sind, ist ein solches Verhalten nicht zu erwarten. In der Diskussion wird darauf weiter eingegangen.

Abbildung 7.7 gibt eine Übersicht der zur Untersuchung dieser Fragen durchgeführten Experimente mit dem CTM. Um den Einfluß der klimatologischen Anfangsdaten zu minimieren, starten alle vier Experimente erst am 25. Juli auf einem Kaltstart des Modelles am 19. aufsetzend. Die Experimente wurden auf dem Nest 1-Gitter durchgeführt, um einerseits auch den Einfluß der aus den Standardprofilen abgeleiteten Randwerte — hier kommen sie aus dem groben Git-

ter — zu minimieren. Andererseits kann so die hohe Stationsdichte auf diesem Gebiet genutzt werden. In Abbildung 7.7 zeigen die vertikalen Pfeile an, zu welchen Stunden eine Assimilation mit Ozonmessungen stattfindet. In Experiment A00 bzw. A14 ist das jeweils nur ein Termin, der 26. Juli 00 UTC bzw. 14 UTC. In den Experimenten A23 und ASS wird während eines Zeitfensters (25. Juli 12 UTC – 23 UTC sowie 26. Juli 00 UTC – 14 UTC) stündlich assimiliert. Die Zeitfenster wurden so gelegt, um die Tageszeiten der größten Variationen im Ozontagesgang zu erfassen.

### 7.3.2 Auswertung der Assimilationsexperimente

Bevor die Experimente durch einen Vergleich mit Meßdaten diskutiert werden, erfolgt eine Untersuchung der Reaktion des chemischen Systems auf die Störung durch die eingebrachten Analysen. Dazu wurden für den Kontrolllauf und die Assimilationsexperimente für verschiedene Spezies (Ozon,  $NO$ ,  $NO_2$ ,  $OH$  und einige  $VOCs$ ) die Tendenzen der horizontalen und vertikalen Advektion, der vertikalen Diffusion (eine horizontale Diffusion wird nicht berechnet) und der Quellen und Senken betrachtet. In den Quellen und Senken sind chemische Produktion und Verlust, Emissionen und Deposition zusammengefaßt. Es interessieren hierbei nur die Zeitspannen, in denen die Assimilation stattfindet, da sich danach ein neues chemisches Gleichgewicht einstellt. Dieses muß anhand von Messungen verifiziert werden (s. u.). Im Folgenden wird das Modellverhalten an zwei Gitterpunkten in Nordrhein-Westfalen diskutiert. Ausgewählt wurde der Punkt (15, 33) mit städtischem und der Punkt (18, 30) mit ländlichem Charakter, die beide stark von der Assimilation beeinflusst werden (siehe für die simulierten Zeitreihen auch Abbildung 3.1). Die Effekte in den Tendenzen treten am deutlichsten für das Experiment ASS hervor, deshalb soll sich darauf beschränkt werden. Das  $OH$ , das im CTM diagnostiziert wird (weshalb es nur Tendenzen der chemischen Reaktionen gibt), ist ein Indikator für die Reaktivität des chemischen Systems und deshalb besonders geeignet, um Störungen anzuzeigen. Die Auswertungen zeigen jedoch keine nennenswerten Reaktionen der Konzentrationen und der chemischen Tendenzen des  $OHs$  auf die Assimilation. Auch die  $VOCs$  zeigen keine kurzfristigen Änderungen in den Tendenzen. Die deutlichsten Effekte ergeben sich für das Ozon selbst und das  $NO_x$ , letzteres auch nur für den städtischen Gitterpunkt, da am ländlichen Gitterpunkt die entsprechenden Emissionen und auch die Konzentrationen zu niedrig sind. Es wird nun also auf die Reaktion des Ozons an beiden Gitterpunkten (Abbildung 7.8) und des  $NO_x$  am städtischen Gitterpunkt (Abbildung 7.9) eingegangen. Beide Abbildungen zeigen jeweils die Mischungsverhältnisse und Tendenzen als Zeitreihen für den 26. Juli 1994. Die zeitliche Auflösung beträgt 600 s entsprechend dem Transportzeitschritt in der Simulation. Beim Experiment ASS wurde von 00 – 14 UTC jeweils zur vollen Stunde eine Analyse in das Modell eingebracht.

Für den ländlichen Gitterpunkt (Abbildung 7.8 rechts) ist zu beobachten, daß, obwohl besonders nachts die Ozonwerte durch die Assimilation um über 20 ppbv angehoben werden, die Tendenzen kaum darauf reagieren. Charakteristisch für ländliche Regime sind die hohen nächtlichen Konzentrationen, da das Ozon nachts nicht abgebaut wird. Die chemischen Quellen und Senken spielen keine große Rolle, da die  $NO$ -Werte niedrig sind. Die vertikale Diffusion ist auch tagsüber niedrig. Eine gute Durchmischung bleibt in der Nacht erhalten, da die Quellen und Senken am Boden gering sind. Es dominieren weitgehend die horizontale und vertikale Advektion, und diese zeigen für das Assimilationsexperiment keine kurzzeitigen Fluktuationen, der Verlauf ähnelt dem des Kontrollexperimentes.

Für die Ozonwerte am städtischen Gitterpunkt (Abbildung 7.8 links) spielt die Advektion eine ähnlich Rolle wie für den ländlichen. Die vertikale Diffusion stellt hingegen eine wichtige Quelle

### Mischungsverhältnisse und Tendenzen des modellierten bodennahen Ozons für den 26. Juli 1994

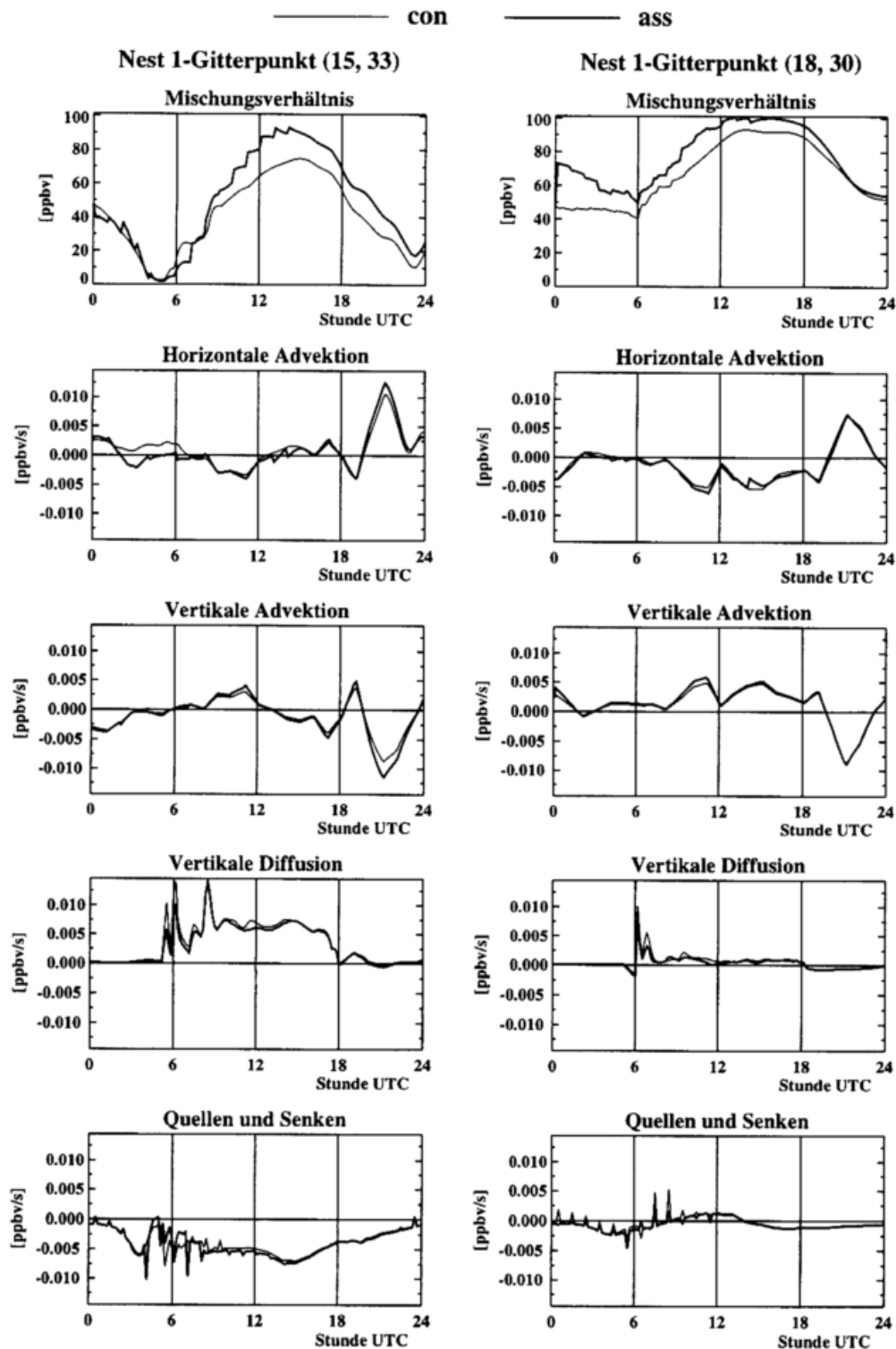


Abbildung 7.8: Modellerte Mischungsverhältnisse und Tendenzen verschiedener simulierter Prozesse für das bodennahe Ozon an einem „städtischen“ Gitterpunkt (links) und einem ländlichen (rechts) für den 26. Juli 1994; gezeigt sind der Verlauf des Kontrollexperimentes CON (dünn) und des Assimilationslaufes ASS (dick), bei dem von 00 – 14 UTC stündlich die Ozonanalysen in die Simulation eingebracht wurden.

### Mischungsverhältnisse und Tendenzen des modellierten bodennahen $NO$ und $NO_2$ für den 26. Juli 1994, Nest 1-Gitterpunkt (15, 33)

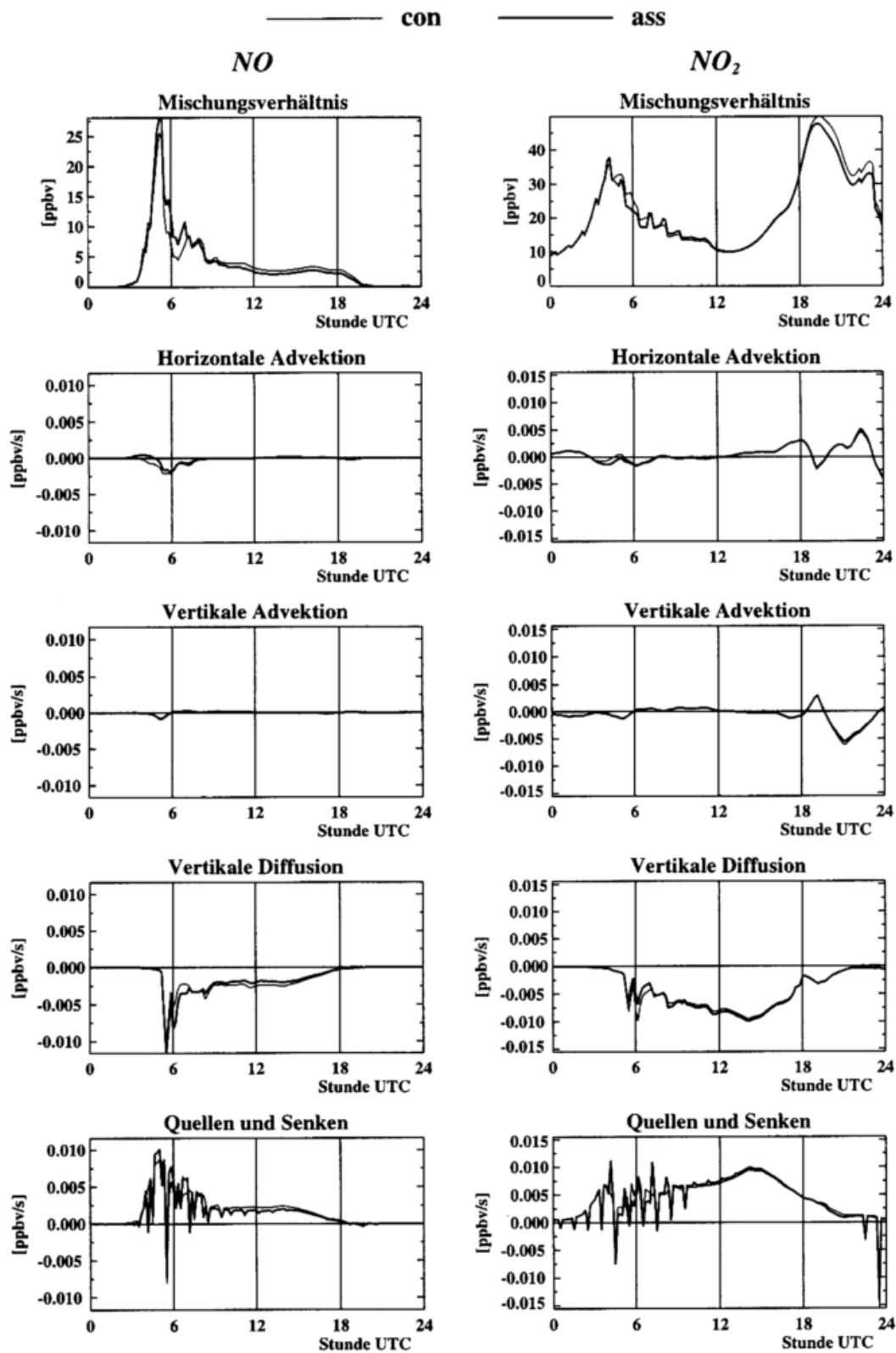


Abbildung 7.9: Wie Abbildung 7.8 für  $NO$  (links) und  $NO_2$  (rechts) am verschmutzten Gitterpunkt (15, 33).

zwischen ca. 05 und 17 UTC dar. In den frühen Morgenstunden gibt es einige Fluktuationen in der vertikalen Diffusion, die für den Assimilationslauf ausgeprägter sind als für den Kontrolllauf, dort aber auch deutlich hervortreten. Der Grund dafür liegt im verstärkten chemischen Abbau in der untersten Modellschicht. Dieser erhöht die vertikalen Konzentrationsunterschiede und damit den turbulenten Austausch. Bedingt ist er durch die in diesen Stunden besonders hohen  $NO$ -Emissionen des Straßenverkehrs. Daß es sich bei diesem Gitterpunkt um einen städtischen handelt, zeigen ebenfalls die  $NO$ - und  $NO_2$ -Mischungsverhältnisse in Abbildung 7.9. Es sei dabei auf die Ähnlichkeit der beiden Kurven mit den Formen der entsprechenden ersten Eigenvektoren in den Abbildungen 4.5 und 4.6 hingewiesen. Typisch sind auch die Verläufe der Zeitreihen der Tendenzen des  $NO_x$ . Da das meiste  $NO$  chemisch sehr schnell umgesetzt wird, spielt die Advektion eine untergeordnete Rolle. Die vertikale Diffusion ist aber am frühen morgen zu Zeiten des Tagesmaximums eine wichtige Senke. Für das  $NO_2$  ist sie allerdings über den ganzen Tag hinweg die wichtigste Senke. Die Chemie und die Emissionen sind für das  $NO$  am frühen morgen die bestimmenden Prozesse. Für das  $NO_2$  sind die Emissionen von geringerer Bedeutung (nur 10% des  $NO_x$  werden im Modell als  $NO_2$  emittiert). Die Chemie ist sehr eng an die des Ozons gekoppelt, nur das Vorzeichen der Tendenzen ist umgekehrt. Entsprechend ist auch der Verlauf des Tagesganges quasi gespiegelt. Während des Assimilationszeitraumes 00 – 14 UTC ist der größte Einfluß im Vergleich zum Kontrolllauf am frühen Morgen zu beobachten, da er über das  $NO$  auch auf das  $NO_2$  übergeht. An der Kurve für das Mischungsverhältnis des Ozons ist zu sehen, daß die durch die vor 04 UTC erhöhten assimilierten Werte horizontal advehiert werden. Interessant ist die Reaktion auf die geringfügig erhöhten Ozonwerte für das Experiment ASS um 04 UTC. Dieser Zeitpunkt fällt mit dem Einsetzen der  $NO$ -Emissionen zusammen. Für das  $NO$  kompensiert dabei kurzfristig der chemische Abbau die Quelle durch die Emissionen. Dies bewirkt sofort eine Spitze im chemischen Abbau des Ozons und in der chemischen Produktion von  $NO_2$ , die im Kontrolllauf fehlen. Die zwischen 05 und 07 UTC durch die Assimilation abgesenkten Werte haben einen geringen Effekt auf die vertikale Diffusion, die chemische Umsetzung und die Deposition. Es wird weniger Ozon in  $NO_2$  umgesetzt, folglich steigen die  $NO$ -Werte leicht an und das  $NO_2$  sinkt im Vergleich zum Kontrolllauf etwas ab. Für die Betrachtung der Störungen des Systems durch die Assimilation geht hieraus klar hervor, daß sich die Reaktionen des Systems auf eine schnelle, moderate Justierung des  $NO_x$ /Ozon-Gleichgewichtes beschränkt. Dies ist darauf zurückzuführen, daß bei der Assimilation die Vergleichbarkeit der chemischen Regime der verschiedenen Daten gewährleistet werden kann. Es zeigen sich keine Anzeichen für eine instabile Reaktion des Systems, so daß die Schlußfolgerung daraus gezogen werden kann, daß die entwickelte Methode der Assimilation angemessen ist. Es sind keine weiteren Anstrengungen zu Initialisierung im Rahmen der Assimilation erforderlich. Der Verlauf der Tendenzen der verschiedenen Prozesse zeigt nur geringe Veränderungen im Vergleich zu den Änderungen der Mischungsverhältnisse des Ozons.

Die weitere Beurteilung der Assimilationsläufe erfolgt über die Verifizierung der jeweiligen Prognosen. Es stellt sich die Frage, wie lange und in welchem Ausmaß die Assimilation die Vorhersage der bodennahen Ozonverteilung beeinflusst. Das geeignetste Mittel, sich einen Überblick zu verschaffen, sind die Zeitreihen der Differenzenstatistiken in Abhängigkeit vom Stationstyp analog zu den Abbildungen 7.1 und 7.3. Die Ergebnisse der Läufe für den *Bias* und den *RMS* (siehe zur Definition der Maßzahlen die Gleichungen 5.20 und 5.21 und zur Interpretation der Größen die Abschnitte 5.4.3 sowie 6.2) zeigen die Abbildungen 7.10 sowie 7.11 für die Stationstypen Verkehr (v), flächenbezogen (f) und Hintergrund/Berg (b). Eine Abschätzung, wie sehr die Prognose durch die Assimilation überhaupt beeinflusst werden kann, ermöglicht der Vergleich der Ergebnisse des Kontrolllaufes CON mit denen der Analysenzeitreihen ANA, die ebenfalls mit in die Abbildungen aufgenommen wurden. Es sei noch einmal daran erinnert,

**Verifikation der Assimilationsläufe,  
25. – 30. Juli 1994, Nest1-Gitter  
Bias [ppbv]**

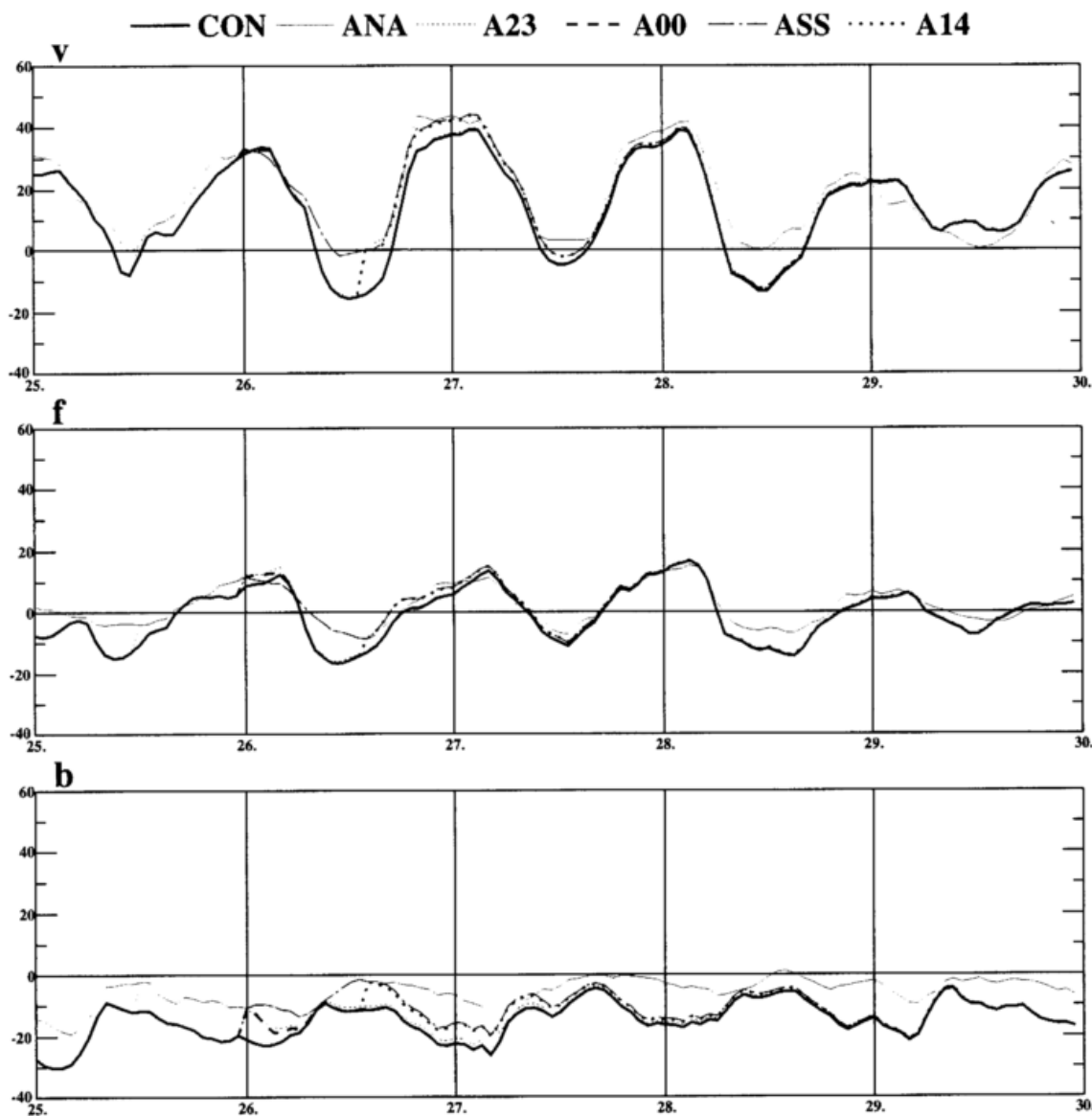


Abbildung 7.10: Vergleich der Zeitreihen des räumlichen *Bias* in *ppbv* zwischen dem Kontrolllauf CON, den Analysen ANA und den Assimilationsexperimenten A23, A00, ASS und A14 für die Stationstypen Verkehr (oben), Fläche (Mitte) sowie Berg (unten).

daß dieselben Stationen, deren Messungen die Grundlage der Analysen darstellen, auch für die Verifikation herangezogen werden und daß hier noch keine Vorauswahl der Stationen getroffen wurde. Ähnlich wie in Abschnitt 5.4 diskutiert, sind die Statistiken für die Analysen der einzelnen Stationstypen sehr unterschiedlich. Für die Bergstationen sind die Beträge des *RMS* und *Bias* für die Analysen deutlich geringer. Dagegen gibt es für die Verkehrsstationen eine tageszeitliche Abhängigkeit. Während am Tage die Analysen bessere Ergebnisse als der Kontrolllauf liefern, ist es nachts bisweilen umgekehrt. Der Grund dafür ist, daß durch die eher flächenbezogenen und ländlichen Regime an den Gitterpunkten nur relativ wenige Verkehrsstationen in die Analyse Eingang finden und die repräsentativeren Tageshöchstwerte auch durch andere Stati-

**Verifikation der Assimilationsläufe,  
25. – 30. Juli 1994, Nest1-Gitter  
RMS [ppbv]**

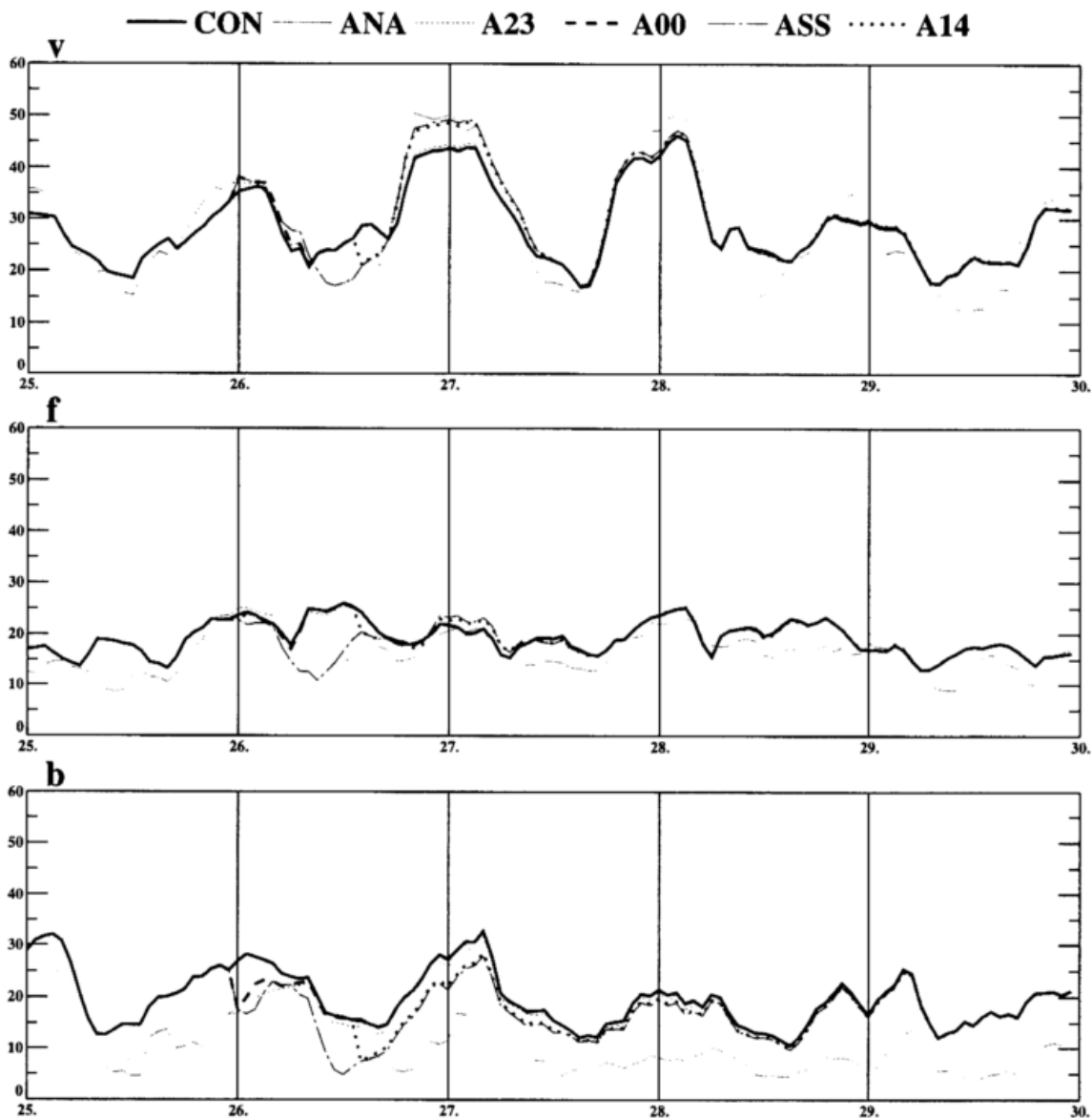


Abbildung 7.11: Wie Abbildung 7.10 für den räumlichen *RMS*.

onstypen der Analyse aufgeprägt werden. Die Statistiken der flächenbezogenen Stationen liegen im Trend zwischen den Verkehrs- und Bergstationen. Meist liegt der Kontrolllauf schlechter als die Analysen.

Die Ergebnisse der Assimilationsläufe fallen bis auf wenige Ausnahmen zwischen die Kurven CON und ANA. Es sind folgende Trends festzustellen:

- alle Assimilationsexperimente zeigen beim Vergleich mit Messungen im Mittel Verbesserungen der nachfolgenden Prognose, die aber unterschiedlich groß sind;
- eine Assimilation zur Zeit des Tagesmaximums hat den größten positiven Effekt (Experimente ASS und A14; A23 weniger, die Assimilation während der nachfolgenden Nachtstunden

wirkt diesem positiven Effekt entgegen);

- eine geringere Verbesserung der Prognose wird auch durch die periodische Assimilation erzielt (A23 im Vergleich zu A00 sowie ASS zu A14);
- nach der Assimilation ist der Verlauf der Zeitreihen dem des Kontrolllaufes ähnlicher als der Zeitreihe für die Analysen.

Zu den Experimenten im einzelnen. Der Einfluß von Experiment A00 (einmalige Assimilation um 00 UTC) verschwindet bereits nach weniger als zwölf Stunden. Für Experiment A23 (periodische Assimilation von 12 – 23 UTC) gilt das gleiche für die flächenbezogenen Stationen, es wird keine Verbesserung der nachfolgenden Prognose erreicht. Bei den Verkehrsstationen ist — während die Tageswerte nahezu unbeeinflusst bleiben — in der auf die Assimilation folgenden Nacht vom 26. auf den 27. eine leichte Verschlechterung der Prognose zu beobachten. Experiment A23 liefert für die Bergstationen eine beständige, wenn auch im Vergleich zu ASS und A14 geringe Verbesserung, die über mehr als 60 Stunden bis zum Mittag des 28. zu beobachten ist. Der Grund dafür liegt darin, daß in der Nacht in verschmutzten Gebieten das Ozon schnell durch frisch emittiertes  $NO$  zu  $NO_2$  umgewandelt wird, während sich das durch die Analyse eingebrachte Ozon in den ländlichen Gebieten länger halten kann.

Auch nach über zweieinhalb Tagen ist noch ein Einfluß der Assimilation für Experiment ASS (periodische Assimilation von 00 – 14 UTC) festzustellen. Eine signifikante Verbesserung besonders des *Bias* ist nach 24 Stunden Vorhersage tagsüber für alle Stationstypen zu beobachten. Nachts wird allerdings für *Bias* und *RMS* eine Verschlechterung für die belasteten Stationen (Verkehr und flächenbezogen) bewirkt. Die Ursache dafür liegt darin begründet, daß die höheren, tagsüber dem Modell aufgeprägten Werte durch das eher flächenbezogene Modellklima nachts nicht soweit abgebaut werden, wie es bei den Verkehrsstationen der Fall ist. Der Einfluß auf die Bergstationen ist dagegen für beide Maßzahlen immer positiv und nimmt mit der Zeit gleichmäßig ab. Experiment A14 (einmalige Assimilation um 14 UTC) zeigt das gleiche Verhalten wie Experiment ASS. Der Einfluß ist nur leicht geringer, so daß die Aussagen zu ASS übertragbar sind.

Am Beispiel des 27. Juli 14 UTC listet Tabelle 7.1 noch einmal explizit die Ergebnisse aller Experimente für den *RMS* und den *Bias* auf. Der Termin steht für den Zeitpunkt der Tageshöchstwerte am Tag nach dem Start der Simulationen mit Datenassimilation. Es ist also der Zeitpunkt, der für die Prognose am interessantesten ist und zu dem sich die Vorhersagegüte messen lassen muß. Neben den in diesem Abschnitt besprochenen Assimilationsläufen sind auch Simulationen aus den vorangegangenen Abschnitten mitaufgenommen (allerdings ist die Meßdatengrundlage etwas anders, da das grobe Gitter betrachtet wurde). Dies sind der Kontrolllauf auf dem groben Gitter CC0, das Experiment mit dem späteren Start des Vorlaufes CB1 (siehe Abschnitt 7.1), das Experiment mit dem neuen Verfahren zur Bestimmung der Anfangs- und Randwerte aus klimatologischen Daten IBT (siehe Abschnitt 7.2) sowie die Persistenzvorhersage PER (siehe Abschnitt 6.2). Da dies nur eine Auswertung zu einem Zeitpunkt ist, empfiehlt sich für eine Verallgemeinerung der Trends der Vergleich mit den Zeitreihen der statistischen Maße aus den Abbildungen 6.7 (CC0, PER), 7.1 (CB1), 7.3 (IBT) sowie 7.10 und 7.11 (Assimilationsläufe, CON, ANA).

Das mit Abstand beste Ergebnis erzielt die Analyse ANA, das deutlich schlechteste das Experiment mit dem späteren Startzeitpunkt CB1. Diese beiden stecken den Einfluß der Meßdaten auf die Gitterpunktsfelder ab. Die Assimilationsexperimente ASS und A23 liegen auch nach einem Tag besser als der Kontrolllauf, was sich insbesondere für den *Bias* bei allen Stationstypen und für den *RMS* auf die flächenbezogenen und die Reinluftstationen auswirkt. Der *RMS* zeigt im Vergleich zum *Bias* zwischen den Simulationen eine geringere Variabilität, da besonders unre-

Tabelle 7.1: Räumlich berechneter *RMS* und *Bias* für den 27. Juli 1994 14 UTC aus verschiedenen Experimenten (siehe Text).

Experiment:	CON	ANA	ASS	A00	A14	A23	CC0	CB1	IBT	PER
Stationstyp	<i>RMS [ppbv] (27. Juni 1994 14 UTC)</i>									
v	19.23	16.31	19.28	19.21	19.22	19.26	20.97	26.43	21.62	20.04
s	15.07	13.47	15.82	15.06	15.69	15.04	15.13	18.45	15.85	16.60
f	17.67	13.39	17.19	17.66	17.15	17.54	13.99	19.82	13.94	19.32
w	14.22	7.89	13.26	14.17	13.42	13.91	14.71	16.64	15.18	13.01
b	13.52	5.67	12.52	13.47	12.63	12.83	17.58	19.15	17.43	5.32
alle	17.37	14.12	17.34	17.35	17.29	17.31	17.60	22.16	18.10	18.05
	<i>Bias [ppbv] (27. Juni 1994 14 UTC)</i>									
v	-3.53	3.30	-1.32	-3.49	-1.34	-3.18	0.82	-14.90	3.28	-1.61
s	-2.72	0.73	-1.34	-2.69	-1.26	-2.41	3.20	-10.84	5.47	-1.97
f	-8.44	-4.46	-7.45	-8.44	-7.37	-8.26	-1.82	-13.95	0.48	0.08
w	-5.34	0.01	-3.30	-5.31	-3.47	-4.91	1.55	-9.90	4.04	-1.63
b	-7.40	-1.36	-5.54	-7.35	-5.70	-6.77	-1.86	-9.68	2.30	-0.09
alle	-4.56	0.82	-2.77	-4.53	-2.77	-4.23	0.82	-12.99	3.26	-1.30

präsentative Stationen mit extremen Abweichungen durch die quadratische Wichtung stärker ins Gewicht fallen als beim *Bias*. Dies zeigt sich — sogar bei der Persistenzvorhersage — bei den Stationen mit überwiegend städtischen Regimen. Wie schon zuvor erwähnt, liefern auch in diesem Einzelbeispiel die Experimente A00 und A14 sowie ASS und A23 jeweils ähnliche Ergebnisse. Eine Assimilation zu Zeiten des Tagesmaximums — bzw. das Ende des Assimilationszeitfensters am Nachmittag — bewirkt einen größeren positiven Effekt als zu Zeiten der Tagesminima, bei Abwesenheit einer mächtigen durchmischten Grenzschicht.

Als ein Beispiel für die räumliche Entwicklung zeigt Abbildung C.8 Ozonmischungsverhältnisse der bodennächsten Schicht für das Assimilationsexperiment ASS (oben) sowie die Differenzen zum Kontrolllauf CON (unten). Dargestellt sind die Termine 26. Juli 18 UTC, 27. Juli 00, 06 sowie 12 UTC, also Prognosen von 4, 10, 16 und 22 Stunden nach dem Assimilationszeitraum (siehe zum Vergleich auch die entsprechenden Abbildungen C.3 und C.5 für den Assimilationstermin 26. Juli 14 UTC). Die zeitliche Abschwächung des Einflusses der geänderten Startwerte zeigt sich bereits in den unterschiedlichen dargestellten Wertebereichen für die Differenzen.

Über Deutschland erreichte der Sommersmog in diesem Zeitraum einen Höhepunkt (siehe Unterabschnitt 3.2.2). Während der Norden des Gebietes von einer schwachen Konvergenzlinie überquert wurde, war es im übrigen Gebiet windschwach. Demzufolge bleiben die Differenzen zwischen den beiden Läufen im unteren Teil des Modellgebietes relativ ortsfest. Dort behalten sie auch ihr Vorzeichen. Im nördlichen Gebiet werden die Differenzen mit den Ozonfahnen transportiert und lassen sich während der Vorhersage nachverfolgen. Insbesondere im Bereich von Berlin wechseln die Differenzen zwischen den beiden Simulationen transportbedingt das Vorzeichen. Zu Beginn der Prognose bewirkt die Assimilation höhere Konzentrationen über Berlin,

während die Ozonwerte später niedriger als im Kontrolllauf sind. Ein weiteres Phänomen ist eine persistente Dipolstruktur in den Differenzen zwischen Assimilationslauf und Kontrolllauf über der Küste der Niederlande, die in der Analyse vom 26. Juli 14 UTC (siehe Abbildung C.5, dort ist das Vorzeichen der Werteskala umgekehrt) in dieser Stärke nicht beobachtet wurde. Sie ist bereits vier Stunden nach der Assimilation sehr ausgeprägt und während des nächsten Tages auf dem Weg nach Nordosten zu beobachten.

Die Abbildung zeigt, daß bei den windschwachen Hochdrucklagen der Effekt der Assimilation auch nach einem Tag lokal in einer Größenordnung von ca. 5% der Ozonwerte liegt. Die Differenzen werden transportiert und dabei relativ gleichmäßig abgebaut. Sie behalten innerhalb der einzelnen Luftmassen in der Regel ihr Vorzeichen bei. Das heißt, bei der betrachteten Modellkonfiguration mit flächenbezogenem bis ländlichem Charakter reagiert das System überwiegend linear auf den Eingriff durch die Assimilation, hauptsächlich wird das Ozonniveau beeinflusst. Dafür sprechen auch die Ergebnisse der Untersuchungen der Tendenzen des Ozons und der Zeitreihen der Differenzenstatistiken. Bei einem differenzierteren Modellklima — also variablerem, gebietsabhängigeren Modellverhalten durch höhere räumliche Auflösung des Gitters oder der Emissionsdaten — kann das anders sein. Zum Beispiel kann innerhalb des Gebietes die Spanne der Kohlenwasserstoff/Stickoxid-Verhältnisse größer sein, so daß die Reaktionen des Chemiemechanismus auf Variationen der Anfangsdaten in vergleichbarer Größe sehr unterschiedlich sein können. Die hier durchgeführten Versuche und Untersuchungen zeigen, daß das Modell stabil auf die externe Beeinflussung der Ozonwerte reagiert. Diese Einflüsse können schnell über weite Strecken transportiert werden. Eine Modellierung und Assimilation auf einem entsprechend großen Gebiet ist also eine Voraussetzung für 24 Stunden-Prognosen, auch wenn das interessierende Gebiet wesentlich kleiner als das hier betrachtete ist. Von ebenso großer Bedeutung ist ein dichtes, flächendeckendes Beobachtungsnetz, insbesondere um die Strukturen der Ozonverteilung auflösen zu können. Es konnte gezeigt werden, daß die in dieser Arbeit vorgestellten Analyse- und Assimilationsverfahren eine Verbesserung der Kurzfristprognosen erreichen und physikalisch und chemisch sinnvolle Ergebnisse produzieren.

## 7.4 Diskussion des Anfangswertproblems

In diesem Kapitel wurde gezeigt, daß die chemischen Anfangs- und Randwerte von großer Bedeutung für die Güte der CTM-Simulationen sind. Trotz der gegenwärtig allgemein dünnen Abdeckung durch Meßdaten, können die Modellergebnisse mit geeigneten Methoden durch Beobachtungen signifikant verbessert werden.

Die Anfangsdaten des Initialisierungsvorlaufes haben einen Einfluß auf das Modellverhalten, der weit über die 48 Stunden des Vorlaufes hinausgeht, und die Randwerte bestimmen deutlich das Modellklima mit. Dabei ist der Einfluß klimatologischer Daten zur Bestimmung der Rand- und Anfangsdaten für die Vorhersagen für verschiedene Stationstypen unterschiedlich. Dies ist zum Teil darauf zurückzuführen, daß das Modell größtenteils ein Verhalten aufweist, das einem flächenbezogenen bis ländlichen Regime entspricht, also die größere Spannbreite der Regime der Meßstationen nicht wiedergibt. Der Einfluß der klimatologischen Eingangsdaten ist in der freien Troposphäre und darüber aufgrund des stärkeren horizontalen Transportes und der schwächeren photochemischen Aktivität größer als in der PBL, läßt sich aber nur eingeschränkt validieren.

Eine Datenassimilation mit aktuellen Beobachtungen ist mit dem hier vorgestellten Verfahren für das bodennahe Ozon sinnvoll. Diese ist eine Voraussetzung für eine operationelle Ozonprognose mit einem CTM. Das Verfahren der Assimilation mittels objektiver Analysen erreicht eine

deutliche Verbesserung der Kurzfristprognosen der bodennahen Ozonverteilung mit einem geringen Aufwand an Rechenkapazitäten. Für die Vorhersagegüte ist es wichtig, daß der Kaltstart des Modelles mehrere Tage (mindestens 4 – 6 Tage) zurückliegt. Den größten Effekt zeigt die periodische Assimilation mit einem Assimilationszeitraum, der dann endet — also die tatsächliche Prognose startet —, wenn die Konzentrationen ihr Tagesmaximum erreichen. Die besten Ergebnisse erzielt die Assimilation entsprechend dem mittleren Modellverhalten für flächenbezogene und Reinluftstationen. Kurzfristig äußert sich der Effekt der Assimilation der Ozonmischungsverhältnisse hauptsächlich in einer Verschiebung des Ozonniveaus. Der Effekt auf die Tendenzen der einzelnen Prozesse ist kleiner, so daß die Form der simulierten Verläufe eine geringere Änderung zeigt. Die Änderungen der absoluten Werte sind zeitlich relativ beständig, das Ozon ist also eine für die Datenassimilation gut geeignete Größe.

## Kapitel 8

# Schlußfolgerungen

Das Ziel dieser Arbeit war die Entwicklung von Verfahren der Assimilation aktueller Meßdaten atmosphärischer Spurenstoffe zur Verbesserung der Vorhersagegüte von Chemie-Transportmodellen. Zuerst war festzustellen, welche Daten zur Verfügung stehen und welche Eigenschaften und Fehlerquellen diese aufweisen. Im nächsten Schritt wurde die Vergleichbarkeit der Messungen mit den vom Modell simulierten Werten untersucht. Es wurde eine Methode entwickelt, den Belastungszustand der Luft anhand von Tagesgängen der Ozonmischungsverhältnisse quantitativ zu charakterisieren. Damit war es möglich, ein Analyseverfahren für die bodennahe Ozonverteilung zu formulieren, das simulierte und gemessene Daten unter Berücksichtigung der Meß- und Modellfehler sowie der Vergleichbarkeit der Daten zusammenbringt. Auf dieser Grundlage aufbauend waren nun neue Ansätze zur Bestimmung der Anfangswerte (und Randdaten) möglich. Es wurde ein Algorithmus vorgestellt, der klimatologisch aussagefähige Daten aus der Literatur mit aktuell bestimmten meteorologischen Parametern verbindet und daraus einen Anfangszustand für einen „Kaltstart“ des CTMs bestimmt. Schließlich wurde ein Datenassimilationsverfahren entwickelt, das Analysen der bodennahen Ozonverteilung periodisch in das Modell assimiliert. Die Änderungen und Sensitivitäten in bezug auf die Modellvorhersagen wurden untersucht und, soweit möglich, mit Beobachtungen verglichen. Die Verbesserungen der Prognosen — insbesondere von 24-Stunden-Kurzfristvorhersagen — wurden diskutiert. Es folgen die wichtigsten Ergebnisse im einzelnen.

### Verfügbarkeit der Daten

Es ist zu unterscheiden zwischen zeitkritisch zur Verfügung stehenden Daten und Daten aus der Literatur. Von den aktuellen Daten sind allein Ozonmessungen nützlich: Beobachtungen der bodennahen Konzentrationen zur Verifikation sowie zur Datenassimilation, Vertikalprofile zur Zeit nur für die Verifikation. Die übrigen Daten (*NO*, *NO<sub>2</sub>*, *CO*, *SO<sub>2</sub>*, etc.) sind aus verschiedenen Gründen nicht geeignet. Oft ist die Qualität nicht ausreichend oder die Menge an aufkommenden Daten zu gering, oder die Messungen weisen eine zu geringe Repräsentativität auf. Informationen aus der Literatur sind in der Regel qualitätsgesichert. Somit sind sie klimatologisch zur Bestimmung eines Anfangszustandes für einen Kaltstart des Modelles oder als Randwerte nutzbar, aber auch zur Verifikation des mittleren Modellverhaltens. Allerdings gibt es immer noch große Lücken in diesen Daten, sie reichen für eine vollständige Beschreibung aller vom CTM benötigten Spurenstoffverteilungen nicht aus. Besonders in der Vertikalen, sowie in Abhängigkeit von Jahreszeit und geographischer Lage fehlen aussagekräftige Informationen. Neben Literaturdaten wurden für diese Arbeit hauptsächlich operationell erhobene Messungen von über 430 europäischen Bodenstationen und einige Ozonsonden für den Zeitraum Juni – August 1994 gesammelt und ausgewertet.

### Untersuchungen der Messungen des bodennahen Ozons

Die große Menge an Daten brachte neue Anforderungen an die Verarbeitung, Auswertung und Darstellung mit sich. Ein Schwerpunkt war die Untersuchung der Datenqualität, da die Daten aus operationell betriebenen Meßnetzen stammen. Man muß neben den Gerätefehlern mit Fehlern aufgrund der Kalibrierungsmethoden, der Einheitenumrechnung sowie der Datenübertragung rechnen. An verschiedenen Stellen der Arbeit wurden Aussagen über eine Fehlerabschätzung möglich, so deuten die Korrelationsanalysen auf Fehler in der Größenordnung von 10% hin. Damit gut übereinstimmend ergeben Untersuchungen im Rahmen der Entwicklung des OI-Verfahrens eine mittlere Fehlervarianz von etwa 50 ppbv<sup>2</sup>. Der zweite Schwerpunkt lag in der Untersuchung der Ozonzeitreihen. Es gibt große Unterschiede im mittleren Verhalten des Ozons zwischen städtischen Stationen mit ausgeprägten Tagesgängen und ländlichen Standorten mit geringen bis ganz fehlenden Tagesgängen. Extrem belastete Standorte bilden eine Ausnahme, dort werden die Zeitreihen von den Fluktuationen in den Daten dominiert. Zur Beschreibung der Stationscharakteristika wurde eine Klasseneinteilung der Meßorte mit Abstufungen von „verkehrsnahe“ bis „Hintergrund/Berg“ entwickelt.

### Modelldaten

Die Grundlage an modellierten Daten liefert die von einem Kaltstart des CTMs aus simulierte Episode vom 19. — 31. Juli 1994 (jeweils 00 UTC). Gerechnet wurde auf einem Europa überdeckenden Gitter mit 54 km Gitterweite und einem Nest über Deutschland mit 18 km Gitterweite. Eine Eigenheit der Episode war, daß sie nur über dem Nest 1-Gebiet einen ausgeprägten Sommersmogcharakter aufwies. Aus den Ozondaten der bodennächsten Modellschicht wurde, ähnlich wie bei den Messungen, das mittlere Modellverhalten bestimmt. Es zeigt sich, daß es dringend nötig ist, längere Zeiträume zu simulieren, um aussagekräftigere Informationen über das Modellverhalten zu erhalten, die hier nur angenähert herausgearbeitet werden konnten. Das mittlere Modellverhalten liegt im Vergleich zu den Messungen zwischen ländlich und flächenbezogen städtisch. Die höhere Auflösung des Nest 1 zeigt ein leicht städtischeres Verhalten im Vergleich zum groben Gitter. Allerdings ist der Effekt der Auflösung gering, da die Emissionseingangsdaten für die Simulationen nur interpoliert sind, also nicht der Modellgitterweite entsprechend aufgelöst sind. Es zeigen sich Unterschiede zwischen dem mittleren Verhalten von Wasser- und Landpunkten sowie zwischen dem Nest 1-Gebiet und dem Rest von Europa. Letztere sind größtenteils auf die betrachtete Episode zurückzuführen, da diese nur lokal Photosmogcharakter aufwies. Es ist somit notwendig, das Ozonklima ebenfalls für einzelne Gitterpunkte bestimmen zu können. Die Stationskategorisierung ist dafür nicht geeignet. Im übrigen zeigt sich eine Vergleichbarkeit im Verhalten des Modelles und der Messungen z. B. bei der Betrachtung der Korrelationslängen.

### Hauptkomponentenanalyse (PCA)

Die PCA ist ein algebraisches Verfahren. Sie bietet eine Möglichkeit, die Daten in bezug auf die Varianzstruktur zu untersuchen und zu beschreiben. Es ergeben sich neue Methoden zur Beschreibung der Modelleigenschaften, der Meßdaten und Meßnetze. Modellerte und gemessene Daten des bodennahen Ozons wurden wieder getrennt untersucht. Bei der PCA werden empirische orthogonale Funktionen, die Eigenvektoren oder EOFs, bestimmt. Damit wird eine direkte Vergleichbarkeit von Beobachtungen und Modellwerten erreicht. Es zeigt sich, daß die dominierenden Eigenvektoren, das sind die mit den größten Anteilen an der Varianz der Daten, für Modell und Beobachtung übertragbar sind. Nur die Modellgitterpunkte über den Ozeanen fallen aus der Reihe, so wie es schon vorher festgestellt wurde. Lokale Einflüsse in den Meßreihen können herausgefiltert werden, da sie sich zum größten Teil auf die Eigenvektoren mit den kleinen Eigenwerten auswirken. Der führende Eigenvektor — bei der PCA mit einer Zentrierung der Daten bzgl. der Tagesmittel — beschreibt einen typischen Tagesgang des

Ozons. Der zugehörige Eigenwert quantifiziert also den Einfluß dieses Tagesganges. Für die Beobachtungen ist er höher als für das Modell, für den Nest 1-Ausschnitt etwas höher als für das gesamte grobe Gitter. Das mittlere Verhalten der Messungen ist somit stärker von Emissionen beeinflusst — städtischer — als das des Modelles, und das Modell zeigt in Gebieten, die von einer Sommersmogepisode betroffen sind, ein „städtischeres“ Verhalten. Es wurden auch die vorliegenden Messungen von  $NO$ ,  $NO_2$  und  $SO_2$  mit der PCA untersucht. Es konnte damit bestätigt werden, daß diese Daten im Mittel eine wesentlich niedrigere Repräsentativität aufweisen als die Ozondaten und daher im Rahmen dieser Arbeit keine weitere Verwendung für die Assimilation finden konnten.

### Index für das aktuelle Ozonregime

Aus dem Verhältnis der Amplituden des Tagesganges, wie er durch den ersten Eigenvektor beschrieben wird, und dem Tagesmittelwert läßt sich eine Maßzahl für das Ozonregime ableiten. Dieser Index ist sowohl klimatologisch — über die Zeitreihen gemittelt — als auch aktuell zur Beschreibung eines einzelnen gemessenen oder modellierten Tagesganges anwendbar. Die klimatologische Anwendung auf die beobachteten Daten zeigt eine gute Übereinstimmung mit der Stationsklassifizierung. Damit ergibt sich also eine Methode, um das chemische Regime von Beobachtungen und Modelldaten zu quantifizieren. Es kann z. B. das mittlere Modellverhalten mit dem Klima an den Stationen verglichen werden. Das führt zu einigen wichtigen Erkenntnissen. Es konnte auch hier gezeigt werden, daß das mittlere Modellverhalten zwischen ländlich und flächenbezogen liegt. Es konnte weiter gezeigt werden, daß dieses zu einem großen Teil durch die vorgegebenen Emissionen geprägt ist: das Gitter, auf dem die Emissionen ursprünglich vorlagen, tritt in der mittleren Indexverteilung wieder hervor. Auch andere Eigenheiten des Modelles werden deutlich. Zum Beispiel zeigt sich ein systematischer Fehler an der Küste der Niederlande, verursacht wahrscheinlich durch die vom Modell genutzte Verteilung der Landnutzungsklassen. Das aktuelle Regime zu einzelnen Terminen kann jedoch stark davon abweichen und zeitlich sehr variabel sein. Es konnte ebenso gezeigt werden, daß der relativ enge Bereich der Regime, in den das mittlere Modellverhalten fällt, in den Meßnetzen unterrepräsentiert ist. Dies ist bei der Evaluierung des Modelles zu beachten, liefert aber auch Informationen, die bei der Konstruktion neuer Meßnetze hilfreich sein können. Auch zur Qualitätssicherung ist der abgeleitete Index hilfreich. Wenig repräsentative Stationen unter überwiegend lokalem Einfluß können leicht erkannt werden. Dies ist besonders interessant, da in den meisten Fällen die ursprüngliche Konzipierung der Meßnetze nicht dafür ausgelegt war, repräsentative Ozondaten zu liefern. Vielmehr lag die Aufgabe in der Wintersmogüberwachung, die gerade an belasteten Standorten Messungen erfordert.

### Objektive Analyse

Es wurde ein Verfahren zur objektiven Analyse der Verteilung des bodennahen Ozons entwickelt, das auf dem Ansatz der optimalen Interpolation (OI) aufbaut. Eingangsdaten sind neben den Ozonmessungen die für den Termin prognostizierten Daten. Außerdem werden die Fehlerkovarianzen der Beobachtungen und des Modelles berücksichtigt. Diese wurden aus den vorhandenen Daten abgeschätzt. Es zeigt sich dabei, daß die Modellfehler im Mittel ca. zweieinhalb mal so groß sind wie die Meßfehler. Einer der Vorteile der OI ist die Möglichkeit, die Repräsentativitätsfehler der Daten zu berücksichtigen. Im Gegensatz zur Meteorologie ist hier die Repräsentativität nicht hauptsächlich von der Entfernung abhängig. Eine große Rolle spielt der chemische Zustand oder das Regime der verschiedenen Luftmassen. Für das Ozon kann die chemische Repräsentativität durch den mittels der PCA bestimmten Index beschrieben werden. Dieses Maß wird in dem Analyseverfahren bei der Berechnung der Analysegewichte benutzt. Damit ist der neue Algorithmus in der Lage, auf physikalisch und chemisch sinnvolle Weise die Daten der Beobachtungen und des Modelles zu kombinieren.

## **Evaluierung**

Es wurden Methoden zur Evaluierung des Modelles und zur Verifikation der Prognosen vorgestellt und diskutiert, die den Besonderheiten der vorliegenden Beobachtungsdaten Rechnung tragen. Durch die im Vergleich zu wissenschaftlich durchgeführten Messungen geringere Qualität, aber räumlich und zeitlich größere Anzahl an Daten ergeben sich spezielle Anforderungen und Möglichkeiten für den Vergleich von Messung und Modell. Eine große Rolle spielt wieder die Repräsentativität der Daten. Es ergibt sich durch die Menge an Daten die Möglichkeit, die räumlichen und zeitlichen Schwankungen der Repräsentativität zu berücksichtigen. Es erweist sich als notwendig, bei der Verifizierung die Stationstypen getrennt zu betrachten. Außerdem erfordert die Verifizierung sowohl die Betrachtung des gesamten Modellgebietes, da es große regionale Unterschiede im Modellverhalten gibt, als auch eine zeitlich differenzierte Auswertung. Es zeigen sich große Schwankungen in der Vorhersagegüte für verschiedene Termine, aber es zeigen auch statistische Maßzahlen große Unterschiede, wenn sie nur für bestimmte Tagesabschnitte berechnet werden. Neben den bis hierher bereits erarbeiteten Möglichkeiten zur Verifikation mittels Statistiken oder z. B. der PCA liefern auch die objektiven Analysen neue Ansätze zur Beurteilung der Vorhersagen. So hilft der Vergleich von Zeitreihen der Differenzenstatistiken von Analysen und auch von Persistenzvorhersagen bei der Beurteilung der Auswertungen der Simulationen. Die Analysen lassen sich ebenfalls für die Qualitätskontrolle der Messungen einsetzen. Dies alles sind Ergebnisse, die nur aufgrund der großen Datenmenge erzielt werden konnten. Ebenfalls sind aufwendige Vorarbeiten, wie z. B. die Stationskategorisierung, unumgänglich.

## **Anfangs- und Randdaten**

Der Einfluß der Anfangswerte eines Kaltstarts ist länger als fünf bis sechs Tage meßbar, deutlich länger als durch die zweitägige Initialisierungsperiode des CTMs berücksichtigt wird. Es zeigt sich dabei, daß der Einfluß auf die absoluten Niveaus der Konzentrationen größer ist, als der auf die zeitlichen Verläufe, die sich insgesamt schneller ausprägen. Im Hinblick auf einen Abgleich mit den Möglichkeiten, die die Messungen der Spurengase bieten, wurde eine vollständige Strategie zur Behandlung der Anfangs- und Randdaten für das CTM erarbeitet. Für den Kaltstart des Modelles zu Beginn einer Episode wurde ein Verfahren vorgestellt, das die klimatologischen Verteilungen der Spurengase, die aus Daten aus der Literatur abgeleitet wurden, an die aktuelle meteorologische Situation anpaßt. Parameter, wie die Höhe der PBL und der Tropopause oder das Profil der potentiellen Vorticity, bestimmen die Vertikalprofile vieler Spezies mit. Die Verifizierung des Verfahrens zeigte verschiedene Ergebnisse. Zum Beispiel stimmen das mittlere Verhalten des Modelles und die klimatologischen Daten nun besser überein. Eine deutliche Verbesserung der simulierten vertikalen Ozonverteilung zeigt der Vergleich mit den Sondendaten besonders im oberen Modellbereich. Es ist ebenfalls ein Einfluß auf die bodennahe Verteilung des Ozons zu beobachten. Es ergibt sich eine Verbesserung der Prognose für ländliche Gebiete.

## **Datenassimilation**

Für die Anfangswerte des Ozons bei Simulationen, die auf vorherigen Modellläufen aufsetzen, wurde ein Algorithmus zur Datenassimilation entwickelt. Nach den notwendigen Vorarbeiten konnte ein Algorithmus vorgestellt werden, der in der Lage ist, die Repräsentativität der Messungen — insbesondere in bezug auf die chemische Vergleichbarkeit der Daten — mit einzubeziehen. Aktuelle Messungen des bodennahen Ozons werden nach einem Verfahren der objektiven Analyse diagnostiziert. Unter Berücksichtigung der Höhe der Mischungsschicht werden diese vertikal ausgewertet. Diese Analysen werden periodisch in das Modell assimiliert. Bedingt durch die Konsistenz der resultierenden Anfangsverteilungen wird erreicht, daß die numerischen Störungen des chemischen Systems durch die Assimilation sehr gering sind und nach sehr kurzer Zeit verschwinden. Aufgrund der günstigen chemischen Lebensdauer des Ozons ist dieses be-

sonders für die Assimilation geeignet. Die durch die Assimilation bewirkten Änderungen in den Mischungsverhältnissen bleiben relativ lange erhalten und beeinflussen damit die Vorhersage über mehrere Tage hinweg. Die Verifikation des Schemas zeigt einen Einfluß auf die Prognose, der noch nach mehr als zwei Tagen beobachtbar ist. Empfehlenswert ist eine periodische Datenassimilation, bei der in einem Zeitfenster stündlich Analysen ins Modell eingebracht werden. Das Ende dieses Zeitraumes sollte zur Zeit der Ozontagesmaxima liegen. Eine Verbesserung der Kurzfristvorhersage des bodennahen Ozons wird erreicht. Der Vergleich mit den Zeitreihen analysierter Verteilungen gibt eine Abschätzung für die Größe der Effekte, die durch die Assimilation mit diesem Verfahren erreicht werden können. Bei der Verifikation wurde eine separate Betrachtung der Stationstypen vorgenommen, da die Effekte und deren Ursachen zwischen den Kategorien verschieden sind. Das Verfahren erzielt die besten Resultate für flächenbezogene und Reinluftstationen. Das ist ein Ergebnis davon, daß die Analysen das Modellverhalten bei der Berechnung der Analysegewichte für die Meßdaten berücksichtigen, also die chemische Vergleichbarkeit der Daten gewährleistet wird. Insgesamt konnte gezeigt werden, daß mit einer den zur Zeit zur Verfügung stehenden Meßdaten angepaßten Berechnung der Anfangs- und Randwerte des CTMs eine deutliche Verbesserung der Modellprognosen erreicht werden kann.

### **Ausblick**

Die in dieser Arbeit vorgestellten Methoden sind sämtlich auch auf andere Modelle übertragbar. Eine Untersuchung einer langen von unterschiedlichen Modellen simulierten Zeitreihe mit diesen Methoden wäre vielversprechend für einen Modellvergleich aber auch für die Weiterentwicklung der Verfahren.

Die statistischen Untersuchungen, die der Analyse zugrunde liegen, müssen mittels längerer Zeitreihen überprüft werden. Bei Änderungen am Modell oder den Eingangsdaten sollten sie ebenfalls erneut durchgeführt werden, da sie Auskunft über die langfristigen Einflüsse der Änderungen geben können und für eine Anpassung der Assimilationsverfahren wichtig sind. Insbesondere sind z. B. Änderungen durch eine höhere Auflösung der Emissionsdaten zu erwarten. Eine Weiterentwicklung in bezug auf die Nutzung zusätzlicher Parameter — etwa der Temperatur- oder Windabhängigkeiten — sind denkbar.

Das Assimilationsverfahren benötigt nur geringe Rechenkapazitäten und ist somit für die routinemäßige Anwendung z. B. für operationelle Ozonprognosen im Rahmen der Sommersmogüberwachung geeignet. Auch die Ergebnisse der aus der Assimilation resultierenden Simulationen empfehlen den Einsatz des Verfahrens für das CTM. Sinnvoll kann eine Kombination mit variationellen Methoden der Datenassimilation (z. B. nach Elbern et al., 1997) sein. Diese erfordern aber einen so großen Rechenaufwand, daß sie nur für einzelne experimentelle Anwendungen durchführbar sind.

Für die Zukunft am wünschenswertesten wäre eine Zusammenarbeit mit den Betreibern der Meßnetze. Eine genaue Kenntnis der Messungen und ihrer Qualität ist die Grundlage der Assimilation. Genauso sinnvoll ist der Rückfluß von Informationen für die Qualitätskontrolle der Beobachtungen. Dies könnten z. B. Aussagen über die abgeschätzten Fehler und die Repräsentativität einzelner Standorte und ganzer Meßnetze aber auch die Interpretation von Zeitreihen der analysierten Ozonverteilungen sein. Andere Spurenstoffe und Datenquellen sollten in die Bestimmung der Anfangs- und Randwerte aufgenommen werden, sobald Messungen in ausreichender Menge und Qualität zur Verfügung stehen.



# Anhang A

## Datenquellen

### A.1 Meßnetzbetreiber

Nachfolgend sind (in alphabetischer Reihenfolge) die Datenquellen aufgelistet, deren Messungen dieser Arbeit zugrundeliegen. An dieser Stelle soll auch all den Personen für die freundliche Zusammenarbeit gedankt werden, die die Daten zur Verfügung gestellt haben.

- Baden-Württemberger-Meßnetz: UMEG (Gesellschaft für Umweltmessungen und Umwelterhebungen mbH); Herr Scheu-Hachtel.
- BLUES-Meßnetz: der Senator für Frauen, Gesundheit, Soziales und Umweltschutz; Herr Endler.
- BLUME-Meßnetz: die Senatsverwaltung für Stadtentwicklung, Umweltschutz und Technologie; Herr Dr. Lenschow.
- The Danish Air Quality Monitoring Programme, NERI, Ministry of the Environment; Herr Kemp, Herr Palmgren, Herr Manscher.
- DWD, Met. Observatorium Hohenpeißenberg, Herr Dr. Köhler.
- EMEP-Meßnetz; Frau Hjellbrekke.
- Hessische Landesanstalt für Umwelt; Herr Dr. Büchen.
- IFU, Garmisch-Partenkirchen; Herr Dr. Scheel.
- IMMESA-Meßnetz: staatliches Institut für Gesundheit und Umwelt; Saarland; Herr Dr. Luther.
- International Science Consultants; Herr Dr. Simmonds.
- IVL, Swedish Environmental Research Institute; Frau Dr. Lindskog, Frau Sjöberg.
- KMI, Brüssel, Belgien; Herr Dr. de Muir.
- Landesamt für Umwelt und Natur Mecklenburg-Vorpommern; Herr Dr. Sattler, Herr Wosczyzna.
- Landesumweltamt Brandenburg; Herr Dr. Kühne, Frau Mattick.
- LÜB-Meßnetz: Bayerisches Landesamt für Umweltschutz; Herr Böllmann.
- NABEL-Meßnetz; Bundesamt für Umwelt, Wald und Landschaft; Schweiz; Herr Dr. Nyffeler, Herr Dr. Filliger.
- Niedersächsisches Landesamt für Ökologie; Herr Müller.
- NILU, Norwegian Institute for Air Research; Herr Tørseth.
- Österreich, Umweltbundesamt; Frau Dr. Baumann, Frau Girbardt.
- PROGNOSE AG, Basel; Herr Hartmann.
- Rheinland-Pfälzer-Meßnetz: Landesamt für Umweltschutz und Gewerbeaufsicht; Herr Kam-

pe.

- RIVM, Niederlande; Herr Dr. de Leeuw, Herr Dr. Swart.
- Sächsisches Landesamt für Umwelt und Geologie; Herr Gräfe.
- Schleswig-Holsteiner-Meßnetz: Gewerbeaufsichtsamt Itzehoe; Herr Dr. Lehmhaus.
- SMA, Station Aerologique Payerne; Herr Dr. Jeannet.
- TEMES-Meßnetz: Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen; Herr Dr. Beier.
- Thüringer Landesanstalt für Umwelt; Herr Dr. Schmidt.
- Umweltbehörde Hamburg; Herr Matzen.
- Umweltbundesamt Deutschland.

## A.2 Meßstationen

Tabelle A.1: Liste der Meßstationen für die Bodenmessungen für den Zeitraum Juni – August 1994 vorliegen.

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
<i>Baden-Wuerttemberg</i>								
Aalen	s	420	48.85	10.10	•	•	•	•
Albstadt	s	710	48.21	9.03	•	•	•	•
Baden-Baden	s	150	48.77	8.22	•	•	•	•
Balingen	v	520	48.28	8.86	•	•	•	•
Bernhausen	v	370	48.68	9.22	•	•	•	•
Biberach	v	560	48.09	9.80	•	•	•	•
Boeblingen	v	445	48.69	9.02	•	•	•	•
Bruchsal	v	113	49.12	8.58	•	•	•	•
Calw	v	332	48.71	8.74	•	•	•	•
Edelmannshof	w	500	48.89	9.57	•	•	•	•
Eggenstein	v	110	49.08	8.40	•	•	•	•
Ehingen	s	530	48.28	9.72	•	•	•	•
Emmendingen	v	200	48.12	7.85	•	•	•	•
Erpfingen	w	799	48.35	9.21	•	•	•	•
Esslingen	v	240	48.73	9.34	•	•	•	•
Freiburg.Mitte	s	240	48.00	7.83	•	•	•	•
Freiburg.Nord	s	260	48.00	7.86	•	•	•	•
Freudenstadt	w	750	48.47	8.41	•	•	•	•
Friedrichshafen	s	402	47.66	9.49	•	•	•	•
Goeppingen	v	318	48.70	9.67	•	•	•	•
Heidelberg	v	110	49.42	8.68	•	•	•	•
Heidenheim	v	480	48.66	10.16	•	•	•	•
Heilbronn	v	152	49.16	9.22	•	•	•	•
Karlsruhe.Mitte	v	115	49.01	8.42	•	•	•	•
Karlsruhe.Nordwest	v	110	49.04	8.36	•	•	•	•
Karlsruhe.West	v	115	49.01	8.35	•	•	•	•
Kehl.Sued	v	137	48.56	7.83	•	•	•	•
Kehl	v	135	48.58	7.80	•	•	•	•
Konstanz	f	400	47.67	9.17	•	•	•	•
Kuenzelsau	s	214	49.28	9.69	•	•	•	•
Ludwigsburg	v	300	48.90	9.17	•	•	•	•
Mannheim.Mitte	v	95	49.48	8.48	•	•	•	•
Mannheim.Nord	v	95	49.54	8.47	•	•	•	•
Mannheim.Sued	v	95	49.43	8.53	•	•	•	•
Mosbach	v	147	49.35	9.14	•	•	•	•
Neckarsulm	v	160	49.20	9.23	•	•	•	•
Neuenburg	v	227	47.82	7.57	•	•	•	•
Pforzheim.Mitte	v	250	48.89	8.71	•	•	•	•
Pforzheim.West	v	260	48.89	8.67	•	•	•	•
Plochingen	v	250	48.71	9.42	•	•	•	•
Rastatt	v	117	48.85	8.23	•	•	•	•
Ravensburg	s	435	47.78	9.61	•	•	•	•
Reutlingen	s	385	48.49	9.21	•	•	•	•
Rheinfelden	s	285	47.56	7.79	•	•	•	•
Rottweil	v	660	48.17	8.62	•	•	•	•

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Schwaebisch.Hall	v	300	49.11	9.73	•	•	•	•
Schwarzwald.Sued	w	920	47.81	7.77	•	•	•	•
Sigmaringen	v	580	48.09	9.21	•	•	•	•
Stuttgart.Bad.Cannstatt	v	235	48.81	9.23	•	•	•	•
Stuttgart.Hafen	v	235	48.75	9.27	•	•	•	•
Stuttgart.Mitte	v	260	48.78	9.17	•	•	•	•
Stuttgart.Zuffenhausen	v	260	48.83	9.17	•	•	•	•
Tauberbischofsheim	v	117	49.64	9.66	•	•	•	•
Tuebingen	v	330	48.53	9.06	•	•	•	•
Tuttlingen	v	640	47.99	8.83	•	•	•	•
Ulm	v	480	48.40	9.99	•	•	•	•
Villingen.Schwenningen	v	705	48.05	8.46	•	•	•	•
Waiblingen	s	275	48.83	9.30	•	•	•	•
Waldshut	s	340	47.62	8.22	•	•	•	•
Weil.am.Rhein	f	250	47.59	7.63	•	•	•	•
Weinheim	s	102	49.55	8.66	•	•	•	•
Wiesloch	s	160	49.30	8.70	•	•	•	•
<i>Bayern</i>								
Ansbach	v	402	49.31	10.58	•	•	•	•
Arzberg	v	470	50.06	12.20	•	•	•	•
Aschaffenburg	v	140	49.99	9.13	•	•	•	•
Augsburg	v	500	48.31	10.91	•	—	—	•
Bad.Reichenhall	f	495	47.74	12.85	•	•	•	•
Burghausen	s	370	48.17	12.83	•	•	•	•
Erlangen.Haeusling	v	300	49.59	10.94	•	•	•	•
Garmisch-P.Degernlahne	s	735	47.48	11.06	•	•	•	•
Garmisch-P.Wank	b	1776	47.52	11.14	•	•	•	•
Hof	v	510	50.32	11.91	•	•	•	•
Kempten	s	700	47.73	10.31	•	•	•	•
Kulmbach	v	326	50.11	11.45	•	•	•	•
Lauf	v	311	49.51	11.29	•	•	•	•
Mehring	s	430	48.18	12.78	•	—	—	•
Muenchen.Johanneskirchen	v	528	48.18	11.65	•	•	•	•
Muenchen.Loehstrasse	v	520	48.15	11.56	•	•	•	•
Muenchen.Stachus	v	520	48.14	11.57	•	•	•	•
Neu-Ulm	v	470	48.39	10.03	•	•	•	•
Neustadt.a.d.D.Eining	s	360	48.86	11.77	•	•	•	•
Nuernberg.Hauptmarkt	v	320	49.45	11.08	•	•	•	•
Nuernberg.Willy-Brandt-Platz	v	300	49.45	11.08	•	•	•	•
Oberaudorf	s	482	47.65	12.17	•	•	•	•
Passau	v	310	48.58	13.46	•	•	•	•
Regen	v	536	48.98	13.13	•	—	—	•
Regensburg.Rathaus	v	330	49.02	12.10	•	•	•	•
Schweinfurt	v	230	50.04	10.23	•	•	•	•
Tiefenbach	w	700	49.44	12.55	•	•	•	•
Tirschenreuth	s	504	49.88	12.33	•	—	—	•
Trostberg	v	479	48.03	12.54	•	•	•	•
Wuerzburg.Kard.-Faulhaber-Platz	v	180	49.80	9.94	—	•	•	•
Wuerzburg.Kopflinik	v	270	49.80	9.96	•	—	—	•
<i>Berlin</i>								

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Buch	s	?	52.64	13.49	•	•	•	—
Friedrichshagen	f	?	52.45	13.64	•	•	•	—
Funkturm	w	?	52.65	13.30	•	•	•	—
Grunewald.25m	s	?	52.47	13.23	•	•	•	—
Grunewald	v	?	52.47	13.23	•	•	•	—
Heiligensee	v	?	52.62	13.23	•	•	•	—
Marienfelde	f	?	52.40	13.37	•	•	•	—
Mitte	s	?	52.52	13.41	•	•	•	—
Neukoelln	s	?	52.49	13.43	•	•	•	—
Stadtautobahn	v	?	52.52	13.28	•	•	•	—
Wedding	s	?	52.54	13.35	•	•	•	—
<i>Brandenburg</i>								
Brandenburg.Zentrum	f	33	52.41	12.55	•	•	•	•
Burg	f	54	51.84	14.15	•	•	•	•
Cottbus.Sued	f	76	51.74	14.33	•	•	•	•
Eisenhuettenstadt	f	40	52.15	14.64	•	•	•	•
Frankfurt.Oder	f	45	52.35	14.54	•	•	•	•
Guben	v	46	51.95	14.72	—	•	•	•
Kleinmachnow	v	43	52.41	13.22	—	•	•	•
Koenigs.Wusterhausen	s	48	52.30	13.62	•	•	•	•
Ludwigsfelde	v	41	52.30	13.25	—	•	•	•
Potsdam.Hermannswerder	s	32	52.39	13.04	•	•	•	•
Potsdam.Zentrum	s	31	52.40	13.06	•	•	•	•
Premnitz	f	30	52.53	12.34	•	•	•	•
Prezlau	f	30	53.30	13.92	•	•	•	•
Ruedersdorf	v	60	52.47	13.79	—	•	•	•
Schwedt	f	10	53.07	14.29	•	•	•	•
Senftenberg	f	103	51.53	14.00	•	•	•	•
Spremberg.Sued	f	100	51.56	14.38	•	•	•	•
Wittenberge	f	22	52.99	11.77	•	•	•	•
<i>Bremen</i>								
Bremen-Mitte	s	?	53.09	8.81	•	•	•	•
Bremen-Nord	s	?	53.18	8.63	•	•	•	•
Bremen-Ost	v	?	53.06	8.92	•	•	•	•
Bremen-West	s	?	53.11	8.75	•	•	•	•
Bremerhaven	f	?	53.56	8.57	•	•	•	•
<i>Daenemark</i>								
Lille.Valby	f	15	55.70	12.12	•	•	•	—
Ulborg	w	0	56.28	8.43	•	—	—	—
<i>EMEP</i>								
Achenkirch	f	960	47.55	11.72	•	—	—	—
Ahtari	v	162	62.53	24.22	•	—	—	—
Ansbach	s	481	49.30	10.57	•	—	—	—
Aspvreten	s	20	58.80	17.38	•	—	—	—
Aston.Hill	f	370	52.50	-3.04	•	—	—	—
Bassum	f	52	52.85	8.72	•	—	—	—
Bottesford	s	32	52.92	-0.80	•	—	—	—
Brotjacklriegel	b	1016	48.82	13.22	•	—	—	—
Bush	f	180	55.85	-3.20	•	—	—	—
Cartuja	s	720	37.20	-3.60	•	—	—	—

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Chaumont	w	1130	47.05	6.98	•	-	-	-
Cubuk.II	w	1169	40.50	33.00	•	-	-	-
Deuselbach	w	480	49.76	7.05	•	-	-	-
Eskdalemuir	f	243	55.30	-3.20	•	-	-	-
Frederiksborg	s	10	55.97	11.33	•	-	-	-
Glazebury	v	21	53.45	-2.47	•	-	-	-
Great.Dun.Fell	w	847	54.68	-2.44	•	-	-	-
Harwell	s	137	51.57	-1.30	•	-	-	-
High.Muffles	f	267	54.33	-0.80	•	-	-	-
Hohenwestedt	f	75	54.10	9.67	•	-	-	-
Ispra	v	209	45.80	8.63	•	-	-	-
Kosetice	f	633	49.58	15.08	•	-	-	-
Kovk	s	6	46.13	15.11	•	-	-	-
Krvavec	w	32	46.30	14.54	•	-	-	-
Ladybower	f	420	53.39	-1.75	•	-	-	-
Logrono	f	370	42.45	-2.35	•	-	-	-
Lough.Navar	f	126	54.43	-7.87	•	-	-	-
Lueckendorf	w	490	50.83	14.77	•	-	-	-
Lullington.Heath	f	120	50.78	0.17	•	-	-	-
Meinerzhagen	s	510	51.12	7.63	•	-	-	-
Monte.Velho	w	43	38.08	-8.80	•	-	-	-
Neuglobsow	f	62	53.15	13.03	•	-	-	-
Noia	w	685	42.73	-8.92	•	-	-	-
Oulanka	w	310	66.32	29.40	•	-	-	-
Preila	f	5	55.35	21.07	•	-	-	-
Rucava	f	18	56.22	21.22	•	-	-	-
San.Pablo	b	917	39.55	-4.35	•	-	-	-
Schauinsland	b	1205	47.91	7.91	•	-	-	-
Schmuecke	w	937	50.65	10.77	•	-	-	-
Sibton	f	46	52.29	1.47	•	-	-	-
Sogne	f	15	58.08	7.85	•	-	-	-
Stara-Lesna	f	808	49.15	20.28	•	-	-	-
Starina	f	345	49.05	22.27	•	-	-	-
Stevenage	v	90	51.88	-0.20	•	-	-	-
Strath.Vaich	w	270	57.73	-4.77	•	-	-	-
Svratouch	w	737	49.73	16.03	•	-	-	-
Tortosa	f	50	40.82	-0.50	•	-	-	-
Tustervatn	w	439	65.83	13.92	•	-	-	-
Ueckermuende	f	1	53.75	14.07	•	-	-	-
Uto	w	7	59.78	21.38	•	-	-	-
Violahti	s	8	60.53	27.69	•	-	-	-
Waldhof	f	74	52.80	10.76	•	-	-	-
Westerland	w	12	54.93	8.31	•	-	-	-
Wharleycroft	w	26	54.60	-2.47	•	-	-	-
Wiesenburg	f	107	52.12	12.47	•	-	-	-
Yarner.Wood	s	119	50.59	-3.70	•	-	-	-
Zavodnje	w	770	46.43	15.00	•	-	-	-
Zingst	w	1	54.43	12.73	•	-	-	-
<i>Hamburg</i>								
Bahrenfeld	v	?	53.56	9.90	-	•	•	•

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Billbrook	v	?	53.53	10.08	—	•	•	•
Flughafen	v	?	53.64	10.00	—	•	•	•
Goehlbachtal	v	?	53.46	9.97	•	•	•	•
Hochkamp	s	?	53.56	9.84	•	•	•	•
Horner.Rennbahn	v	?	53.56	10.09	—	•	•	•
Kirchdorf	v	?	53.49	10.02	—	•	•	•
Lokstedt	v	?	53.60	9.96	—	•	•	•
Luebecker.Strasse	v	?	53.56	10.03	—	•	•	•
Neuer.Kamp	v	?	53.56	9.97	—	—	—	—
Rahlstedt	v	?	53.60	10.15	•	•	•	•
Steinwerder	v	?	53.53	9.97	—	•	•	•
Sternschanze	v	?	53.57	9.97	•	•	•	•
Tatenberg	v	?	53.49	10.09	•	•	•	•
Veddel	v	?	53.52	10.02	—	•	•	•
Waltershof	v	?	53.53	9.90	—	•	•	•
<i>Hessen</i>								
Bebra	v	225	50.97	9.80	•	•	•	—
Biebesheim	v	?	49.78	8.49	•	•	•	—
Borken	s	225	51.08	9.28	•	•	•	—
Burg.Herzberg	v	?	51.67	10.33	—	—	—	—
Darmstadt.Huegelstrasse	v	?	49.87	8.65	—	•	•	—
Darmstadt	v	140	49.88	8.69	•	•	•	—
Dillenburg	v	225	50.74	8.29	•	•	•	—
Ffm.Bockenheim	v	98	50.12	8.64	•	•	•	—
Ffm.Griesheim	v	?	50.10	8.61	•	•	•	—
Ffm.Hoechst	v	100	50.10	8.54	•	•	•	—
Ffm.Hoehenstrasse	v	?	50.13	8.70	—	•	•	—
Ffm.Niederrad	v	97	50.09	8.64	•	•	•	—
Ffm.Ost	v	101	50.13	8.75	•	•	•	—
Ffm.Sindlingen	v	?	50.08	8.52	•	•	•	—
Frankenberg	f	395	51.10	8.77	•	•	•	—
Fuerth.Odenwald	w	480	49.65	8.82	•	•	•	—
Fulda	v	310	50.55	9.70	•	•	•	—
Giessen	v	150	50.59	8.67	•	•	•	—
Grebenau	f	370	50.76	9.47	•	•	•	—
Hanau	v	?	50.14	8.92	•	•	•	—
Kassel.Bettenhausen	v	143	51.31	9.53	•	•	•	—
Kassel.Nord	v	167	51.34	9.48	•	•	•	—
Kassel.Sued	v	?	51.30	9.48	•	•	•	—
Koenigstein	w	520	50.20	8.44	•	•	•	—
Maintal	v	?	50.14	8.83	•	•	•	—
Mainz.Kastel	v	?	50.01	8.29	•	•	•	—
Marburg	v	118	50.80	8.77	•	•	•	—
Nidda	s	194	50.42	9.00	•	•	•	—
Offenbach	v	?	50.10	8.77	•	•	•	—
Raunheim	v	91	50.01	8.45	•	•	•	—
Spessart	w	485	50.16	9.40	•	•	•	—
Viernheim	v	99	49.55	8.58	•	•	•	—
Wetzlar	v	?	50.57	8.50	•	•	•	—
Wiesbaden.Mitte	v	115	50.08	8.24	•	•	•	—

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Wiesbaden.Ringkirche	v	?	50.08	8.23	-	•	•	-
Wiesbaden.Sued	v	130	50.05	8.25	•	•	•	-
Witzenhausen	w	605	51.29	9.78	•	•	•	-
<i>Mecklenburg-Vorpommern</i>								
Guelzow	f	17	53.82	12.07	•	•	•	•
Loecknitz	f	18	53.52	14.26	•	•	•	•
Neubrandenburg	s	15	53.56	13.27	•	•	•	•
Rostock	v	10	54.09	12.10	•	•	•	•
Schwerin	s	42	53.64	11.41	•	•	•	•
Selmsdorf	f	63	53.87	10.90	•	•	•	•
Stralsund	s	15	54.31	13.07	•	•	•	•
Stuthof	s	5	54.16	12.17	•	•	•	•
<i>Niederlande</i>								
Balk	f	?	52.92	5.57	•	•	•	•
Barsbeek	f	?	52.66	6.02	•	•	•	•
Biddinghuizen	s	?	52.45	5.62	•	•	•	•
Braakman	f	?	51.30	3.75	•	•	•	•
Budel	s	?	51.27	5.56	•	•	•	•
Cabauw	s	?	51.97	4.93	•	•	•	•
Eibergen	v	?	52.09	6.61	•	•	•	•
Hellendoorn	v	?	52.39	6.40	•	•	•	•
Houtakker	v	?	51.52	5.15	•	•	•	•
Huijbergen	v	?	51.44	4.36	•	•	•	•
Kollumerwaard	f	0	53.33	6.28	•	•	•	•
Kwadijk	f	?	52.51	5.01	•	•	•	•
Posterholt	v	?	51.12	6.04	•	•	•	•
Sappemeer	s	?	53.14	6.80	•	•	•	•
Schipfluiden	s	?	51.99	4.28	•	•	•	•
Volkel	v	?	51.64	5.66	•	•	•	•
Vredepeel	v	?	51.39	5.85	•	•	•	•
Wageningen	v	?	51.97	5.65	•	•	•	•
Westmaas	s	?	51.79	4.45	•	•	•	•
Wieringerwerf	f	?	52.80	5.05	•	•	•	•
Wijnandsrade	v	?	50.90	5.88	•	•	•	•
Witteveen	v	?	52.81	6.67	•	•	•	•
Zegveld	s	?	52.14	4.84	•	•	•	•
Zierikzee	f	?	51.64	3.92	•	•	•	•
<i>Niedersachsen</i>								
Braunlage	w	992	51.76	10.62	•	•	•	-
Braunschweig.Broitzem	f	98	52.23	10.47	•	•	•	-
Bueddenstedt.Reinsdorf	s	130	52.16	11.04	•	•	•	-
Buxtehude	s	2	53.48	9.70	•	•	•	-
Cloppenburg	s	42	52.84	8.06	•	•	•	-
Duderstadt	s	185	51.50	10.27	•	•	•	-
Emden.City	f	1	53.37	7.20	•	•	•	-
Goettingen	s	162	51.55	9.95	•	•	•	-
Hann.Muenden	v	195	51.40	9.66	•	•	•	-
Hannover.Linden	s	110	52.36	9.72	•	•	•	-
Herzberg	f	248	51.66	10.34	•	•	•	-
Lingen	s	30	52.50	7.32	•	•	•	-

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Lueneburg	s	48	53.24	10.45	•	•	•	—
Nordenham.City	f	2	53.50	8.48	•	•	•	—
Oker.Harlingerode	f	220	51.90	10.48	•	•	•	—
Osnabrueck	s	95	52.26	8.05	•	•	•	—
Rinteln	s	58	52.18	9.07	•	•	•	—
Salzgitter.Lebenstedt	s	94	52.15	10.35	•	•	•	—
Schladen	s	130	52.03	10.54	•	•	•	—
Solling.Dassel	w	500	51.76	9.58	•	•	•	—
Walsrode	v	50	52.83	9.64	•	•	•	—
Wilhelmshaven.Volslapp	f	2	53.60	8.09	•	•	•	—
Wolfsburg	s	60	52.44	10.82	•	•	•	—
<i>Nordrhein-Westfalen</i>								
Bergkamen	v	72	51.62	7.65	—	•	•	•
Bielefeld	v	102	52.02	8.55	•	•	•	•
Bochum.Wiemelshausen	v	85	51.47	7.24	—	•	•	•
Bonn	v	57	50.76	7.08	•	•	•	•
Borken	v	42	51.85	6.86	•	•	•	•
Bottrop	v	40	51.53	6.98	•	•	•	•
Castrop-Rauxel.Frohlinde	v	110	51.53	7.35	—	•	•	•
Castrop-Rauxel.Ickern	v	60	51.59	7.35	•	•	•	•
Datteln	v	80	51.64	7.33	—	•	•	•
Dormagen	v	44	51.10	6.80	•	•	•	•
Dortmund.Asseln	v	85	51.53	7.59	—	•	•	•
Dortmund.Hoerde	v	110	51.49	7.50	—	•	•	•
Dortmund.Mitte	v	75	51.54	7.46	•	•	•	•
Duesseldorf.Einbrungen	v	33	51.32	6.74	—	•	•	•
Duesseldorf.Gerresheim	v	60	51.23	6.86	—	•	•	•
Duesseldorf.Loerick	v	32	51.25	6.73	•	•	•	•
Duesseldorf.Moersbroich	v	38	51.25	6.80	—	•	•	•
Duesseldorf.Reisholz	v	40	51.19	6.86	—	•	•	•
Duisburg.Buchholz	v	30	51.39	6.76	—	•	•	•
Duisburg.Kaldenhausen	v	30	51.39	6.65	—	•	•	•
Duisburg.Meiderich	v	30	51.47	6.79	—	•	•	•
Duisburg.Walsum	v	28	51.53	6.75	•	•	•	•
Eggegebirge	w	450	51.83	8.95	•	•	•	•
Eifel	w	572	50.65	6.28	•	•	•	•
Essen.Altendorf	v	70	51.46	6.97	—	•	•	•
Essen.Bredeney	v	153	51.41	6.97	•	•	•	•
Essen.Leithe	v	97	51.46	7.09	—	•	•	•
Essen.Ost	v	100	51.45	7.03	—	•	•	•
Essen.Vogelheim	v	47	51.50	6.98	—	•	•	•
Finnentrop	v	310	51.17	7.97	•	—	—	—
Frechen	v	68	50.92	6.81	—	•	•	•
Gelsenkirchen	v	40	51.53	7.10	—	•	•	•
Gladbeck	v	80	51.58	7.01	—	•	•	•
Hattingen	v	93	51.41	7.21	•	•	•	•
Herne	v	70	51.53	7.22	—	•	•	•
Herten	v	102	51.60	7.13	•	•	•	•
Hilden	v	58	51.17	6.95	•	•	•	•
Huenxe.Bruckhausen	v	32	51.60	6.76	—	•	•	•

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Huerth	v	90	50.88	6.87	•	•	•	•
Koeln.Chorweiler	v	45	51.02	6.89	•	•	•	•
Koeln.Riehl	v	40	50.97	6.99	•	•	•	•
Koeln.Rodenkirchen	v	45	50.89	6.99	•	•	•	•
Koeln.Vogelsang	v	50	50.96	6.88	—	•	•	•
Krefeld.Linn	v	32	51.34	6.64	•	•	•	•
Krefeld.Mitte	v	39	51.32	6.55	—	•	•	•
Ladbergen	v	49	52.14	7.76	•	—	—	—
Langenfeld	v	65	51.09	6.98	—	•	•	•
Leverkusen	v	45	51.04	7.01	—	•	•	•
Luenen.Brambauer	v	90	51.60	7.45	—	•	•	•
Luenen.Niederaden	v	58	51.59	7.57	—	•	•	•
Marl.Polsum	v	54	51.63	7.06	—	•	•	•
Marl.Sickingmuehle	v	42	51.70	7.12	•	•	•	•
Meerbusch	v	40	51.27	6.63	—	•	•	•
Moers.Meerbeck	v	28	51.46	6.65	•	•	•	•
Muelheim.Styrum	v	37	51.46	6.87	•	•	•	•
Nettetal	v	49	51.33	6.20	•	•	•	•
Neuss.Uedesheim	v	37	51.16	6.78	—	•	•	•
Neuss	v	40	51.18	6.69	•	•	•	•
Niederkassel	v	49	50.84	7.03	—	•	•	•
Niederzier	v	105	50.89	6.47	•	—	—	—
Oberhausen.Osterfeld	v	76	51.53	6.87	—	•	•	•
Pulheim	v	45	51.01	6.79	—	•	•	•
Ratingen	v	63	51.29	6.86	—	•	•	•
Recklinghausen	v	67	51.60	7.22	—	•	•	•
Rheinberg.Budberg	v	25	51.53	6.64	—	•	•	•
Rothaargebirge	w	635	50.93	8.19	•	•	•	•
Schwerte	v	118	51.45	7.58	•	•	•	•
Soest	v	110	51.57	8.15	•	•	•	•
Unna	v	72	51.55	7.69	•	•	•	•
Voerde.Spellen	v	25	51.60	6.62	—	•	•	•
Werne	v	64	51.67	7.65	—	•	•	•
Wesel	v	25	51.67	6.63	•	•	•	•
Wesseling	v	58	50.83	6.97	—	•	•	•
Witten	v	105	51.45	7.36	—	•	•	•
<i>Norwegen</i>								
Birkenes	f	190	58.38	8.25	•	—	—	—
Jeloeya	w	5	59.43	10.60	•	—	—	—
Jergul	w	255	69.45	24.60	•	—	—	—
Kaarvatn	v	210	62.78	8.88	•	—	—	—
Nordmoen	s	200	60.27	11.10	•	—	—	—
Osen	s	440	61.25	11.78	•	—	—	—
Prestebakke	f	160	59.00	11.53	•	—	—	—
Svanvik	f	30	69.45	30.03	•	—	—	—
Voss	f	500	60.60	6.53	•	—	—	—
Zeppelinfjellet	b	474	78.90	11.88	•	—	—	—
<i>Oesterreich</i>								
Annaberg	w	880	47.87	15.32	•	—	—	—
Arnfels	w	785	46.65	15.37	•	•	•	•

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Dunkelsteinerwald	f	305	48.38	15.56	•	—	—	—
Feldkirch.Hirschgraben	v	460	47.24	9.60	—	•	—	—
Gaenserndorf	f	161	48.34	16.74	•	•	—	—
Gerlitz	b	1900	46.68	13.90	•	—	—	—
Graz.Mitte	v	355	47.07	15.44	—	•	—	—
Graz.Platte	b	661	47.11	15.44	•	—	—	—
Graz.West	v	370	47.07	15.41	—	•	—	—
Hall.Muenzergasse	v	560	47.28	11.51	—	•	—	—
Haunsberg	w	730	47.94	13.01	•	—	—	—
Hochburg	f	463	48.15	12.87	•	•	•	•
Hochgoessnitz	w	900	47.06	15.02	•	—	—	—
Illmitz	f	117	47.77	16.77	•	—	—	—
Innsbruck.Reichenau	v	570	47.27	11.42	—	•	—	—
Innsbruck.Sadrach	s	670	47.27	11.37	•	—	—	—
Innsbruck.Seegrube	b	1910	47.31	11.38	•	—	—	—
Klagenfurt.Koschatstrasse	v	440	46.63	14.30	—	•	—	—
Klagenfurt.Kreuzbergl	f	550	46.63	14.29	•	—	—	—
Kollmitzberg	w	465	48.18	14.85	•	—	—	—
Leoben	v	540	47.38	15.09	•	•	—	—
Linz.Berufsschule	v	274	48.28	14.31	—	•	—	—
Linz.Ursulinenhof	v	262	48.30	14.29	—	•	—	—
Lustenau	s	417	47.41	9.65	•	—	—	—
Masenberg	b	1137	47.35	15.88	•	—	—	—
Oberwart	s	330	47.31	16.18	•	—	—	—
Pillersdorf	w	315	48.72	15.94	•	•	—	—
Salzburg.Mirabellplatz	s	430	47.81	13.05	•	•	—	—
Schoeneben	w	920	48.71	13.95	•	—	—	—
Sonnblick	b	3105	47.05	12.96	•	—	—	—
St.Johann.im.Pongau	v	620	47.35	13.21	•	—	—	—
St.Koloman	w	1005	47.65	13.23	•	—	—	—
St.Paul.Herzogberg	f	540	46.71	14.89	•	—	—	—
St.Poelten	v	270	48.20	15.63	—	•	—	—
St.Veit.Oktoberplatz	v	475	46.77	14.36	—	•	—	—
Stixneusiedl	w	210	48.05	16.68	•	—	—	—
Sulzberg	w	1020	47.52	9.87	•	—	—	—
Traun	v	274	48.23	14.25	•	—	—	—
Villach.Tirolerbruecke	s	490	46.61	13.84	•	•	—	—
Vorhegg	w	1020	46.68	12.97	•	•	•	—
Wels	v	316	48.17	14.04	—	•	—	—
Wien.Belgradplatz	v	220	48.17	16.36	—	•	—	—
Wien.Gerichtsgasse	v	155	48.26	16.40	—	•	—	—
Wien.Hermannskogel	w	520	48.27	16.30	•	—	—	—
Wien.Hietzinger.Kai	v	195	48.19	16.30	—	•	—	—
Wien.Stephansplatz	s	173	48.21	16.37	•	•	—	—
Woergel	v	510	47.49	12.07	•	—	—	—
<i>Rheinland-Pfalz</i>								
Bad.Kreuznach	s	108	49.92	7.86	•	•	•	•
Frankenthal	v	95	49.54	8.36	•	•	•	—
Hunsrueck	w	650	49.74	7.20	•	•	•	•
Kaiserslautern	v	232	49.45	7.77	•	•	•	•

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Koblenz	v	68	50.36	7.60	•	•	•	•
Ludwigshafen.Mun	v	98	49.46	8.43	•	•	•	•
Ludwigshafen.Opp	v	91	49.52	8.40	•	•	•	•
Mainz	v	120	50.02	8.22	•	•	•	•
Neustadt	s	138	49.35	8.14	•	•	•	—
Neuwied	v	65	50.43	7.48	•	•	•	•
Pfäelzer.Wald	w	606	49.27	7.83	•	•	•	•
Speyer	v	110	49.32	8.44	•	•	•	•
Trier	v	140	49.75	6.64	•	•	•	•
Westeifel	w	680	50.27	6.38	•	•	•	•
Westerwald.Herdorf	w	480	50.77	7.97	•	•	•	•
Westerwald.Neuhaeusel	w	540	50.43	7.73	•	•	•	•
Westpfalz	w	455	49.42	7.29	•	•	•	•
Woerth	v	104	49.05	8.25	•	•	•	•
Worms	v	90	49.63	8.36	•	•	•	•
<i>Saarland</i>								
Bexbach	v	?	49.36	7.27	•	—	—	—
Diefflen	v	?	49.37	6.76	—	•	—	•
Dillingen-City	v	?	49.36	6.74	•	•	—	•
Nonnweiler	s	?	49.63	7.00	•	—	—	—
Saarbruecken-Burbach	v	?	49.25	6.95	—	•	—	•
Saarbruecken-City	v	?	49.23	6.99	—	•	—	•
Saarbruecken-SIGU	v	?	49.24	6.97	•	—	—	—
Saarlouis-Fraulautern	v	?	49.33	6.76	—	•	—	•
Voelklingen-City	v	?	49.25	6.87	•	•	—	•
Voelklingen-Heidstock	v	?	49.26	6.89	—	•	—	•
<i>Sachsen</i>								
Auerbach	v	?	50.51	12.40	—	—	—	•
Boehlen	v	130	51.21	12.39	—	—	—	•
Borna	v	145	51.13	12.50	—	—	—	—
Carlsfeld	w	896	50.43	12.61	•	—	—	•
Chemnitz-Altendorf	v	315	50.83	12.89	—	—	—	—
Chemnitz-F.-Heckert-Gebiet	v	?	50.80	12.89	—	—	—	•
Chemnitz-Mitte	s	?	50.83	12.92	•	—	—	•
Delitzsch	v	?	51.53	12.34	—	—	—	•
Doebeln	v	170	51.12	13.12	—	—	—	•
Dresden-Postplatz	s	?	51.05	13.73	•	—	—	•
Dresden-Reichenbachstr.	v	?	51.03	13.75	—	—	—	•
Eilenburg	v	100	51.46	12.64	—	—	—	•
Fichtelberg	w	1214	50.43	12.96	•	—	—	•
Freital-DRK	v	?	51.00	13.65	—	—	—	•
Goerlitz-Sued	v	?	51.13	14.98	—	—	—	•
Grimma	v	150	51.23	12.72	—	—	—	•
Hoyerswerda	v	?	51.44	14.25	—	—	—	•
Klingenthal	v	?	50.36	12.47	—	—	—	•
Leipzig-Mitte	s	?	51.35	12.38	•	•	•	•
Leipzig-Mittel	v	130	51.33	12.37	—	—	—	•
Leipzig-Nordost	v	118	51.36	12.42	—	—	—	•
Leipzig-Sued	v	?	51.32	12.38	—	•	•	—
Leipzig-Suedost	v	?	51.32	12.41	—	—	—	•

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
Leipzig-Suedwest	v	116	51.33	12.34	—	—	—	•
Leipzig-West	v	?	51.33	12.33	—	—	—	—
Meissen	v	?	51.16	13.49	—	—	—	•
Moelbis	v	150	51.20	12.50	—	—	—	•
Olbernhau	v	?	50.66	13.34	—	—	—	•
Pirna	s	?	50.96	13.94	•	•	•	•
Plauen	v	?	50.49	12.14	•	•	•	•
Radebeul-Wahnsdorf	f	246	51.12	13.68	•	•	•	•
Radebeul	v	?	51.10	13.68	—	—	—	•
Reichenbach	v	?	50.62	12.31	—	—	—	•
Roetha	v	140	51.20	12.42	—	—	—	•
Wurzen	v	130	51.37	12.74	—	—	—	•
Zinnwald	v	877	50.73	13.75	—	•	•	•
Zitt-Ost	v	?	50.89	14.82	•	—	—	—
<i>Schleswig-Holstein</i>								
Altendeich	f	1	53.67	9.59	•	•	•	•
Bargteheide	s	48	53.74	10.27	•	•	•	•
Bornhoeved	f	45	54.10	10.24	•	•	•	•
Brunsbuettel	f	?	53.91	9.23	•	•	•	•
Fehmarn	w	?	54.41	11.22	•	—	—	—
Itzehoe	f	?	53.92	9.53	•	—	—	—
Kiel-Schuetzenwall	s	17	54.32	10.12	•	•	•	•
Kiel-Stadtrand	s	25	54.35	10.11	•	—	—	—
Luebeck-Lindenplatz	s	7	53.87	10.68	•	•	•	•
Luebeck-Schoenboecken	v	16	53.87	10.64	•	•	•	•
Schleswig	f	42	54.53	9.55	•	•	•	•
St.Peter-Ording	f	?	54.33	8.62	•	—	—	—
<i>Schweden</i>								
Esränge	w	475	67.88	21.07	•	—	—	—
Norra.Kvill	w	255	57.72	15.72	•	—	—	—
Roervik	f	10	57.42	11.93	•	—	—	—
Vavihill	w	172	56.02	13.15	•	—	—	—
Vindeln	f	230	64.23	19.77	•	—	—	—
<i>Schweiz</i>								
Basel-Binningen	s	320	47.54	7.58	•	•	•	•
Bern	v	540	46.95	7.44	•	•	•	•
Chaumont	w	1140	47.05	6.98	•	•	•	•
Davos	w	1640	46.82	9.86	•	•	•	•
Duebendorf	v	430	47.40	8.62	•	•	•	•
Haerkingen	v	430	47.31	7.82	•	•	•	•
Jungfraujoch	b	3580	46.53	7.99	•	•	•	—
Laegeren	w	690	47.48	8.35	•	•	•	•
Lausanne	v	530	46.52	6.64	•	•	•	•
Lugano	s	280	46.01	8.96	•	•	•	•
Magadino	s	200	46.16	8.93	•	•	•	•
Payerne	s	490	46.80	6.94	•	•	•	•
Rigi	w	1030	47.07	8.47	•	•	•	•
Sion	v	480	46.22	7.34	•	•	•	•
Taenikon	f	540	47.47	8.90	•	•	•	•
Zuerich	s	410	47.38	8.53	•	•	•	•

Fortsetzung auf der nächsten Seite

Fortsetzung der vorigen Seite

Stationsname <sup>a</sup>	Typ <sup>b</sup>	Höhe [m] <sup>c</sup>	Lat. [°N]	Lon. [°E]	Meßgröße <sup>d</sup>			
					O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	NO	SO <sub>2</sub>
<i>TOR</i>								
Mace.Head	<i>b</i>	10	53.33	-9.90	•	-	-	-
<i>Thueringen</i>								
Erfurt	<i>v</i>	190	50.98	11.04	•	•	•	•
Gera	<i>v</i>	190	50.88	12.08	•	•	•	•
Ilmenau	<i>s</i>	?	50.68	10.92	•	•	•	•
Jena	<i>v</i>	140	50.93	11.57	•	-	-	•
Meiningen	<i>s</i>	285	50.57	10.42	•	-	-	•
Muehlhausen	<i>s</i>	200	51.21	10.47	•	-	-	•
Neuhaus	<i>w</i>	845	50.50	11.14	•	-	-	•
Saalfeld	<i>v</i>	210	50.65	11.36	•	-	-	•
Suhl	<i>v</i>	430	50.61	10.69	•	•	•	•
<i>UBA</i>								
Angermuende	<i>f</i>	56	53.33	14.00	•	-	-	-
Doberlug-Kirchhain	<i>f</i>	97	51.65	13.58	•	-	-	-
Helgoland	<i>w</i>	50	54.18	7.87	•	-	-	-
Herleshausen	<i>f</i>	380	51.02	10.16	•	-	-	-
Kyritz	<i>f</i>	40	52.93	12.42	•	-	-	-
Lehnmuehle	<i>f</i>	877	50.73	13.75	•	-	-	-
Leinfelde	<i>f</i>	356	51.40	10.32	•	-	-	-
Lindenberg	<i>w</i>	98	52.27	14.42	•	-	-	-
Melpitz	<i>s</i>	86	51.33	12.93	•	-	-	-
Rottenburg	<i>f</i>	427	48.43	8.97	•	-	-	-
Schleiz	<i>f</i>	500	50.57	11.82	•	-	-	-
Schwerin	<i>f</i>	59	53.65	11.38	•	-	-	-
Starnberg	<i>f</i>	729	48.02	11.35	•	-	-	-
Teterow	<i>f</i>	46	53.77	12.62	•	-	-	-

<sup>a</sup>Die Stationen sind nach Datenquellen geordnet (also z. B. den entsprechenden Umweltämtern oder Organisationen); die Schreibweise entspricht dem Namen des Datenfiles. Doppelt vertretene Stationen sind nur einmal in der Liste berücksichtigt.

<sup>b</sup>Definition der Typenklassen (Erläuterungen siehe Abschnitt 2.3) *b*: Berg (remote); *w*: Wald (rural); *f*: Fläche (suburban); *s*: Stadt (urban); *v*: Verkehr (traffic).

<sup>c</sup>Höhe über NN.

<sup>d</sup>Meßdaten in halbstündiger oder stündlicher Auflösung für die entsprechende Spezies liegen vor.

## Anhang B

# Klimatologische Anfangs- und Randwerte von Spurengasen

Im Rahmen dieser Arbeit wurde u. a. ein neues Verfahren für die Bestimmung der Anfangs- und Randwerte für die prognostischen Spurenstoffe des CTMs aus klimatologischen Daten erarbeitet. Zum einen besteht dieses aus einer neuen Struktur und teilweise überarbeiteten Werten der vorgegebenen Standardprofile, wie im folgenden Abschnitt beschrieben. Zum anderen erfolgt die Übertragung der klimatologischen Daten auf die aktuellen meteorologischen Verhältnisse nach einer aufwendigeren Methode als bisher (Abschnitt B.2). Des weiteren findet die Bestimmung der Randwerte nicht mehr während des CTM-Laufes statt, sondern in einem Präprozessor zusammen mit der Aufbereitung der meteorologischen Daten für das CTM.

### B.1 Klimatologische Profile

Anhand der Arbeit von Schell (1996) und weitergehender Literatur wurden die bisher benutzten Profile zur Ermittlung der Anfangs- und Randwerte für die Spurengase im CTM überarbeitet. Hilfreich waren dabei auch die von der „STRATFLUT“-Gruppe benutzten Werte (Lippert, pers. Mitteilung, 1997), da darin Erfahrungen mit der unteren Stratosphäre enthalten sind, und Kommentare bzgl. der Konsistenz der verschiedenen Stoffe von Zimmermann (pers. Mitteilung). Aufgrund der dünnen Datenlage wurde die Zahl von einem Profil pro Spurengas beibehalten, für eine Abhängigkeit von der geographischen Lage oder der Jahreszeit reichen die in der Literatur zu findenden Messungen nicht aus. Da mit dem in Abschnitt B.2 beschriebenen Verfahren versucht wird, zumindest teilweise eine Anpassung an die aktuellen meteorologischen Verhältnisse zu gewährleisten, sind die Standardprofile so formuliert, daß sie einer einheitlichen „klimatologischen“ Tropopausenhöhe von  $9\text{ km}$  und einer Höhe der planetaren Grenzschicht (PBL) von  $1\text{ km}$  entsprechen. Der absolute Wert dieser Höhenangaben ist in soweit nicht von Bedeutung, als diese Höhen später an die aktuellen Verhältnisse angepaßt werden. Die Profile bestehen aus 20 Stützstellen zwischen dem Meeresniveau und einer Höhe von  $34\text{ km}$  mit einem vertikalen Abstand der Stützpunkte zwischen  $0.5\text{ km}$  am Boden und  $6.0\text{ km}$  in der Stratosphäre. Eine höhere Auflösung in Bodennähe ist nicht erforderlich, da einerseits die Verhältnisse zu variabel sind oder klimatologische Daten fehlen und andererseits die Werte der Grenzschicht für den Ferntransport von geringer Bedeutung sind. Die Obergrenze der Profile ermöglicht Simulationen mit einem oberen Rand des Modellgebietes bis  $10\text{ hPa}$ .

Im Folgenden sind die gegenüber den alten Daten vorgenommenen Änderungen dokumentiert,

so daß das Zustandekommen der in Abbildung B.1 gezeigten Profile nachvollzogen werden kann und anhand neuer Literatur weitere Anpassungen erwägt werden können.

1. **SO<sub>2</sub> Schwefeldioxid** wie bisher;
2. **SULF Sulfat (Schwefelsäure, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)** ähnlich STRATFLUT;
3. **NO<sub>2</sub> Stickstoffdioxid** untere Troposphäre ähnlich NO, obere Troposphäre ca. 50 % von NO (Rohrer, 1996), in der Stratosphäre ähnlich STRATFLUT;
4. **NO Stickstoffmonoxid** nach Drummond et al. (1988), nur in der PBL etwas höhere Werte (bei Rohrer (1996) noch höhere Konzentrationen);
5. **O<sub>3</sub> Ozon** am Boden 30 ppb (Simmonds et al., 1996), Profil wie bei Marengo und Said (1989), oberhalb der Tropopause aus Schwarz und Steinbrecht (1996), Literaturdaten (wie z. B. bei Beekmann et al., 1994) sind noch unzureichend für eine Bestimmung des Profiles nach der Korrelation von Ozon mit der potentiellen Vorticity;
6. **HNO<sub>3</sub> Salpetersäure (nitric acid)** ähnlich STRATFLUT, oberhalb der Tropopause erfolgt ein früherer Anstieg (Schell, 1996), konsistent zu NO<sub>x</sub>;
7. **H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Wasserstoffperoxid** ähnlich STRATFLUT, ausgeprägter Knick an der Tropopause (Sprung an der Tropopause aufgrund der Feuchteabnahme), niedrige Werte der PBL nach Tremmel et al. (1993), Profil bis ca. 5 km ähnlich Daum et al. (1990);
8. **ALD höhere Aldehyde (CH<sub>3</sub>CHO, acetaldehyd)** nach Arlander et al. (1992), oberhalb 5 km in etwa wie ETH (Bodenwert nach Slemr et al., 1996, wäre 0.7 ppb);
9. **HCHO Formaldehyd** nach Arlander et al. (1992), oberhalb 10 km extrapoliert, noch höher stärkere Abnahme als früher, Bodenwert ist ungefähr konsistent zu Slemr et al. (1996);
10. **OP1 Methylhydrogenperoxid (CH<sub>3</sub>OOH)** wie bisher, betontere PBL-Obergrenze, stärkere Abnahme in der Stratosphäre als H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>;
11. **OP2 höhere organische Peroxide (C<sub>n</sub>H<sub>2n+1</sub>OOH,  $\bar{n} = 2$ )** ähnlich wie früher, ähnlich OP1 betontere PBL-Obergrenze, in der Stratosphäre auf null zurückgehend;
12. **PAA Persäuren (CH<sub>3</sub>COOOH)** nur Endprodukt, konsistent zu PAN, stärkere Abnahme ab der Tropopause mit der Höhe als PAN;
13. **ORA1 Ameisensäure (formic acid, HCOOH)** nur Endprodukt, teilweise nach der Übersicht in Chebbi und Carlier (1996);
14. **ORA2 höhere organische Säuren (acetic acid, CH<sub>3</sub>COOH)** nur Endprodukt, wie ORA1, teilweise nach der Übersicht in Chebbi und Carlier (1996);
15. **NH<sub>3</sub> Ammoniak (ammonia)** nach Schell (1996), weitere Abnahme mit der Höhe oberhalb Tropopause bis auf null;
16. **N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Distickstoffpentoxid** wie bisher;
17. **NO<sub>3</sub> Stickstofftrioxid (nitrate radical)** wie bisher;
18. **PAN Peroxiacetylnitrat und höhere PANs (CH<sub>3</sub>CO<sub>3</sub>NO<sub>2</sub>)** nach Schell (1996) und z. B. Roberts (1990), höhere PBL-Höhe;

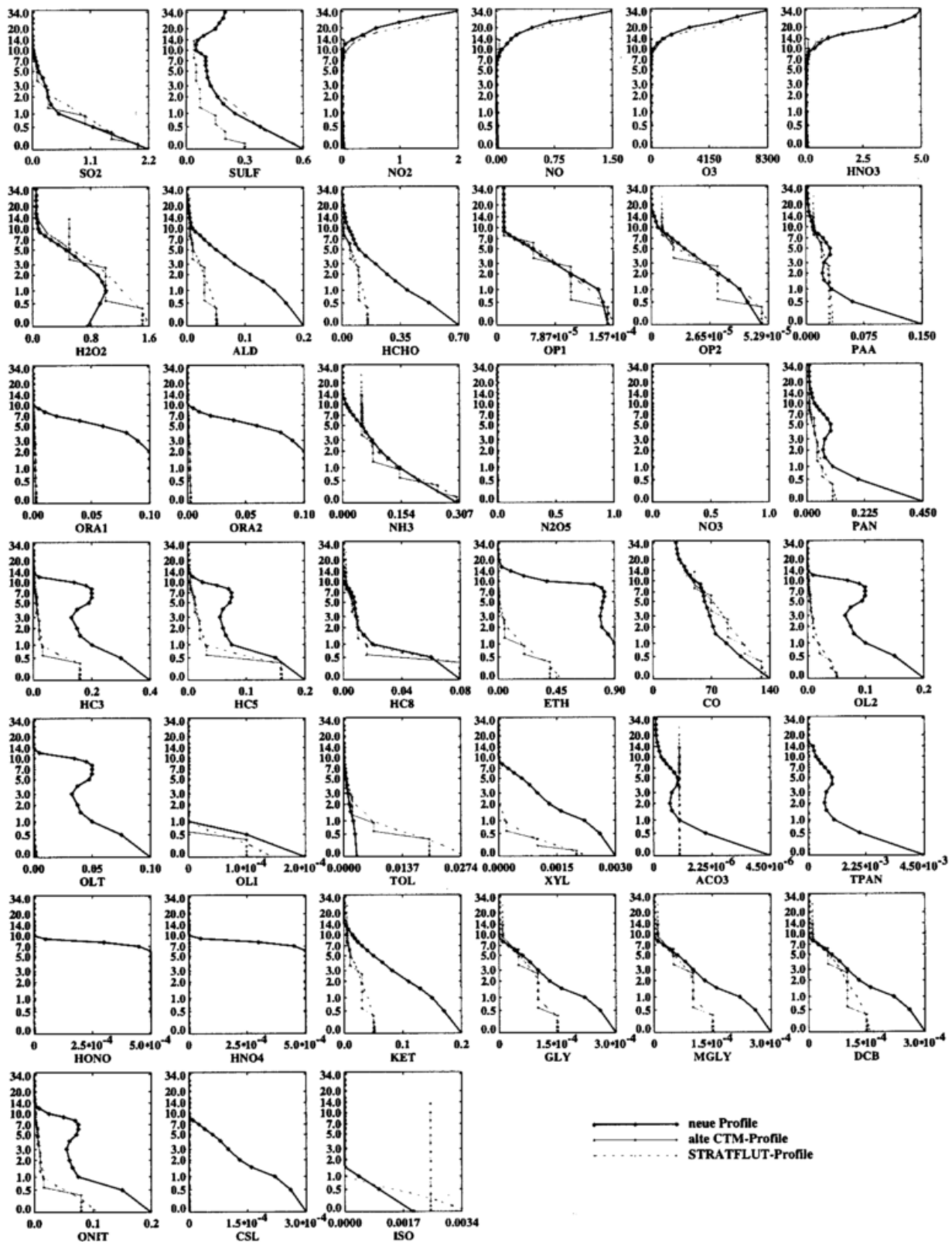


Abbildung B.1: Klimatologische Vertikalprofile der im CTM prognostizierten Spurengaskonzentrationen; aufgetragen sind Konzentrationen in *ppbv* gegen die Höhe über dem Meeresspiegel in *km*; dick gezeichnet sind die für diese Arbeit ermittelten neuen Profile, dünn, durchgezogen die alten von EURAD benutzten und dünn, gestrichelt die von STRATFLUT benutzten Profile.

19. **HC3 Alkane1** ( $C_nH_{2n+2}$ ,  $\bar{n} = 2.9$ , **Propan**) Profil nach Rudolph (1988) und Schell (1996), auch Rohrer (1996), in der Stratosphäre ganz auf null zurückgehend, ungefähr konstant in der Troposphäre, Bodenwerte nach Laurila und Hakola (1996), Lindskog und Moldanova (1994) und Rudolph und Johnen (1990);
20. **HC5 Alkane2** ( $C_nH_{2n+2}$ ,  $\bar{n} = 4.8$ , **Pentan**) Profil nach Rudolph (1988), Rohrer (1996), Schell (1996) und Singh und Zimmerman (1992), ähnlich HC3, in niedrigerer Höhe auf null zurückgehend, Bodenwerte nach Laurila und Hakola (1996), Lindskog und Moldanova (1994) und Rudolph und Johnen (1990);
21. **HC8 Alkane3** ( $C_nH_{2n+2}$ ,  $\bar{n} = 7.9$ , **Oktan**) ähnlich HC3 und HC5, in noch niedrigerer Höhe auf null zurückgehend, ähnlich den alten Profilen;
22. **ETH Ethan** ( $C_2H_6$ ) Profil nach Rudolph (1995), oberhalb Anpassung an altes Profil (Jahreszeiten- und Breitenabhängigkeit z. B. bei Rudolph, 1995, zu finden);
23. **CO Kohlenmonoxid** Boden  $< 150$  ppb (Simmonds et al., 1996), ähnlich vorher, geringere Werte in unterer Troposphäre (Rohrer, 1996, Marenco et al., 1984);
24. **OL2 Ethen** ( $C_2H_4$ ) Rudolph (1988), Schell (1996), auch Rohrer (1996), ca. 50 % von HC3, schnellere Abnahme mit der Höhe als ETH, ähnlich HC3;
25. **OLT Alkene1** ( $C_nH_{2n}$ ,  $\bar{n} = 3.8$ , **Propen**) ca. 50 % von OL2 nach Rudolph (1988), auch Rohrer (1996), Bodenwerte nach Laurila und Hakola (1996), Lindskog und Moldanova (1994) und Rudolph und Johnen (1990);
26. **OLI Alkene2** ( $C_nH_{2n}$ ,  $\bar{n} = 4.8$ , **Penten**) ähnlich wie früher;
27. **TOL Aromaten1** (u. a. Toluole,  $CH_3C_6H_5$ ) 10times[GLY];
28. **XYL Aromaten2** (u. a. Xylole,  $(CH_3)_2C_6H_4$ ) wie TOL;
29. **ACO3 Acetylperoxyradikal** ( $CH_3CO_3$ )  $10^{-5} \times [PAN]$ ;
30. **TPAN Trans-PAN** ( $CHOCH=CHCO_3NO_2$ )  $10^{-2} \times [PAN]$ , weniger weit in die Stratosphäre reichend;
31. **HONO salpetrige Säure (nitrous acid)** ungefähr  $0.05 \times [NO]$  in der Troposphäre,  $< 10^{-3}$  ppb am Boden;
32. **HNO4 Persalpetersäure** wie HONO;
33. **KET Ketone** ( $C_nH_{2n+1}COCH_3$ ,  $\bar{n} = 1.2$ , **Aceton**) unterhalb der Tropopause wie ALD, oberhalb Verlauf ähnlich HC3 auf null zurückgehend (Bodenwert nach Slemr et al., 1996, wäre 2.6 ppb);
34. **GLY Glyoxal** ( $(CHO)_2$ ) Verlauf wie früher, mit TOL abgestimmt, ab der Tropopause auf null zurückgehend;
35. **MGLY Methylglyoxal** ( $CH_3COCHO$ ) wie GLY;
36. **DCB ungesättigte Dicarbylyle** ( $C_nH_{2n+1}(CHO)_2$ ,  $\bar{n} = 2$ ) wie GLY;
37. **ONIT andere organische Nitrate** ( $C_nH_{2n+1}ONO_2$ ,  $\bar{n} = 4$ ) wie HC5;
38. **CSL Phenole/Kresole** ( $HOC_6H_4CH_3$ ) wie GLY;
39. **ISO Isopren** ( $C_5H_8$ ) oberhalb der PBL auf null, Bodenwert nach Laurila und Hakola (1996);

## B.2 Aktualisierung der klimatologischen Profile

Das bisher im EURAD-Modell angewandte Verfahren zur Bestimmung der Anfangs- und Randwerte der chemischen Konstituenten bestand darin, in einer DATA-Anweisung global festzulegen, welcher Modellschicht welcher der sechs Werte der Standardprofile zugewiesen wird. Dieses Verfahren wird durch das im Folgenden beschriebene ersetzt. Die weiteren im CTM optional zur Verfügung stehenden Methoden — z. B. die Kopplung der  $H_2O_2$ -Konzentrationen an die spezifische Feuchte — sind auch weiterhin möglich.

Ziel des neuen Verfahrens ist eine Kopplung der Anfangs- und Randwerte an die aktuelle meteorologische Situation. Diese wird durch verschiedene Parameter, die Einfluß auf die Profile haben können, repräsentiert. Aktuelle Parameter sind die Höhen in  $m$  der Modellschichten, die Geländehöhe, die Höhe der PBL sowie die Höhe der Tropopause. Der Begriff „Tropopause“ wird nur der Einfachheit halber benutzt. Die Tropopause entspricht hier der Schicht, in der vom Modelloberrand aus gesehen die Ozonkonzentration zum ersten Mal auf einen Wert von  $100\text{ ppbv}$  absinkt. Oberhalb dieser Höhe ist das Ozonprofil sehr gut mit dem Profil der potentiellen Vorticity korreliert (siehe z. B. Beekmann et al., 1994, Ebel et al., 1991). Das Profil der potentiellen Vorticity oberhalb der so definierten Tropopause geht ebenfalls als Parameter in das Verfahren ein. Klimatologische Eingangsdaten sind die im vorigen Abschnitt beschriebenen Standardprofile mit einheitlichen Höhen der PBL und der Tropopause (z. B. hier  $1\text{ km}$  bzw.  $9\text{ km}$ ). Dabei weist das Ozonprofil in Tropopausenhöhe den entsprechenden Wert von  $100\text{ ppbv}$  auf. Das Verfahren erlaubt eine Berücksichtigung von breiten- oder jahreszeitabhängigen Profilen, aufgrund des Mangels an klimatologischen Informationen über die Verteilung der Spurengase wird diese Option derzeit nicht genutzt.

Das Verfahren besteht nun darin, jeder Modellschicht der Säule, die zu einem Punkt des horizontalen Gitters gehört, aktuell eine entsprechende Höhe zuzuweisen, in der die Standardprofile ausgewertet werden. Die Konzentrationen der klimatologischen Daten in diesen Höhen — linear interpoliert aus den umgebenden Stützpunkten der Profile — werden als Anfangs- oder Randwerte der Modellschicht angenommen. Diese Abbildung erfolgt in drei verschiedenen Schichten (Stratosphäre, freie Troposphäre und PBL) nach unterschiedlichen Methoden mit stetigen Übergängen an den Schichtgrenzen:

- 1. Stratosphäre:** mittels der Korrelation zwischen der potentiellen Vorticity und der Ozonkonzentration wird ein Ozonprofil berechnet, das der aus der aktuellen Meteorologie bestimmten potentiellen Vorticity der betreffenden Gitterpunktssäule entspricht. Es besteht die Möglichkeit, ein vertikales Profil für die Werte der Korrelation vorzugeben, mangels gesicherter Daten wird derzeit aber ein konstanter Wert angenommen. Bei Rechnungen mit einem Modelloberrand von  $10\text{ hPa}$  ist insoweit Vorsicht geboten, als daß z. B. Danielsen (1985) zeigt, daß die Korrelation oberhalb  $50\text{ hPa}$  abrupt in eine Antikorrelation übergeht. Die Modellschichten in der Stratosphäre werden nun den Höhen der Standardprofile zugewiesen, in denen die Konzentrationen des Standardozonprofils gleich denen des aktuellen Ozonprofils sind.
- 2. freie Troposphäre:** hier erfolgt die Zuweisung durch eine Streckung oder Dehnung des Standardprofils. Bezüglich einer Höhenkoordinate in  $m$  wird die Modellschicht zwischen den aktuellen Höhen der PBL und der Tropopause linear auf den Bereich der klimatologischen Profile zwischen den Standardhöhen der PBL und der Tropopause abgebildet.
- 3. PBL:** in der PBL erfolgt ebenfalls eine lineare Abbildung entsprechender Höhenbereiche.

Hier ist die Untergrenze der Schichten jeweils die Geländehöhe am Gitterpunkt, die Obergrenze entspricht der aktuellen bzw. der klimatologischen Höhe der PBL.



## **Anhang C**

# **Farbige Abbildungen**

In diesem Anhang sind die farbigen Abbildungen der Kapitel 5, 6 und 7 zusammengefaßt.

### Index aus Beobachtungen und Modelldaten für den 26. Juli 1994

00 UTC 14 UTC

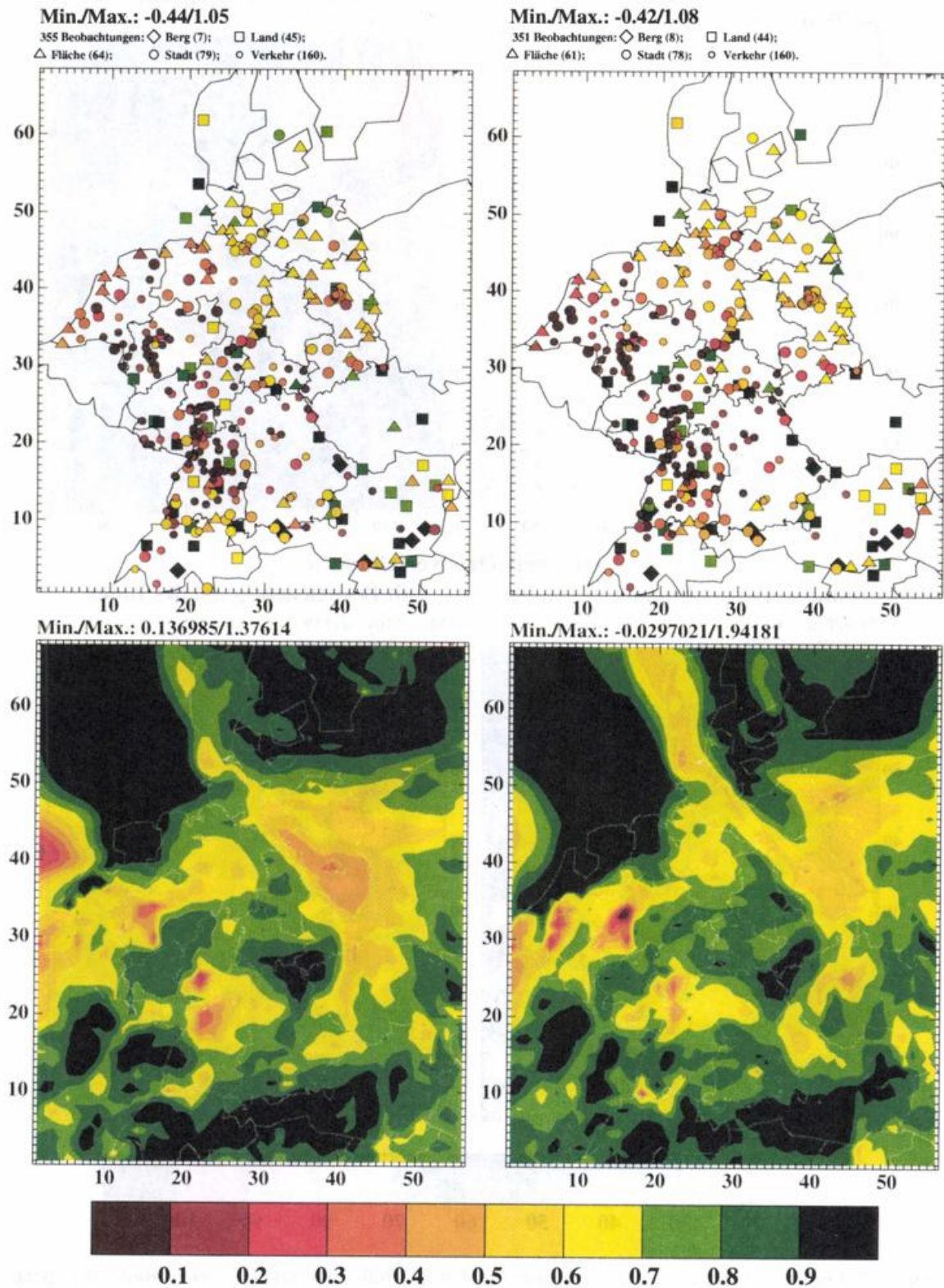


Abbildung C.1: Indexwerte aus Messungen (oben) und Modellsimulation (unten) ermittelt für die beiden Analysetermine 26. Juli 1994 00 UTC (links) und 14 UTC (rechts).

### Ozonmischungsverhältnisse am 26. Juli 1994 00 UTC [ppbv]

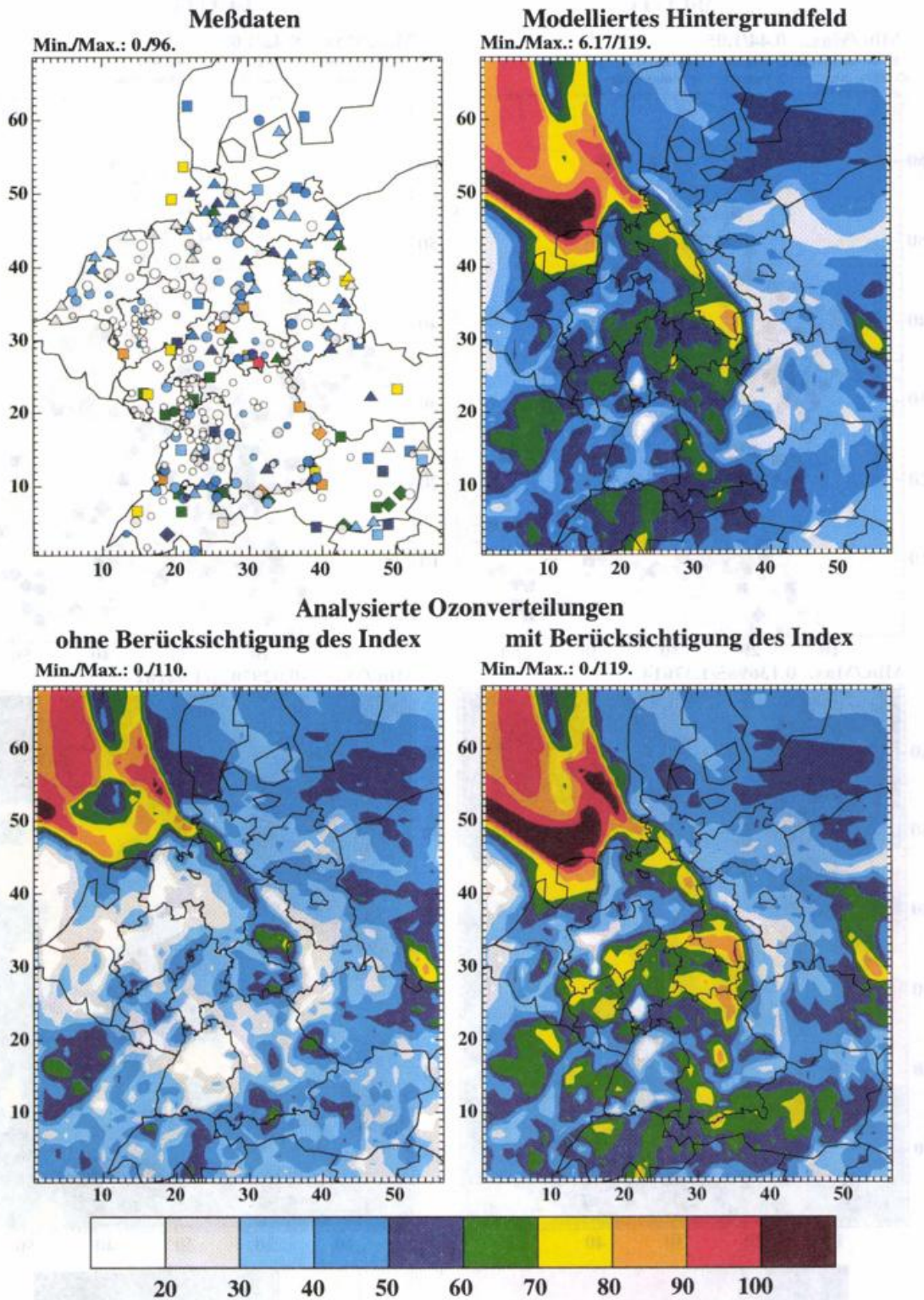


Abbildung C.2: Ozonmischungsverhältnisse in ppbv für den 26. Juli 1994 00 UTC; obere Reihe: Eingangsdaten für die Analyse aus Messungen (links) und Modellsimulation (rechts); untere Reihe: analysierte Ozonkarten, links ohne Berücksichtigung des Index, rechts nach dem in Unterabschnitt 5.4.1 beschriebenen Verfahren mit Berücksichtigung des Index.

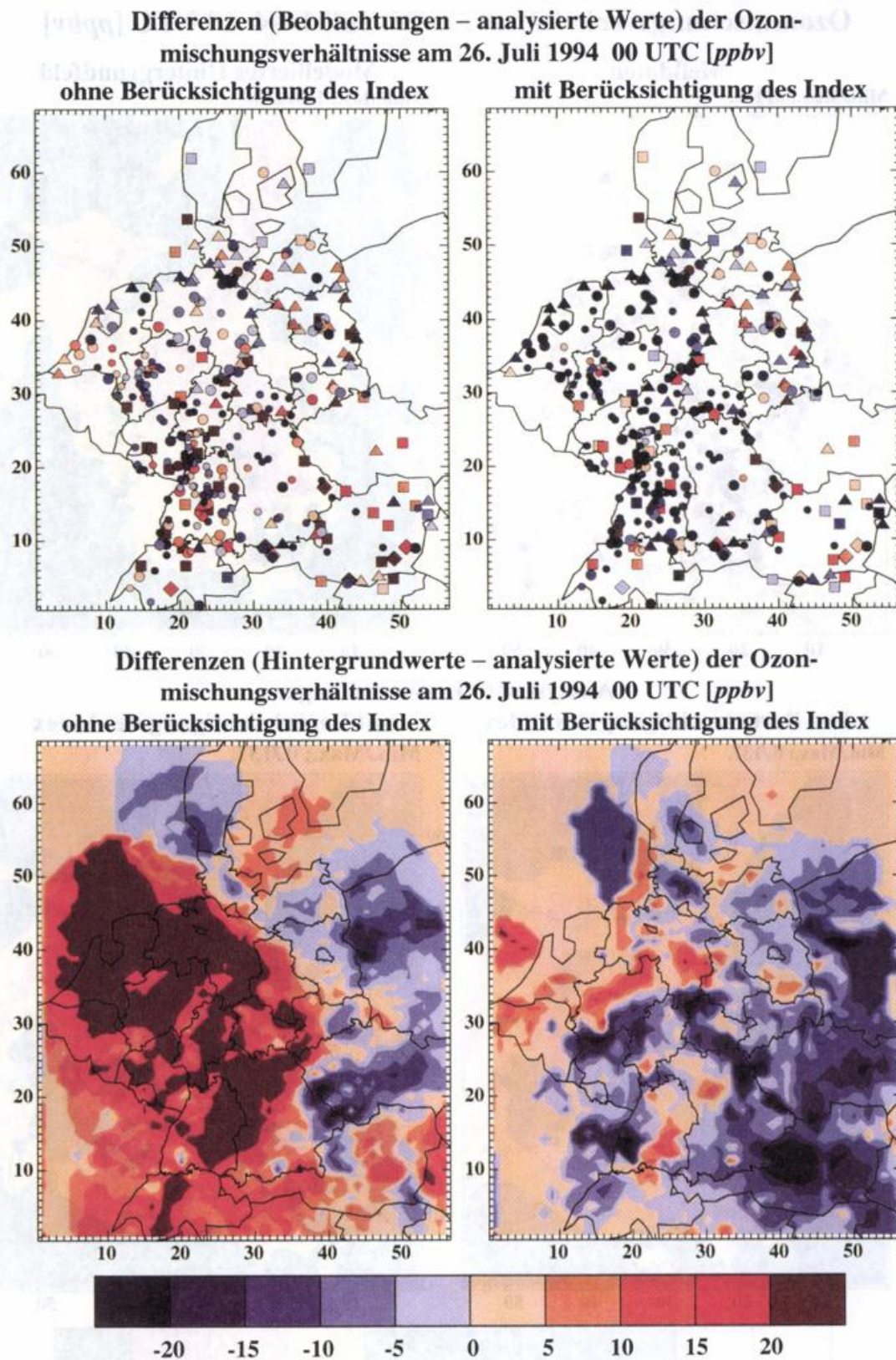


Abbildung C.4: Differenzen zwischen Messungen und Analysen (oben) und zwischen Hintergrundfeld und Analysen (unten) in ppbv für den Termin 26. Juli 1994 00 UTC; jeweils links für die Analysen ohne und rechts mit Indexwichtung.

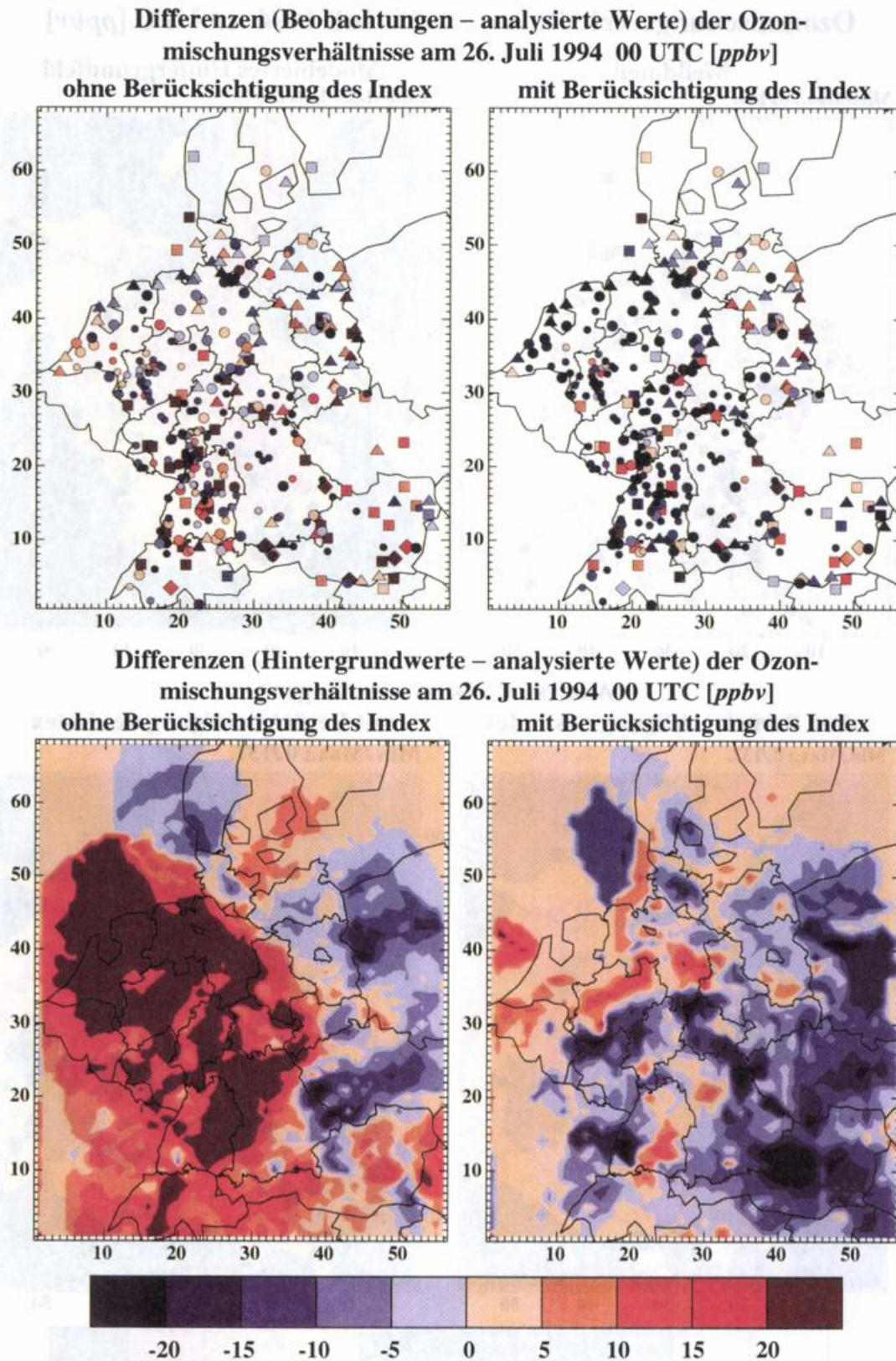
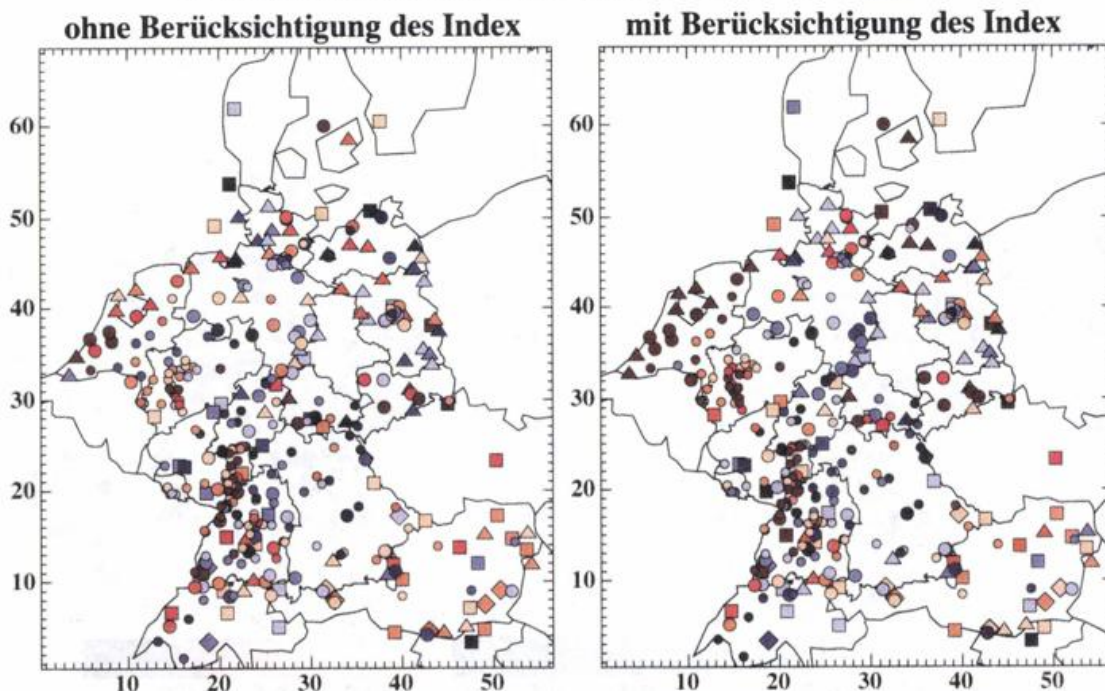


Abbildung C.4: Differenzen zwischen Messungen und Analysen (oben) und zwischen Hintergrundfeld und Analysen (unten) in ppbv für den Termin 26. Juli 1994 00 UTC; jeweils links für die Analysen ohne und rechts mit Indexwichtung.

**Differenzen (Beobachtungen – analysierte Werte) der Ozonmischungsverhältnisse am 26. Juli 1994 14 UTC [ppbv]**



**Differenzen (Hintergrundwerte – analysierte Werte) der Ozonmischungsverhältnisse am 26. Juli 1994 14 UTC [ppbv]**

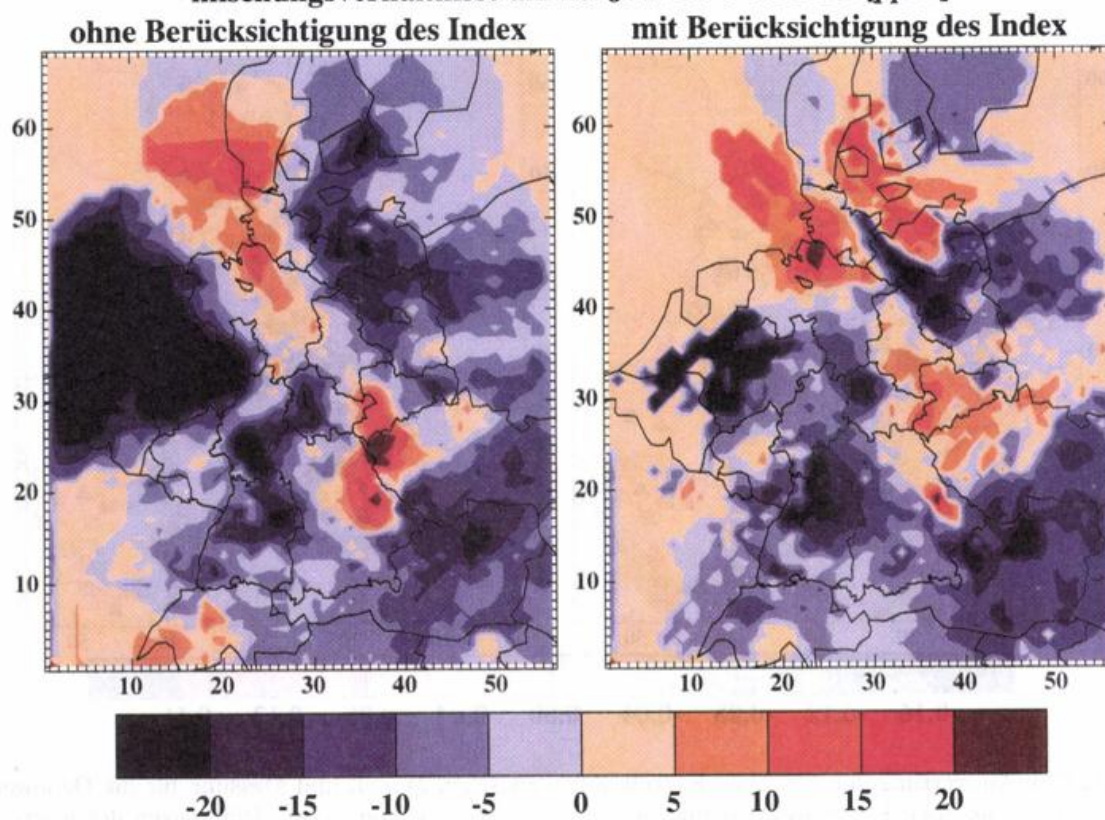


Abbildung C.5: Wie Abbildung C.4 für den 26. Juli 1994 14UTC.

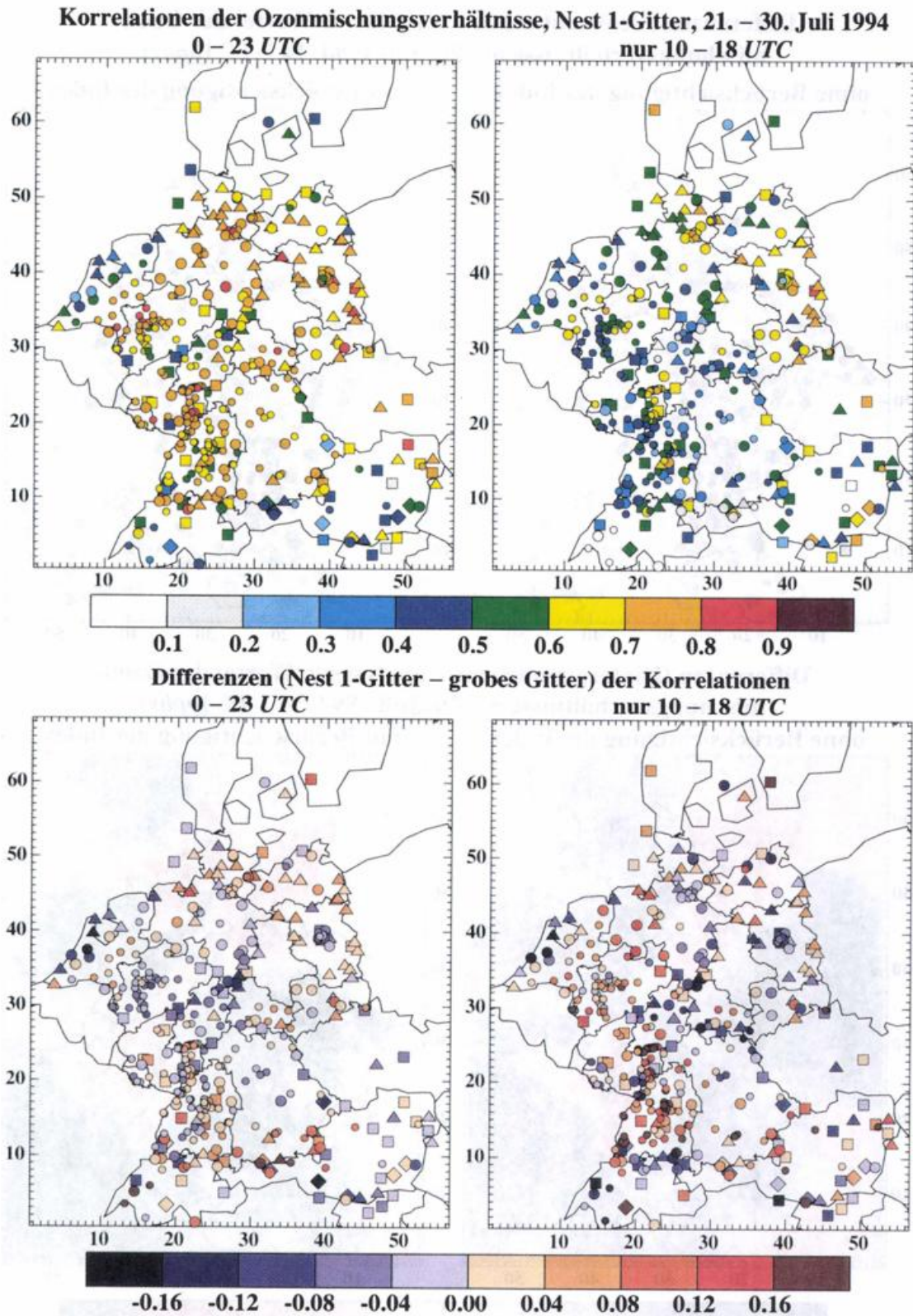


Abbildung C.6: Auswertung der zeitlichen Korrelationen zwischen Modell und Messung für die Ozonwerte der simulierten Episode; oben Korrelationskoeffizienten für das Nest 1-Gitter; unten Differenzen der Korrelationskoeffizienten für Nest 1 und grobes Gitter; links für die gesamten Zeitreihen, rechts für die Tageswerte 10 – 18 UTC; die Typenkodierung der Stationen ist wie in Abbildung 6.3.

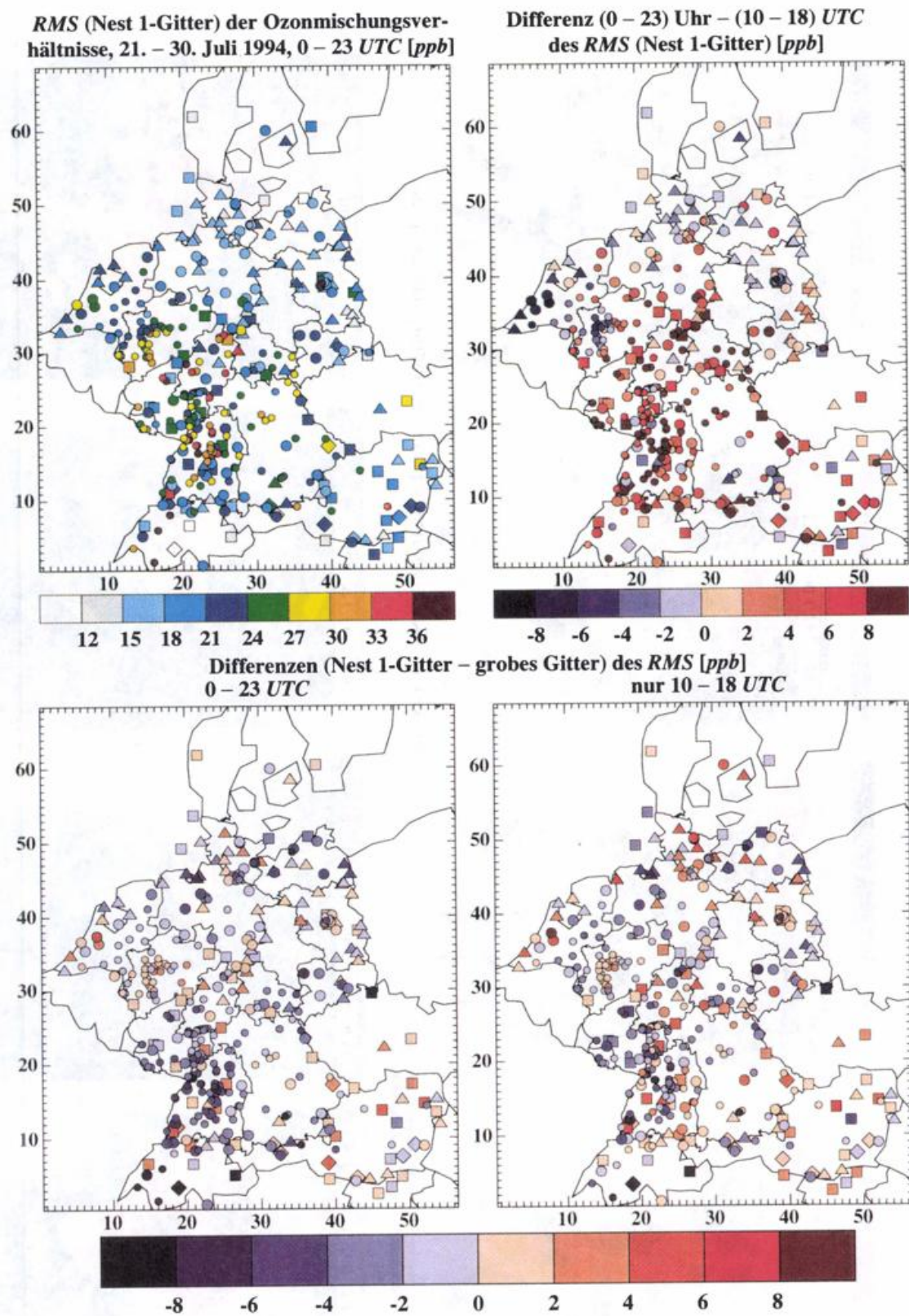


Abbildung C.7: Auswertung des *RMS* für die Ozonwerte der simulierten Episode; oben rechts der *RMS* des Nest 1-Gitters für den gesamten Zeitraum; oben links für das Nest 1-Gitter die *RMS*-Differenz der gesamten Zeitreihen und des Zeitfensters 10 - 18 UTC; unten *RMS*-Differenzen zwischen Nest 1 und grobem Gitter, links gesamte Zeitreihe, rechts Zeitfenster; Werte in *ppbv*.

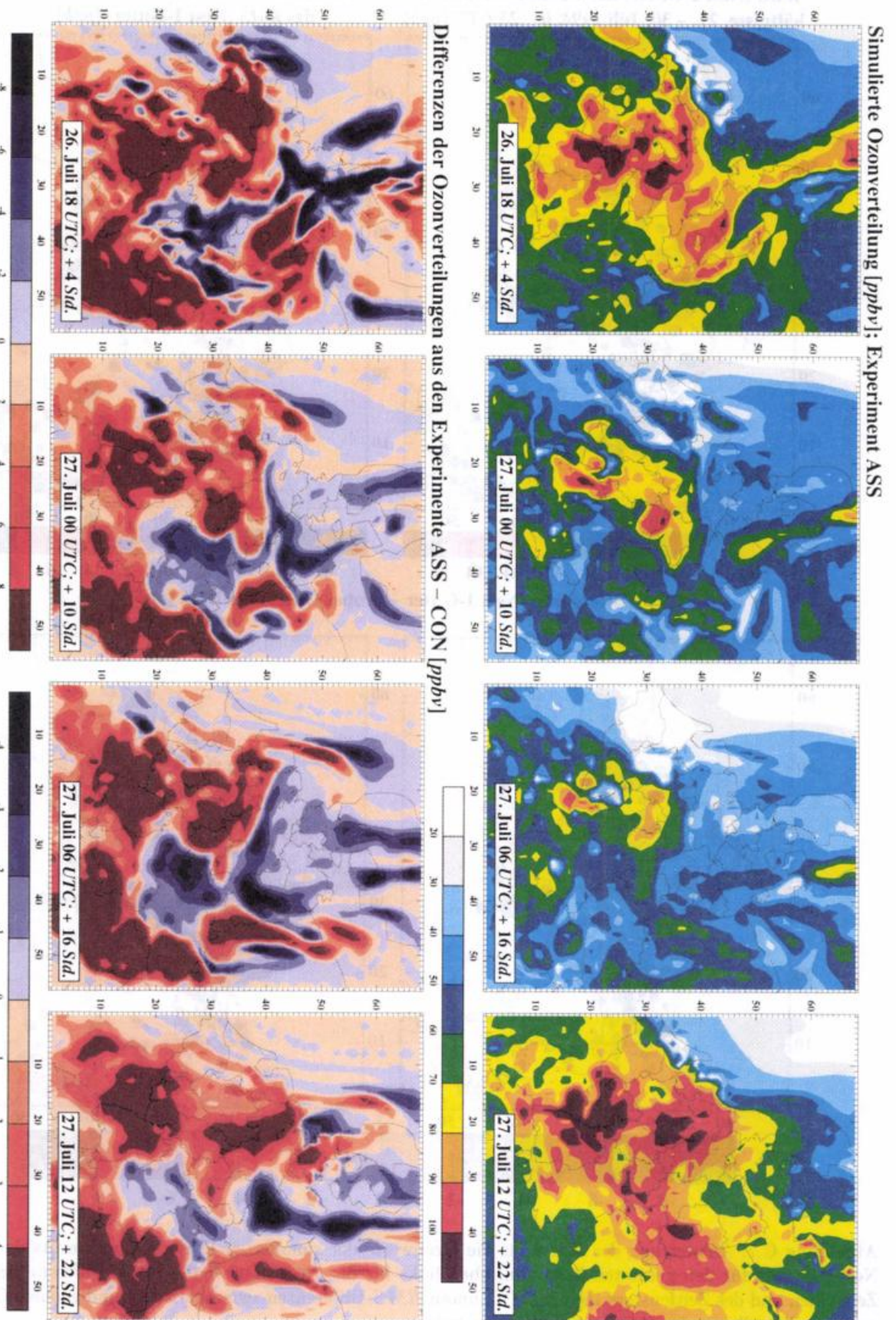


Abbildung C.8: Verteilung des simulierten bodennahen Ozons (Experiment ASS) sowie der Differenzen zum Kontrolllauf CON für die Vorhersagen 4, 10, 16 und 22 Stunden nach der Assimilation jeweils in ppbv.

# Literaturverzeichnis

- Albert-Lévy, 1878:** *Annuaire de l'Observ. de Montsouris*. Gauthier-Villars, Paris.
- Anthes, R. A., Y.-H. Kuo, E.-Y. Hsie, S. Low-Nam und T. W. Bettge, 1989:** Estimation of skill and uncertainty in regional numerical models. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, **115**, 763 – 806.
- Arakawa, A., und V. R. Lamb, 1977:** Computational design of the basic dynamical process of the UCLA general circulation model. *Methods in Computational Physics*, **17**, Academic Press, 173 – 265.
- Arlander, D. W., U. Schmidt und D. H. Ehhalt, 1992:** *Distribution of C<sub>1</sub> – C<sub>2</sub> Aldehydes in the Free Troposphere*. Berichte des Forschungszentrums Jülich, **2650**, Jülich, 1992.
- Balzer, W., D. Loyola, S. W. Dech und R. Spurr, 1996:** Prozessierung von ERS-2-Daten des „Global Ozone Monitoring Experiment“ für Anwendungen in der Atmosphärenforschung. *Tagungsband: 13. Nutzerseminar des Deutschen Fernerkundungsdatenzentrums der DLR*, DLR-Mitteilung **96-05**, Oberpfaffenhofen, 43 – 54.
- Barnes, S., 1964:** A technique for maximizing details in numerical map analysis. *J. Appl. Meteor.*, **3**, 395 – 409.
- Barnes, S., 1978:** Oklahoma thunderstorms on 29 – 30 April 1970. Part I: Morphology of a tornadic storm. *Mon. Wea. Rev.*, **106**, 673 – 684.
- Beekmann, M., G. Ancellet und G. Mégie, 1994:** Climatology of tropospheric ozone in southern Europe and its relation to potential vorticity. *J. Geophys. Res.*, **99**, 12841 – 12853.
- Benjamin, S. G., und N. L. Seaman, 1985:** A simple scheme for objective analysis in curved flow. *Mon. Wea. Rev.*, **113**, 1184 – 1198.
- Bergthorsson, P., und B. Döös, 1955:** Numerical weather map analysis. *Tellus*, **7**, 329 – 340.
- Bjerknes, V., 1911:** *Dynamic meteorology and hydrography. Part II. Kinematics*. Carnegie Institute, Gibson Bros., New York.
- Bott, A., 1989a:** A positive definite advection scheme obtained by nonlinear renormalization of the advective fluxes. *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1006 – 1015.
- Bott, A., 1989b:** Reply. *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 2633 – 2636.
- Brathseth, A., 1986:** Statistical interpolation by means of successive corrections. *Tellus*, **38A**, 439 – 447.

- Brewer, A. W., und J. R. Milford, 1960: The Oxford-Kew Ozonesonde. *Proc. R. Soc. London. A*, **256**, 470 – 495.
- Casado, L. S., S. Rouhani, C. A. Cardelino und A. J. Ferrier, 1994: Geostatistical analysis and visualization of hourly ozone data. *Atmos. Environ.*, **28**, 2105 – 2118.
- Cauer, H., 1935: Bestimmung des Gesamtoxidationswertes des Nitrits, des Ozons und des Gesamtchlorgehaltes in roher und vergifteter Luft. *Z. Anal. Chem.*, **103**, 321 – 324, 385 – 416.
- Chang, J. S., R. A. Brost, I. S. A. Isaksen, S. Madronich, P. Middleton, W. R. Stockwell und C. J. Walcek, 1987: A three-dimensional Eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulation. *J. Geophys. Res.*, **92**, 14681 – 14700.
- Chebbi, A., und P. Carlier, 1996: Carboxylic acids in the troposphere, occurrence, sources, and sinks: a review. *Atmos. Environ.*, **30**, 4233 – 4249.
- Corsmeier, U., und H. Vogel, 1998: Konzentration von Kraftfahrzeugemissionen und Ozon im Nahbereich einer Autobahn. In *Professor Dr. Franz Fiedler zum 60. Geburtstag*. (Hrsg.: K. D. Beheng) Wissenschaftliche Berichte des Instituts für Meteorologie und Klimaforschung der Universität Karlsruhe, Nr. 21.
- Cressman, G., 1959: An operational objective analysis system. *Mon. Wea. Rev.*, **87**, 367 – 374.
- Crutzen, P. J., N. F. Elansky, M. Hahn, G. S. Golitsyn, C. A. M. Brenninkmeijer, D. H. Scharffe, I. B. Belikov, M. Maiss, P. Bergamaschi, T. Röckmann, A. M. Grisenko und V. M. Sevostyanov, 1998: Trace gas measurements between Moscow and Vladivostok using the Trans-Siberian Railroad. *J. Atmos. Chem.*, **29**, 179 – 194.
- Daley, R., 1991: *Atmospheric Data Analysis*. (Hrsg.: J. T. Houghton, M. J. Rycroft und A. J. Dressler), Cambridge University Press, Cambridge.
- Danielsen, E. F., 1985: Ozone transport. In *Ozone in the Free Atmosphere*, (Hrsg.: R. C. Whitten und S. S. Prasad), Van Nostrand Reinhold Company Inc., New York, USA, 123 – 159.
- Daum, P. H., L. I. Kleinmann, A. J. Hills, A. L. Lazrus, A. C. D. Leslie, K. Busness und J. Boatman, 1990: Measurement and interpretation of concentrations of H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> and related species in the upper Midwest during summer. *J. Geophys. Res.*, **95**, 9857 – 9871.
- Dennis, R. L., D. W. Byun, J. H. Novak, K. J. Galluppi und C. J. Coats, 1996: The next generation of integrated air quality modeling: EPA's models-3. *Atmos. Environ.*, **30**, 1925 – 1938.
- Derwent, R. G., und T. J. Davies, 1994: Modelling the impact of NO<sub>x</sub> or hydrocarbon control on photochemical ozone in Europe. *Atmos. Environ.*, **28**, 2039 – 2052.
- Drummond, J. W., D. H. Ehhalt und A. Volz, 1988: Measurements of nitric oxide between 0 – 12 km altitude and 67°N to 60°S latitude obtained during STRATOZ III. *J. Geophys. Res.*, **93**, 15831 – 15849.
- Ebel, A., H. Hass und H. Petry, 1994: Correlation distances for air pollutants and implications for mesoscale modelling. In: *EMEP/CCC-Report*, **2/94**, 201 – 207.

- Ebel, A., H. Feldmann, F. Fiedler, H. Hass, H. J. Jakobs, O. Klemm, K. Nester, E. Schaller, A. Schwartz und J. Werhahn, 1995: Contributions to the evaluation of chemical transport models within the SANA project. In *Air Pollution III*, Vol. 4, (Hrsg.: A. Ebel und N. Moussiopoulos) Computational Mechanics Publications, 103 – 110.
- Ebel, A., H. Elbern, H. Feldmann, H. J. Jakobs, C. Kessler, M. Memmesheimer, A. Oberreuter und G. Piekorz, 1997: *Air Pollution Studies with the EURAD Model System (3): EURAD – European Air Pollution Dispersion Model System*. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, (Hrsg.: A. Ebel, M. Kerschgens, F. M. Neubauer, P. Speth), Nr. 120.
- Ehmert, A., 1949: Ein einfaches Verfahren zur Bestimmung kleinster Jodkonzentrationen, Jod- und Natriumthiosulfatmengen in Lösungen. *Z. Naturforsch.*, **46**, 321 – 327.
- Ehmert, A., 1951: Ein einfaches Verfahren zur absoluten Messung des Ozongehaltes der Luft. *Meteorol. Rundsch.*, **4**, 64 – 68.
- Elbern, H., H. Schmidt und A. Ebel, 1997: Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling. *J. Geophys. Res.*, **102**, 15967 – 15985.
- Elbern, H., S. Tilmes und H. Schmidt, 1996: Data assimilation for chemistry-transport-models. In *Proceedings of EUROTRAC Symposium '96*, (Hrsg.: P. M. Borrell, P. Borrel, T. Cvitaš, K. Kelly und W. Seiler), Computational Mechanics Publications, Southampton, 681 – 685.
- Fedorov, V. V., 1989: Kriging and other estimators of spatial field characteristics (with special reference to environmental studies). *Atmos. Environ.*, **23**, 175 – 184.
- Finlayson-Pitts, B. J., und J. N. Pitts, Jr., 1986: *Atmospheric Chemistry: Fundamentals and Experimental Techniques*. John Wiley & Sons, Inc., New York, USA.
- Gandin, L. S., 1963: *Objective Analysis of Meteorological Fields*. Gidrometeorologicheskoe Izdatel'stvo, Leningrad. Aus dem Russischen übersetzt, Israeli Program for Scientific Translation, Jerusalem, 1965.
- Gandin, L. S., 1988: Complex quality control of meteorological observations. *Mon. Wea. Rev.*, **116**, 1137 – 1156.
- Gauß, C. F., 1865: *Theorie der Bewegung der Himmelskörper*. (Übersetzung der „Theoria Motus Corporum Coelestium“, 1809) (Carl Meyer, Hannover).
- Gilchrist, B., und G. Cressman, 1954: An experiment in objective analysis. *Tellus*, **6**, 309 – 318.
- Grell, G. A., J. Dudhia und D. R. Stauffer, 1993: A description of the fifth-generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5). NCAR Technical Note, NCAR/TN-398+IA.
- Grimmer, M., 1963: The space-filtering of monthly surface temperature anomaly data in terms of pattern, using empirical orthogonal functions. *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, **89**, 395 – 408.
- Hass, H., 1991: *Description of the EURAD Chemistry-Transport-Model Version 2 (CTM2)*. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, (Hrsg.: A. Ebel, F. M. Neubauer, P. Speth), Nr. 83.

- Hass, H., A. Ebel, H. Feldmann, H. J. Jakobs und M. Memmesheimer, 1993: Evaluation studies with a regional chemical transport model (EURAD) using air quality data from the EMEP monitoring network. *Atmos. Environ.*, **27**, 867 – 887.
- Hass, H., H. J. Jakobs, M. Memmesheimer, G. Pikorz und A. Ebel, 1994: Ermittlung des Eintrags von Ozon und Ozonvorläufersubstanzen nach NRW. Bericht zum F&E-Vorhaben 112-700-EUR06A des Ministeriums für Umwelt, Raumordnung und Landwirtschaft (MURL) des Landes Nordrhein-Westfalen. Rheinisches Institut für Umweltforschung (RIU) an der Universität zu Köln.
- Hass, H., H. J. Jakobs und M. Memmesheimer, 1995: Analysis of a regional model (EURAD) near surface gas concentration predictions using observations from networks. *Meteorol. Atmos. Phys.*, **57**, 173 – 200.
- Hass, H., und E. Berge, 1996: A diagnostic comparison of EMEP and EURAD; results for a wet deposition episode in July 1990. EMEP/MSC-W Report, 4/96, NILU.
- Hass, H., P. J. H. Builtjes, D. Simpson und R. Stern, 1997: Comparison of model results obtained with several European regional air quality models. *Atmos. Environ.*, **31**, 3259 – 3279.
- Hollingsworth, A., D. B. Shaw, P. Lönnenberg, L. Illari, K. Arpe und A. J. Simmons, 1986: Monitoring of observation and analysis quality by a data assimilation system. *Mon. Wea. Rev.*, **114**, 861 – 879.
- Imhoff, R. E., R. Valente und J. F. Meagher, 1995: The production of  $O_3$  in an urban plume: airborne sampling of the Atlanta urban plume. *Atmos. Environ.*, **29**, 2349 – 2358.
- Jang, J. C., H. E. Jeffries, D. Byun und J. E. Pleim, 1995a: Sensitivity of ozone to model grid resolution — I. Application of high-resolution regional acid deposition model. *Atmos. Environ.*, **29**, 3085 – 3100.
- Jang, J. C., H. E. Jeffries und S. Tonnesen, 1995b: Sensitivity of ozone to model grid resolution — II. Detailed process analysis for ozone chemistry. *Atmos. Environ.*, **29**, 3101 – 3114.
- Julian, P. R., und H. J. Thiebaut, 1975: On some properties of correlation functions used in optimum interpolation schemes. *Mon. Wea. Rev.*, **103**, 605 – 616.
- Kley, D., H. Geiß und V. A. Mohnen, 1994: Tropospheric ozone at elevated sites and precursor emissions in the United States and Europe. *Atmos. Environ.*, **28**, 149 – 158.
- Köble, R., G. Smiatek und T. Gauger, 1997: Kartierung kritischer Belastungskonzentrationen und -raten für empfindliche Ökosysteme in der Bundesrepublik Deutschland und anderen ECE-Ländern. Endbericht zum Forschungsvorhaben 106 01 061 des Umweltbundesamtes. Institut für Navigation der Universität Stuttgart.
- Koch, S., M. Desjardins und P. Kocin, 1983: An interactive Barnes objective map analysis scheme for use with satellite and conventional data. *J. Climate Appl. Meteor.*, **22**, 1487 – 1503.
- Lamb, R. G., 1983b: A regional scale (1000 km) model of photochemical air pollution, part 2, input processor network design. EPA-600/3-84-085, U. S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, North Carolina.

- Laurila, T., und H. Hakola, 1996:** Seasonal cycle of C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub> hydrocarbons over the Baltic Sea and northern Finland. *Atmos. Environ.*, **30**, 1597 – 1607.
- Lindskog, A., und J. Moldanova, 1994:** The influence of the origin, season and time of the day on the distribution of individual NMHC measured at Rörvik, Sweden. *Atmos. Environ.*, **28**, 1352 – 2398.
- Lippert, E., 1997:** *Der Einfluß von Flugzeugabgasen auf die Zusammensetzung der Atmosphäre: Untersuchungen mit einem mesoskaligen Chemie-Transport-Modell.* Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, (Hrsg.: A. Ebel, M. Kerschgens, F. M. Neubauer, P. Speth), Nr. 109.
- Loibl, W., W. Winiwarter, A. Kopsca, J. Züger und R. Baumann, 1994:** Estimating the spatial distribution of ozone concentrations in complex terrain. *Atmos. Environ.*, **28**, 2557 – 2566.
- Lorenc, A. C., 1986:** Analysis methods for numerical weather prediction. *Quart. J. Met. Soc.*, **112**, 1177 – 1194.
- Lorenz, E. N., 1956:** Empirical orthogonal functions and statistical weather prediction. Sci. Rept. No. 1, Statistical Forecasting Project, Mass. Inst. Tech., Dept. of Meteorology, Cambridge, Mass.
- Marenco, A., und F. Said, 1989:** Meridional and vertical ozone distribution in the background troposphere (70°N – 60°S; 0 – 12 km altitude) from scientific aircraft measurements during the STRATOZ III experiment (June 1984). *Atmos. Environ.*, **23**, 201 – 214.
- Marenco, A., M. Macaigne und S. Prieur, 1989:** Meridional and vertical CO and CH<sub>4</sub> distributions in the background troposphere (70°N – 60°S; 0 – 12 km altitude) from scientific aircraft measurements during the STRATOZ III experiment (June 1984). *Atmos. Environ.*, **23**, 185 – 200.
- Matheron, G., 1963:** *Traité de géostatistique appliquée.* Editions Technip., Paris.
- McRae, G. J., W. R. Goodin und J. H. Seinfeld, 1982:** Numerical solution of the atmospheric diffusion equation for chemically reacting flows. *J. Comput. Phys.*, **45**, 1 – 42.
- Memmesheimer, M., J. Tippke, A. Ebel, H. Hass, H. J. Jakobs und M. Laube, 1991:** On the use of EMEP emission inventories for European scale air pollution modeling with the EURAD model. In: *Proceedings of the EMEP workshop on Photooxidant Modelling for Long-Range Transport in Relation to Abatement Strategies.* Berlin, 16. – 19. April 1991, 307 – 324.
- Memmesheimer, M., H. J. Jakobs, G. Pikorz, A. Ebel und H. Hass, 1995a:** Ozon-Modellrechnungen mit EURAD für Episoden in 1990 und 1994 mit kurz- und langfristigen Emissionsminderungsszenarien. Abschlußbericht zum Teilvorhaben A-3 des F&E-Vorhabens 10402812 des Umweltbundesamtes (Aktionsprogramm und Maßnahmenplan Ozon (Sommermog)). Rheinisches Institut für Umweltforschung (RIU) an der Universität zu Köln.
- Memmesheimer, M., H. Hass, J. Tippke und A. Ebel, 1995b:** Modeling of episodic emission data for Europe with the EURAD Emission Model (EEM). In *Regional Photochemical Measurement and Modeling Studies.* Vol. 2, (Hrsg.: A. J. Ranzieri und P. A. Solomon), Air & Waste Management Association, Pittsburgh, USA, 495 – 499.

- Memmesheimer, M., A. Ebel, H. J. Jakobs und H. Hass, 1996:** Sensitivity of high ozone concentrations on anthropogenic precursor emissions during summer-smog episodes. In: *Proceedings of the 29th International ISATA Symposium on Automotive Technology & Automation: The Motor Vehicle and the Environment — Demands of the Nineties and Beyond*, Florenz, Italien, 3 – 6 Juni 1996, 315 – 320.
- Middleton, P., und J. S. Chang, 1990:** Analysis of RADM gas concentration predictions using OSCAR and NEROS monitoring data. *Atmos. Environ.*, **24A**, 2113 – 2125.
- Middleton, P., J. S. Chang, J. C. del Corral, H. Geiß und J. M. Rosinski, 1990:** Comparison of RADM and OSCAR precipitation chemistry data. *Atmos. Environ.*, **22**, 1195 – 1208.
- Obukhov, A. M., 1960:** The statistically orthogonal expansion of empirical functions. *Izv. Acad. Sci. USSR Geophys. Ser.*, 432 – 439, (Englische Übersetzung).
- Panofsky, H. A., 1949:** Objective weather map analysis. *J. Meteor.*, **6**, 386 – 392.
- Pearson, K., 1901:** On lines and planes of closest fit to systems of points in space. *Phil. Mag.*, **2**, 559 – 572.
- Peters, L. K., C. M. Berkowitz, G. R. Carmichael, R. C. Easter, G. Fairweather, S. J. Ghan, J. M. Hales, L. R. Leung, W. R. Pennell, F. A. Potra, R. D. Saylor und T. T. Tsang, 1995:** The current state and future direction of eulerian models in simulating the tropospheric chemistry and transport of trace species: a review. *Atmos. Environ.*, **29**, 189 – 222.
- Petry, H. J., 1993:** *Zur Wahl der Anfangskonzentrationen für die numerische Modellierung regionaler troposphärischer Schadstofffelder*. Mitteilungen aus dem Institut für Geophysik und Meteorologie der Universität zu Köln, (Hrsg.: A. Ebel, M. Kerschgens, F. M. Neubauer, P. Speth), Nr. 89.
- Pleim, J. E., J. S. Chang und K. Zhang, 1991:** A nested grid mesoscale atmospheric chemistry model. *J. Geophys. Res.*, **96**, 3065 – 3084.
- PORG, 1997:** *Ozone in the United Kingdom. Fourth Report of the Photochemical Oxidants Review Group, 1997*. Department of the Environment, London.
- Preisendorfer, R. W., 1988:** *Principal Component Analysis in Meteorology and Oceanography*. (Hrsg.: C. D. Mobley), Elsevier, Amsterdam.
- Reimer, E., G. Wiegand und R. Stern, 1996:** Plan zur Erstellung einer Ozon-Kurzfristprognose für das Smog-Frühwarnsystem. Bericht zum F&E-Vorhaben 10402817 des Umweltbundesamtes. Freie Universität Berlin (FUB), Institut für Meteorologie, Fachbereich Geowissenschaften, und Gesellschaft für Informatik, Verkehrs- und Umweltplanung mbH (IVU), Berlin.
- Richardson, L. F., 1922:** *Weather Prediction by Numerical Process*. Cambridge University Press, Cambridge.
- Roberts, J. M., 1990:** Review article: The atmospheric chemistry of organic nitrates. *Atmos. Environ.*, **24**, 243 – 287.

- Rohrer, F., (Bearb.), 1996:** Abschlußbericht zum Vorhaben *Untersuchungen zur regionalen und globalen Erhöhung der NO<sub>x</sub>- und Nichtmethankohlenwasserstoff-Konzentrationen in der oberen Troposphäre und der unteren Stratosphäre infolge Flugzeugemissionen*. Institut für Atmosphärische Chemie, Forschungszentrum Jülich.
- Rudolph, J., 1988:** Two-dimensional distribution of light hydrocarbons: results from the STRATOZ III experiment. *J. Geophys. Res.*, **93**, 8367 – 8377.
- Rudolph, J., 1995:** The tropospheric distribution and budget of ethane. *J. Geophys. Res.*, **100**, 11369 – 11381.
- Rudolph, J., und F. J. Johnen, 1990:** Measurements of light atmospheric hydrocarbons over the Atlantic in regions of low biological activity. *J. Geophys. Res.*, **95**, 20583 – 20591.
- Rutherford, I., 1972:** Data assimilation by statistical interpolation of forecast error fields. *J. Atmos. Sci.*, **29**, 809 – 815.
- Schaug, J., T. Iversen und U. Pedersen, 1993:** Comparison of measurements and model results for airborne sulphur and nitrogen components with kriging. *Atmos. Environ.*, **27**, 831 – 844.
- Schell, B., 1996:** *Zu den Rand- und Anfangswertbedingungen des EURAD Chemie-Transport-Modells Version 2 (CTM2). Erstellung eines Szenarios auf der Basis von Meßdaten*. Diplomarbeit, Institut für Geophysik und Meteorologie, Universität zu Köln, Köln.
- Schlatter, T., 1975:** Some experiments with a multivariate statistical objective analysis scheme. *Mon. Wea. Rev.*, **103**, 246 – 257.
- Schmidt, H., 1996:** *Variationelle Datenassimilation mit Hilfe eines adjungierten Modelles am Beispiel des RADM2-Gasphasenmechanismus*. Diplomarbeit, Institut für Geophysik und Meteorologie, Universität zu Köln, Köln.
- Schönbein, C. F., 1840:** Beobachtungen über den bei der Elektrolyse des Wassers und dem Ausströmen der gewöhnlichen Elektrizität aus Spitzen sich entwickelnden Geruchs. *Ann. Phys. Chem.*, **40**, 616.
- Schönbein, C. F., 1858:** Über verschiedene Zustände des Sauerstoffs. *Liebigs Ann. Chem.*, **89**, 257 – 300.
- Schultz, M., D. Mihelcic, A. Volz-Thomas und R. Schmitt, 1996:** *Die Bedeutung von Stickoxiden für die Ozonbilanz in Reinluftgebieten*. Berichte des Forschungszentrums Jülich, 3170, Jülich.
- Schwarz, R., und W. Steinbrecht, 1996:** *Bestimmung der Förderleistung von Brewer-Mast-Ozonsondenpumpen in Abhängigkeit vom Luftdruck*. Deutscher Wetterdienst, Forschung und Entwicklung, Arbeitsergebnisse Nr. 35, Offenbach.
- Seinfeld, J. H., 1986:** *Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution*. John Wiley & Sons, Inc., New York, USA.
- Simmonds, P. G., R. G. Derwent, A. McCulloch, S. O'Doherty und A. Gaudry, 1996:** Long-term trends in concentrations of halocarbons and radiatively active trace gases in Atlantic and European air masses monitored at Mace Head, Ireland from 1987 – 1994. *Atmos. Environ.*, **30**, 1352 – 2310.

- Singh, H. B., und P. B. Zimmerman, 1992:** Atmospheric distribution and sources of non-methane hydrocarbons. *Gaseous Pollutants: Characterization and Cycling*. (Hrsg.: J. O. Wiley & Sons, Inc., New York, USA.
- Slemr, J., W. Junkermann und A. Volz-Thomas, 1996:** Temporal variations in formaldehyde, acetaldehyde and acetone and budget of formaldehyde at a rural site in southern Germany. *Atmos. Environ.*, **30**, 3667 – 3676.
- Stedman, J. R., K. J. Vincent, G. W. Cambell, J. W. L. Goodwin und C. E. H. Downing, 1997:** New high resolution maps of estimated background ambient  $NO_x$  and  $NO_2$  concentrations in the U.K. *Atmos. Environ.*, **31**, 3591 – 3602.
- Stockwell, W. R., P. Middleton, J. S. Chang und X. Tang, 1990:** The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. *J. Geophys. Res.*, **95**, 16343 – 16367.
- Thiebaut, H. J., 1975:** Experiments with correlation representations for objective analysis. *Mon. Wea. Rev.*, **103**, 617 – 627.
- Tremmel, H. G., W. Junkermann, F. Slemr und U. Platt, 1993:** On the distribution of hydrogen peroxide in the lower troposphere over the northeastern United States during late summer 1988. *J. Geophys. Res.*, **98**, 1083 – 1099.
- Umweltbundesamt (Hrsg.), 1996:** *Ozonsituation 1994 in der Bundesrepublik Deutschland*. Berlin.
- Van Egmond, N. D., und D. Onderdelinden, 1981:** Objective analysis of air pollution monitoring network data; spatial interpolation and network density. *Atmos. Environ.*, **15**, 1035 – 1046.
- Venkatram, A., P. Karamchandani und P. Misra, 1988:** Testing a comprehensive acid deposition model.
- Volz, A., und D. Kley, 1988:** Evaluation of the Montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century. *Nature*, **332**, 240 – 242.
- Wadsworth, G. P., 1948:** Short range and extended forecasting by statistical methods. U.S. Air Force, Air Weather Service Tech. Report Nr. 105-38, Washington, D. C.
- Warneck, P., 1988:** *Chemistry of the Natural Atmosphere*. Academic Press, Inc., San Diego, USA.
- Wergen, W., 1998:** Von der Punktmessung zum Anfangszustand für die Numerische Wettervorhersage. In *Vorhersage: Wetter, Klima, Umwelt, Symposium zur Einhundertfünfzigjahrfeier des Preußischen Meteorologischen Institutes, Annalen der Meteorologie*, **36**, Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes, Offenbach, 17 – 38.
- Zhang, D. L., N. L. Seaman, T. T. Warner und J. M. Fritsch, 1986:** A two-way interactive nesting procedure with variable terrain resolution. *Mon. Wea. Rev.*, **114**, 1330 – 1339.

# Danksagung

Zuerst möchte ich mich besonders bei Herrn Professor Dr. Ebel bedanken. Er gab mir auch nach meinem Wechsel vom EURAD-Projekt zum Deutschen Wetterdienst die Möglichkeit, an der Dissertation weiterzuarbeiten, und sein beständiges Interesse und die Betreuung über die Entfernung hinweg erhielten mir die Hoffnung auf einen erfolgreichen Abschluß der Arbeit. Er lies mir die nötige Freiheit, die Schwerpunkte bei der Bearbeitung des Themas nach eigenen Vorstellungen zu setzen.

Wichtig war für mich weiterhin die Unterstützung der EURAD-Gruppe und der einzelnen Mitarbeiter. Herr Dr. Elbern brachte die Hauptkomponentenanalyse und die optimale Interpolation — die zentralen Methoden zur Bearbeitung des Themas — ins Spiel und hatte Anteil an der Betreuung der Arbeit. Ohne die von Herrn Dr. Memmesheimer bereitgestellten Emissionsdaten wären die Simulationen mit dem CTM nicht möglich gewesen; die Diskussionen mit ihm trugen beträchtlich zu meiner Motivation bei und waren überaus hilfreich, um ein „Gefühl“ für die Daten der Spurenstoffe zu bekommen. Die Herren Dipl. Geophys. Feldmann und Dr. Kessler trugen ebenfalls zum Gelingen dieser Arbeit bei, insbesondere durch viele produktive Gespräche und produktives Korrekturlesen.

Durchaus nicht selbstverständlich war es von meinem neuen „Chef“, Herrn Dr. Jacobsen, und von Herrn Dr. Zimmermann, dem Leiter des Projektes, auf dem ich zur Zeit beschäftigt bin, daß sie mir beim Wetterdienst — teilweise auch während der Arbeitszeit — die Gelegenheit zur Fortführung meiner Promotion gaben. Meinem Kollegen, Herrn Dr. Reißmann, danke ich für das gründliche Korrekturlesen und die vielen Kommentare, die mir oft halfen, mit etwas Abstand die Arbeit betrachten zu können.

Allen Institutionen, deren Daten ich nutzen konnte, und allen Personen, die mir dabei geholfen haben, ebenso wie den Instituten HLRZ, ICG2 und ICG3 am Forschungszentrum Jülich und dem DWD, über die ich Zugang zu Großrechnern hatte, ist zu danken. Das EURAD-Projekt wird durch das BMBF und das Ministerium für Wissenschaft und Forschung des Landes NRW gefördert.

Nicht zuletzt danke ich meiner Familie und allen, die mir nahestehen, für ihre Unterstützung; die Kinder, Vicky, Chris, Henry und Alex, geben einer solchen Arbeit tatsächlich erst ihren Sinn, zeigen aber auch, daß die dafür unternommenen Anstrengungen und auch das Ziel nicht zu den wirklich wesentlichen Dingen gehören.