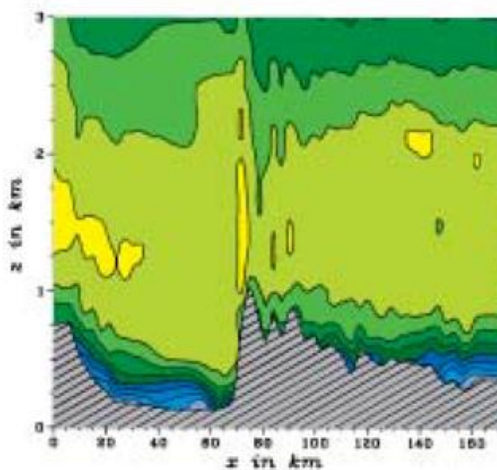
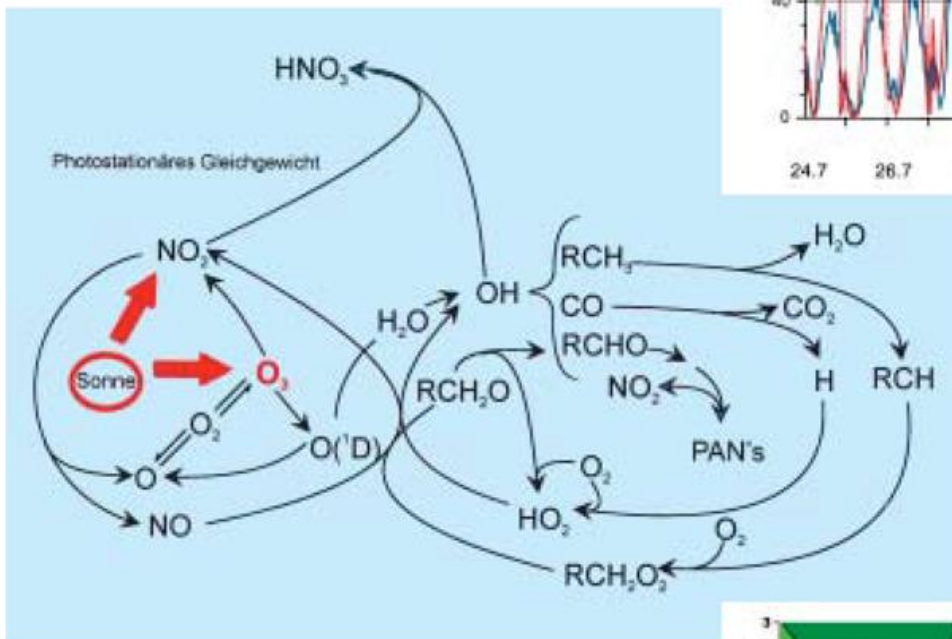
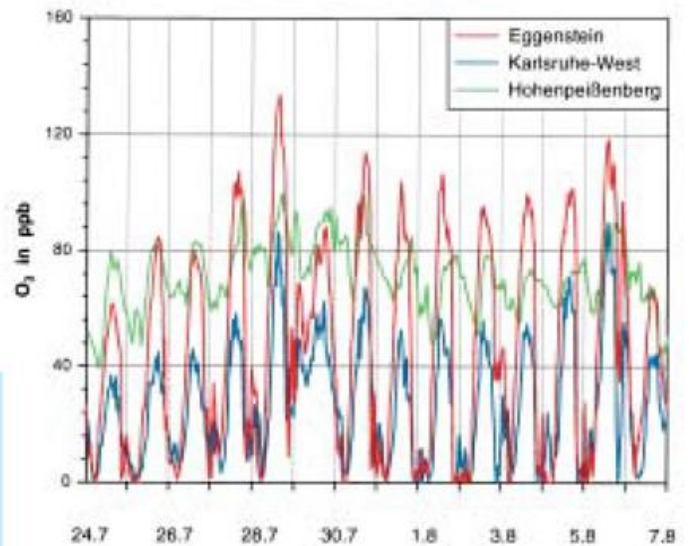
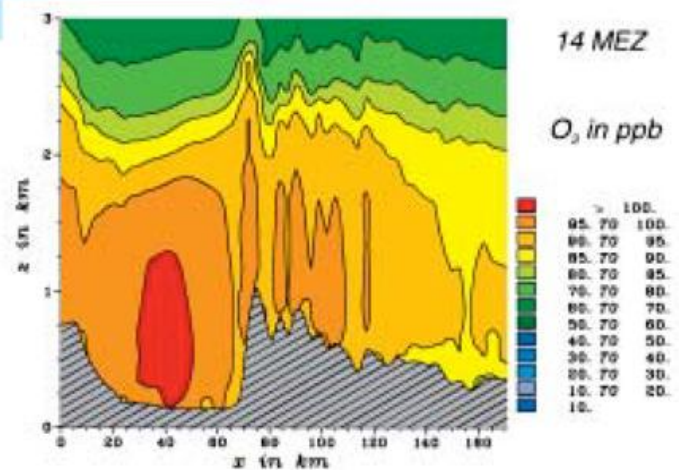
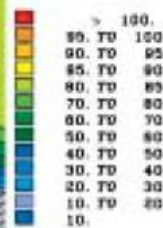




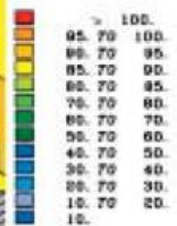
Photosmog I



6 MEZ
O₃ in ppb



14 MEZ
O₃ in ppb



Herausgeber
Deutscher Wetterdienst

Hauptschriftleiter
Dr. Hein Dieter Behr (Hamburg)

Redaktionsausschuß
Dipl.-Met. U. Gärtner (Offenbach a. M.)

Dr. G. Adrian (Offenbach a. M.)
Prof. Dr. J. Egger (München)
Prof. Dr. F. Fiedler (Karlsruhe)
Prof. Dr. G. Groß (Hannover)
Dr. J. Neisser (Lindenberg)
Dr. T. Prenosil (Traben-Trarbach)
Prof. Dr. C.-D. Schönwiese (Frankfurt a. M.)
Prof. Dr. G. Tetzlaff (Leipzig)

Zum Titelbild:

Obere Abb.: Zeitliche Entwicklung der Ozonkonzentration während einer Schönwetterperiode in der Zeit vom 24.07.1990 bis 06.08.1990.

Mittlere Abb.: Die wichtigsten Reaktionszyklen der troposphärischen Ozonbildung.

Untere Abb.: Vertikalschnitte für die berechnete Ozonverteilung quer über dem Oberrheingraben (Vogesen im Westen, Schwarzwald im Osten) um 6:00 Uhr (links) und um 14:00 Uhr (rechts).

promet erscheint im Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes – Frankfurter Straße 135, 63067 Offenbach am Main. Bezugspreis pro Jahrgang (4 Hefte) im Abonnement DM 44,-, Einzelheft DM 12,-, Doppelheft DM 24,-, Dreifachheft DM 36,-.

Für den Inhalt der Arbeiten sind die Autoren verantwortlich. Alle Rechte bleiben vorbehalten.

Druck:
Weppert GmbH & Co. KG
97422 Schweinfurt
Zehntstraße 17

ISSN 0340-4552

Meteorologische Fortbildung

26. Jahrgang, Heft 3/4, 2000

Thema des Heftes:

Photosmog I

(Fachliche Redaktion: F. Fiedler, Karlsruhe)

	Seite
Zur Einführung (Wechsel im Amt des Schriftleiters)	85
Zu diesem Heft	86
F. FIEDLER	
1 Photosmog und bodennahe Ozon	88
D. POPPE, J. ZIMMERMANN	
2 Chemische Ozonbildung in der planetarischen Grenzschicht	90
B. WICKERT, A. OBERMEIER, R. FRIEDRICH	
3 Räumliche und zeitliche Verteilung anthropogener Quellen der Vorläufersubstanzen für Ozon	97
F.X. MEIXNER, J. KESSELMEIER, B. VOGEL	
4 Räumliche und zeitliche Verteilung biogener Quellen der Vorläufersubstanzen für Ozon	102
H. VOGEL, M. MEMMESHEIMER, E. REIMER, P. WINKLER, F. FIEDLER	
5 Typischer zeitlicher Verlauf von Photosmog-Episoden	112
P. WINKLER, W. ENKE	
6 Langzeittrends der mittleren Konzentrationen und von Spitzenwerten von Ozon	120
F. FIEDLER, K.H. BECKER, H. GEIGER, R. KOPPMANN	
7 Feldexperimente zur Untersuchung von Photosmog-episoden (z.B. TRACT, BERLIOZ, POPCORN)	132
R. DIERKESMANN, H. SANDERMANN	
8 Wirkung von Ozon auf Menschen und Pflanzen	151
F.-U. DENTLER	
Die Satellitenbilder des Jahres 1999	162
Buchbesprechungen – Neuerscheinungen	165
Aus der Bibliothek des DWD	169
Habilitationen, Promotionen und Diplom-Hauptprüfungen im Jahr 1996	170
Tagungen	175
Bisher erschienene Ausgaben von Promet	178
Anschriften der Autoren dieses Heftes	179
Redaktionelle Hinweise für Autoren	180

Zur Einführung

Nach fast dreijähriger Pause halten Sie nunmehr wieder ein Heft der Fortbildungszeitschrift **promet** in der Hand. Eine Fülle von Ereignissen sowie nicht beeinflussbare Entscheidungen ließen diese gern gelesene Fachzeitschrift fast an den Rand des Vergessens geraten. Nachfragen aus dem Leserkreis bestärken uns in den Anstrengungen, diese Fortbildungszeitschrift fortzuführen. Gerade deshalb sollen die vom damaligen Präsidenten des DWD, Herrn Dr. E. Süßenberger, im ersten Heft der langen Reihe von **promet** formulierten Ziele für die Herausgabe dieser Fortbildungszeitschrift noch einmal genannt werden:

„ ... Die lebhaft entwickelte Entwicklung von Naturwissenschaft und Technik und die damit verbundene zwangsläufige Spezialisierung der Forscher und Praktiker haben indessen auch auf dem Gebiet der Meteorologie zur Folge, daß die Fülle der in- und ausländischen Veröffentlichungen vom einzelnen Leser nicht mehr bewältigt werden kann. Es müssen daher neue Wege beschritten werden, um allen Meteorologen und Wetterberatern die für sie unentbehrlichen Informationen zur Vertiefung ihrer Kenntnisse und zur Modernisierung ihres Wissenstoffes zu liefern.

*Bereits vor Jahren sind die Meteorologischen Gesellschaften dazu übergegangen, auf ihren Tagungen Übersichtsreferate den Kurzvorträgen, die sich mit den neuesten Einzelergebnissen der Forschung befassen, voranzustellen. Ein ähnliches Prinzip will **promet** anwenden, und zwar in der Form, daß jedes Heft einem Hauptthema gewidmet wird, das in zusammenfassenden Beiträgen von berufenen Fachvertretern dargestellt werden soll. ...*

*Es ist der Wunsch des Herausgebers, daß die mit der Gestaltung dieser Zeitschrift verbundenen Mühen und Opfer der Autoren dadurch belohnt werden, daß **promet** einen möglichst großen Kreis von Lesern erfaßt. **promet** soll eine Gemeinschaftsleistung der Forschung und Praxis der deutschen Meteorologie werden. Jeder Meteorologe und Wetterberater, ob in den beiden meteorologischen Diensten oder in den Hochschulinstituten, und jeder Student der Meteorologie sollen in den Besitz dieser Zeitschrift kommen. Sicher begegnet der Student der Meteorologie durch **promet** auch einer Reihe von Fragen seines künftigen Berufs.*

Der Herausgeber erwartet, daß die großzügige Lieferung an die Meteorologen, Wetterberater und Studenten diesen Leserkreis verpflichtet, aktiv durch Beiträge an der Zeitschrift mitzuarbeiten, sei es nach Aufforderung durch den Herausgeber, Schriftleiter und Hauptschriftleiter, sei es aus eigenem Antrieb durch Beteiligung an der schriftlichen Diskussion.“

Diese Ziele gelten weiterhin. Zusammen mit dem Erscheinen dieses Heftes verbinde ich meinen Dank an den Autorenkreis des vorliegenden Heftes für die bereitwillige Mitarbeit in der Hoffnung, daß die Fortbildungszeitschrift **promet** auch in Zukunft Autoren findet.

Die Hauptschriftleitung von **promet** lag seit ihrem erstmaligen Erscheinen im Jahre 1971 bis zum Sommer 1977 zunächst bei Herrn Dipl.-Ing. A. Hofmann. Anschließend führten sie die Herren Dipl.-Met. M. Schlegel (1977 – 1986) und Dipl.-Met. H.-D. Kirch (1987 – 1997) weiter. Die Hauptschriftleiter haben sich verdient gemacht und für ihre unermüdliche Arbeit spreche ich an dieser Stelle Dank und Anerkennung aus.

Im Jahre 1999 hat Herr Dr. H. D. Behr aus Hamburg die Hauptschriftleitung übernommen. Ihm wünsche ich bei der Führung des Schiffes **promet** stets eine glückliche Hand sowie einen nimmer versiegenden Strom von Autoren, die bereit sind, Themen zur Bearbeitung zu übernehmen.

Um die Kontinuität von **promet** auch nach außen hervorzuheben, wird die Numerierung nahtlos vom letzten Heft 1/2, Jahrgang 26, erschienen im Jahre 1997, weitergeführt. Zur Orientierung für die neueren Leser von **promet** sind auf der Seite 178 alle bisher erschienenen Hefte aufgeführt.

U. Gärtner
Präsident des Deutschen Wetterdienstes

Thema des Heftes: Photosmog

Zu diesem Heft

Bereits wenige Jahrzehnte nach der Entdeckung des dreiatomigen Sauerstoffs, dem Ozon, in der Atmosphäre durch den Chemiker Schönbein wurden Aussagen über die Wirkung von Ozon veröffentlicht. So stellte der Karlsruher Chemiker Engler 1896 fest, daß Ozon Pflanzenfarbstoffe bleicht, Holz, Kautschuk und organische Stoffe zerstört, heftig auf Respirationsorgane einwirkt, Organismen tötet, in starker Verdünnung Schwindel und Schlaf hervorruft und „in noch stärkerer Verdünnung dagegen erfrischend und anregend wirkt“ (zitiert in Meteor. Z. 1896, S. 471)

In den Anfängen der Ozonforschung wurde das Spurengas mehr aus hygienischer denn aus meteorologischer Sicht beachtet. Insofern wurde ozonreiche Luft für gesünder angesehen als ozonarme. Man findet zum Beispiel bereits 1873 (Ebermayer, Meteor. Z.) Darstellungen über die positive hygienische Wirkung von Ozon. Ausgehend von der Tatsache, daß sich bei Fäulnis organischer und tierischer Stoffe – so die damalige Ansicht – Gase, Pilzkeime oder allgemein Bakterien bilden, die der gesunden Luft vor allem in dichter besiedelten Regionen abträglich sind, schrieb man dem Ozon eine stark reinigende Wirkung für die Luft zu.

So wurde „das Ozon als das großartigste Desinfektions- und Reinigungsmittel der Atmosphäre“ angesehen. Es wurden Hypothesen aufgestellt, daß die Verbreitung von Epidemien mit dem Fehlen von Ozon in der Luft zusammenhängt. Insofern ist erklärlich, daß auch heute noch Luftkurorte mit dem hohen Ozongehalt der Luft positive Merkmale verknüpfen.

Diese angeführten Bemerkungen machen deutlich, daß Untersuchungen zur Existenz und Verbreitung von Ozon in der Atmosphäre als auch zu seiner Wirkung von allem Anfang an einen Themenkreis darstellten, an dem mehrere Fachdisziplinen gleichzeitig beteiligt waren.

Der Umfang des zu behandelnden Stoffes machte es allein aus technischen Gründen erforderlich, die Thematik auf 2 Hefte aufzuteilen. Hiermit wird das erste Heft Photosmog I vorgelegt. Das Heft Photosmog II wird in Kürze folgen. In beiden Heften wird dementsprechend der Problembereich des Photosmogs bzw. das Auftreten von Phasen mit erhöhten Ozonwerten in einer breiten, mehrere Disziplinen überspannenden Weise dargestellt. Hierbei sind technische Aspekte, die für die Emissionen der Ausgangsprodukte verantwortlich sind, ebenso zu berücksichtigen wie pflanzenphysiologische und bodenkundliche Fragen, die für die Freisetzung von konkurrierenden Substanzen aus den „biogenen“ Quellen bestimmend sind.

Zusätzlich werden aktuelle Ergebnisse vorgestellt, die aus umfangreichen Feldexperimenten wie auch mit relativ aufwendigen Modellrechnungen gewonnen worden sind. Hieraus wird deutlich, welche Spanne von Fachdisziplinen erforderlich ist, um eine aktuelle Frage der Umweltbelastung mit naturwissenschaftlichen Methoden so zu behandeln, daß die Genesis des Problems, d.h. der Stoffhaushalt der Photooxidantien in der Atmosphäre, und seine mögliche Beeinflussung von den Quellen her rational nachvollzogen werden kann. Der Schwierigkeitsgrad wird noch gesteigert, wenn es um die Frage der Wirkung von Ozon auf Pflanzen, Tiere und den Menschen geht.

Es ist gelungen, für die gesamte Breite dieses Themas Autoren zu finden, die sich mit hoher Sachkompetenz den einzelnen Detailfragen gewidmet haben. Hierauf begründet besteht die Hoffnung, daß durch das Studium der Beiträge ein aktueller Überblick zu dem Problembereich vorgelegt werden kann, Verständnis für die manchmal uneinheitliche Beurteilung von wissenschaftlicher Seite geschaffen und die Möglichkeiten dargestellt werden, das aktuelle Wissen zur Beratung der Politik einzusetzen.

Das Auftreten von Photosmog kann gegenwärtig als eines der wichtigsten Umweltprobleme weltweit angesehen werden. Angesichts der langen Phase der Forschungsarbeiten zu diesem Problem, zunächst hauptsächlich in den Vereinigten Staaten von Amerika und heute nahezu weltweit, ist man erstaunt, daß es immer noch erhebliche Unsicherheiten in der Bewertung des Problems gibt. Zahlreiche Maßnahmen, die in den Vereinigten Staaten in den vergangenen Jahrzehnten ergriffen worden sind, haben es nicht verhindern können, daß in weiten Gebieten die vorgegebenen Grenzwerte noch häufig überschritten werden. Insofern ist es auch erforderlich, sorgfältige Langzeitbeobachtungen beizubehalten, um die Beeinflussung infolge veränderter Emissionsbedingungen abzugrenzen, die von den von Jahr zu Jahr schwankenden meteorologischen Bedingungen herrühren. Das Thema bleibt sicherlich noch einige Zeit von hoher Brisanz. Eine wissenschaftliche Begleitung politisch veranlaßter Maßnahmen ist in jedem Fall von großer Wichtigkeit.

F. Fiedler

Bei der Messung des Ozons verwendete Einheiten (aus: promet 4'86, Seite 2, 1986)

1 Einheiten

Bei der Angabe der Ozonkonzentration werden unterschiedliche Maßeinheiten verwendet. Die dominierenden international üblichen sind nachfolgend aufgeführt:

1.1 Ozonpartialdruck p_3 in nbar (ozone partial pressure)

Anmerkung: 1 nbar \triangleq 0,1 mPa

1.2 Ozonpartialdichte ρ_3 in $\frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3}$ (ozone density)

1.3 Volumenmischungsverhältnis X_3 in ppb(v) (volume mixing ratio)

Anmerkung: ppb bedeutet parts per billion, 10^{-9} .

1.4 Massenmischungsverhältnis m_3 in $\frac{\mu\text{g}}{\text{g}}$ (mass mixing ratio)

1.5 Dobson-Einheit DU (Dobson unit)

Integrierter Gesamtzongehalt der Atmosphäre, dargestellt in einer Ozonsäule reduziert auf Normalbedingungen ($T_0 = 273 \text{ K}$, $p_0 = 1013 \text{ hPa}$).

1 cm Ozonsäule entspricht 10^3 DU, d.h. die Höhe einer Ozonsäule von 3 cm entspricht 300 DU.

Manchmal ist auch die Bezeichnung milli-atmo-centimeter (m-atm-cm) in Gebrauch.

2 Umrechnungsformeln

Bei den Formeln bedeuten:

p Luftdruck in hPa

T Temperatur in K

Bei den Ozonmaßeinheiten gelten die unter 1 aufgeführten Dimensionen.

2.1 Ozonpartialdruck

$$\begin{aligned} p_3 \text{ in bar} &= 1,7322 \cdot 10^{-3} \cdot T \cdot \rho_3 \quad (\text{Ozonpartialdichte}) \\ &= 1 \cdot 10^{-3} \cdot p \cdot X_3 \quad (\text{Volumenmischungsverhältnis}) \\ &= 0,602 \cdot p \cdot m_3 \quad (\text{Massenmischungsverhältnis}) \end{aligned}$$

2.2 Ozonpartialdichte

$$\begin{aligned} \rho_3 \text{ in } \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3} &= 577,3 \cdot \frac{p_3}{T} \quad (\text{Ozonpartialdruck}) \\ &= 0,5773 \cdot \frac{p}{T} \cdot X_3 \quad (\text{Volumenmischungsverhältnis}) \\ &= 0,347 \cdot 10^3 \cdot \frac{p}{T} \cdot m_3 \quad (\text{Massenmischungsverhältnis}) \end{aligned}$$

2.3 Volumenmischungsverhältnis

$$\begin{aligned} X_3 \text{ in ppb(v)} &= 1 \cdot 10^3 \cdot \frac{p_3}{p} \quad (\text{Ozonpartialdruck}) \\ &= 1,7322 \cdot \frac{T}{p} \cdot \rho_3 \quad (\text{Ozonpartialdichte}) \\ &= 0,602 \cdot 10^3 \cdot m_3 \quad (\text{Massenmischungsverhältnis}) \end{aligned}$$

In diesem Heft wird durchgehend ppb(v) verwendet, deshalb wird auf die Angabe des „v“ verzichtet.

Beim Ozon ist folgende Umrechnung gebräuchlich:

$$2 \frac{\mu\text{g}}{\text{m}^3} \approx 1 \text{ ppb.}$$

2.4 Massenmischungsverhältnis

$$\begin{aligned} m_3 \text{ in } \frac{\mu\text{g}}{\text{g}} &= 1,66 \cdot \frac{p_3}{p} \quad (\text{Ozonpartialdruck}) \\ &= 2,88 \cdot 10^{-3} \cdot \frac{T}{p} \cdot \rho_3 \quad (\text{Ozonpartialdichte}) \\ &= 1,66 \cdot 10^{-3} \cdot X_3 \quad (\text{Volumenmischungsverhältnis}) \end{aligned}$$

1 Photosmog und bodennahes Ozon

An heißen und strahlungsintensiven Sommertagen bildet sich in Regionen mit starker Luftverunreinigung regelmäßig ein Zustand aus, der als Photosmog bekannt geworden ist. In dem Wort Photosmog sind drei wichtige Elemente enthalten:

Die Photonen der Sonnenstrahlung, die das gesamte System antreiben und eine ganze Kette von chemischen Prozessen in Gang setzen. Die im zweiten Teil des Wortes enthaltenen beiden Elemente, aus den englischen Wörtern smoke (Rauch) und fog (Nebel) bestehend, die zu smog zusammengezogen sind und auf die Ausbildung schlechter Sichtverhältnisse wie bei Nebel oder bei rauchhaltiger Luft hinweisen. Insbesondere wird hierdurch Bezug genommen auf die mit der Ozonbildung im allgemeinen einhergehende Entwicklung von dunstverursachenden Partikeln. Dieses Phänomen wurde in den vierziger Jahren zuerst in der städtischen Agglomeration von Los Angeles beobachtet, wo man an der Vegetation erstmals deutliche Schäden feststellte. Es wird seither häufig als Los-Angeles-Smog bezeichnet. In den Folgejahren wurde aufgrund intensiver Untersuchungen (Haagen-Smit et al. 1951, Haagen-Smit 1952) die Rolle der Stickoxide, vor allem Stickstoffmonoxid (NO) und Stickstoffdioxid (NO₂), und der flüchtigen Kohlenwasserstoffe (meist als VOC = volatile organic compounds abgekürzt) als Ursache herausgearbeitet.

Während man lange Zeit annahm, daß dies ein Phänomen ist, das nur auf die Region von Los Angeles begrenzt sei, haben spätere Messungen aufgezeigt, daß es statt dessen sogar weltweit zu finden ist, sofern nur die wichtigsten Voraussetzungen erfüllt sind: die Verfügbarkeit der genannten Ausgangssubstanzen und die Einwirkung von genügend starkem Sonnenlicht, was im allgemeinen mit hohen Lufttemperaturen einhergeht.

Da die für die Ausbildung von Photosmog notwendigen Ausgangssubstanzen am Erdboden freigesetzt werden und im Laufe eines Tages durch Turbulenz und Konvektion innerhalb der planetarischen Grenzschicht, d.h. im Bereich der untersten 1500 m, vertikal gut vermischt werden, muß man es in erster Linie als ein Grenzschichtphänomen ansehen. Wenn man beachtet, daß die in der Luft mitgeführten Substanzen selbst bei mäßigen Windgeschwindigkeiten von z. B. 3 m s⁻¹ innerhalb von 10 Stunden eines Tages rund 100 km weit verfrachtet werden, muß man von einem regionalen Phänomen sprechen, das durch Messungen an einem Ort allein nicht verstanden und beurteilt werden kann. Für die beobachteten zeitlichen und räumlichen Verteilungen der auftretenden Substanzen spielen vertikale und horizontale Transport- und Austauschprozesse

sowie die während des Transports auftretenden chemischen Umwandlungsprozesse infolge der zahlreichen chemischen Reaktionen eine entscheidende Rolle.

Seit der Entdeckung des dreiatomigen Sauerstoffmoleküls (O₃) in der Atmosphäre durch C. F. Schönbein im Jahre 1839 an der Universität Basel, dem nach einem Vorschlag des Philologen Wilhelm Vischer der Name Ozon gegeben wurde (Hermann 1982), setzte eine intensive Forschung zur Aufklärung der Entstehung und zur Ermittlung der Verteilung dieses Spurengases in der Atmosphäre ein. Durch diese umfangreichen Messungen ist die Wirkung der für das Leben auf der Erde notwendigen Substanz in Form der Ozonschicht in der Stratosphäre mit einem Maximum in etwa 25 km Höhe erkannt worden.

Selbst der Spezialist steht staunend vor der Tatsache, welche Bedeutung dieses Spurengas in der Atmosphäre einnimmt. Wenn man eine homogene Dichte für die gesamte Atmosphäre annimmt, ergibt sich bekanntlich daraus die Höhe der „homogenen Atmosphäre“ zu etwa 8 km. Die Säulenhöhe des gesamten Ozons nimmt unter diesen Bedingungen davon nur eine Höhe von 3 mm ein. Da sich etwa neunzig Prozent des Ozons in der Stratosphäre befinden, umfaßt der Anteil innerhalb der Troposphäre nur 0,3 mm. Man nimmt heute an, daß von dieser Säulenhöhe von 0,3 mm Ozon in der Troposphäre die eine Hälfte aus der Stratosphäre in die Troposphäre eingemischt wird (siehe Kapitel 6), die andere Hälfte sich in der Troposphäre chemisch aus anderen Vorläufersubstanzen bildet.

In den Anfängen der Ozonforschung in der zweiten Hälfte des vorigen Jahrhunderts hat man dem Ozon eine reinigende Wirkung zugeschrieben z.B. durch eine Drosselung der Ausbreitung von Epidemien, so daß ozonreiche Luft als besonders gesunde Luft angesehen worden ist. Viele Luftkurorte haben dies bis in die jüngste Zeit als Gütezeichen für die heilende Wirkung der Luft an ihrem Standort verwendet.

Ozon besitzt in der planetarischen Grenzschicht eine mittlere Lebensdauer von etwa 3-8 Tagen im Sommer und von einigen 10 Tagen im Winter. Da die mittlere Lebensdauer sehr stark von der Deposition am Boden und auch vom chemischen Abbau bestimmt wird, ist diese Zahl großen Schwankungen unterworfen. Die Größenordnung der Lebensdauer macht jedoch deutlich, daß einmal gebildetes Ozon über weite Strecken transportiert wird und die vorhandene Konzentration sich auch durch kurzfristiges Herabsetzen der Quellen für die Ausgangssubstanzen nur unwesentlich beeinflussen läßt.

Als Photosmog bezeichnet man die Mischung von Gasen, die bei Vorhandensein von Sonnenlicht aus Stickoxiden und Kohlenwasserstoffen entstehen. Dem Photosmog zugerechnet werden also neben dem Ozon noch weitere Substanzen, die durch photochemische Prozesse entstehen und mit den Vorläufersubstanzen, den Stickoxiden und den flüchtigen Kohlenwasserstoffen, in enger Wechselwirkung stehen. Es handelt sich dabei also nicht um primäre Luftverunreinigungen wie Schwefeldioxid oder Staubteilchen, sondern um sekundäre Luftverunreinigungen, die aufgrund einer komplexen Kette von Reaktionen unter der Einwirkung von Sonnenlicht ablaufen. Photosmog besteht demnach weder aus Nebel noch aus Rauch, sondern aus einem Gemisch von gasförmigen Reaktionsprodukten. Beispiele hierfür sind Formaldehyd, Acetaldehyd oder Aromate.

Während in der Stratosphäre die Ozonbildung durch die Aufspaltung des Sauerstoffmoleküls in Gang gesetzt wird, nimmt sie in der Troposphäre und besonders auch in der bodennahen Atmosphäre stets ihren Ausgangspunkt durch die Photolyse von Stickstoffdioxid (NO_2). Selbst kleine Mengen von NO_2 reichen aus, um eine lange Kette von Reaktionen in Gang zu setzen, in die organische Substanzen einbezogen werden, um Photosmog zu bilden. Die zentrale Frage besteht also darin, wie es zur Bildung von NO_2 kommt und wieviel NO_2 sich bilden kann. Ein erster, sehr schneller und direkter Weg ist dadurch gegeben, daß die meist als Stickstoffmonoxid (NO) aus den Kraftfahrzeugen und aus anderen Quellen freigesetzten Moleküle unter Verwendung eines Ozonmoleküls zu Stickstoffdioxid NO_2 oxidiert werden. Man nennt diesen Vorgang häufig Titration. Hierdurch wird das NO sehr rasch abgebaut und in seiner Akkumulation stark begrenzt, wobei NO_2 aufgebaut wird.

Bei Vorhandensein genügend intensiver Strahlung im Wellenlängenbereich von etwa $0,28 \mu\text{m}$ bis zu $0,4 \mu\text{m}$ startet der Vorgang der Aufspaltung von NO_2 in NO und in ein Sauerstoffatom von neuem. Der atomare Sauerstoff kann sich mit dem reichlich vorhandenen molekularen Sauerstoff (O_2) zu Ozon (O_3) verbinden. Bei gegebener Anfangskonzentration von NO , NO_2 und O_3 steuert die verfügbare Strahlung, in welchem Verhältnis diese drei Substanzen zueinander stehen.

Dieses sehr rasch sich in Minuten einstellende Verhältnis wird als photostationäres Gleichgewicht bezeichnet (siehe Kapitel 2). Entscheidend für die Photosmogbildung, d. h. in erster Linie für den Aufbau von zusätzlichem Ozon ist, ob es dem freigesetzten oder dem ständig im photostationären Kreislauf wieder neu gebildeten NO gelingt, sich zu NO_2 umzuwandeln, ohne daß dabei vorhandenes Ozon als Oxidationsmittel verbraucht wird. Genau dies geschieht auf einem relativ langsam ablaufenden Reaktionspfad unter Beteiligung der Kohlenwasserstoffe. Ihre Anwesenheit ist also dafür verantwortlich, daß das NO_2 -Niveau angehoben wer-

den kann, ohne daß der Ozonpegel dabei erniedrigt wird. Auf dem höheren Niveau von NO_2 kann dann das photostationäre Gleichgewicht sich in kürzester Zeit neu einstellen.

Wie in den nachfolgenden Kapiteln ausführlich dargestellt wird, kommt es zu einer Umwandlung von Stickstoffmonoxid zu Stickstoffdioxid, ohne daß dabei Ozon als Oxidationsmittel aufgebraucht wird. Statt dessen durchläuft das Stickstoffmonoxid eine längere Kette von Reaktionen mit den Kohlenwasserstoffen als Reaktionspartner, um sich schließlich als Stickstoffdioxid in den Kreislauf erneut einzugliedern.

Literatur:

- HERRMANN, G., 1982: Christian Friedrich Schönbein, der Entdecker des Ozons. *Z. Meteor.* 32, 199-204.
- HAAGEN-SMIT, A.J., 1952: Chemistry and Physiology of Los Angeles Smog. *Ind. Eng. Chem.* 44, 1342-1346.
- HAAGEN-SMIT, A.J., DARLEY, E.F., ZAITLIN, M., HULL, H., NOBLE, W., 1951: Investigation on injury of plants from air pollution in the Los Angeles area. *Plant Physiol.* 27, 18-34.

2 Chemische Ozonbildung in der planetarischen Grenzschicht

1 Einleitung

Der chemische Abbau von anthropogen wie biogen emittierten Spuren- und Schadgasen wird in der Regel durch eine Kette von chemischen Reaktionen bewirkt, bei denen unter geeigneten Bedingungen Photooxidantien, insbesondere Ozon, entstehen können, siehe Abb. 2-1. Dieser Beitrag erläutert die wesentlichen Eigenschaften der chemischen Prozesse, die zur Ozonbildung beitragen sowie die Rolle der Stickoxide NO_2 und NO , die die Effizienz dieser chemischen Ozonbildung steuern. Auf die räumliche Verteilung und zeitliche Entwicklung der Ozonbelastung in der Grenzschicht nimmt neben der erwähnten Bildung in der Gasphasenchemie der Troposphäre natürlich auch die Emission der Ozonvorläufer und der atmosphärische Transport einen erheblichen Einfluß.

2 Chemische Bildung von Ozon

Ozon entsteht aus der Addition von freien Sauerstoffatomen an molekularem Sauerstoff.

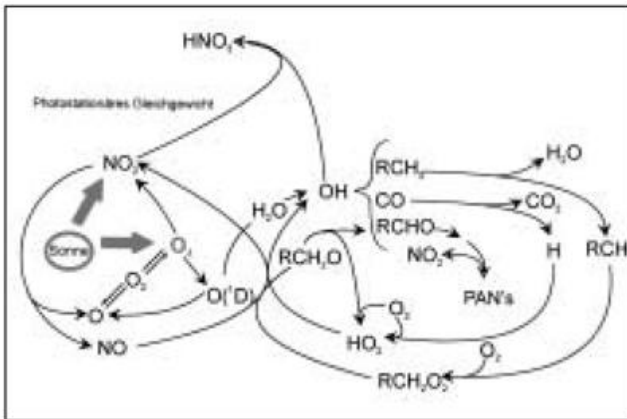


Abb. 2-1: Chemische Reaktionspfade für die Ozonbildung in der bodennahen Atmosphäre (nach STAEHELIN und DOMMEN 1994). Der linke Kreislauf wird durch die Sonne gesteuert, da sie die Zerlegung des NO_2 durch die Intensität ihrer Strahlung steuert. In Abhängigkeit von der Einstrahlung stellt sich ein Gleichgewicht zwischen NO , NO_2 und O_3 ein, das als photostationärer Zustand bezeichnet wird.

Als Träger für leicht abspaltbare Sauerstoffatome dient in der Grenzschicht NO_2 , das durch Photolyse bei Wellenlängen $\lambda \leq 410 \text{ nm}$ (siehe Abb. 2-1)



ein Sauerstoffatom abgibt. Sauerstoffatome $\text{O}(^3\text{P})$ im Grundzustand rekombinieren sehr rasch mit molekula-

rem Sauerstoff zu Ozon. Dies ist die wichtigste Ozonbildende Reaktion in der Atmosphäre.



Im folgenden werden Photolysefrequenzen für Reaktionen R_n mit j_n bezeichnet. Die Geschwindigkeit aller anderen Reaktionen R_n ist durch k_n gegeben. Bei Photolysefrequenzen j_1 bis zu Werten von 36 h^{-1} und typischen NO_2 -Mischungsverhältnissen von 1 ppb entspräche dies Ozonbildungsraten von bis zu 36 ppb/h . Diese schlagen sich jedoch niemals in einem entsprechenden Anstieg der Ozonkonzentration nieder, da der größte Teil des entstehenden Ozons durch NO zu molekularem Sauerstoff



bei gleichzeitiger Rückbildung von NO_2 umgesetzt wird. Die Reaktionen R1 - R3 (siehe Abb. 2-1, linke Bildseite) stellen einen Nullzyklus für O_3 dar. Er wird nach der chemischen Einstellzeit τ für NO_2 und NO

$$\tau = 1 / (j_1 + k_3 [\text{O}_3])$$

(einige Minuten in der sonnenbeschienenen Atmosphäre) erreicht. Die Summe der Konzentrationen (angedeutet durch eckige Klammern) von reaktivem Sauerstoff $[\text{O}_x] = [\text{O}_3] + [\text{NO}_2] + [\text{O}(^3\text{P})]$ unter dem Einfluß der Reaktionen R1-R3 ist konstant. Wegen $[\text{O}^3\text{P}] \ll [\text{O}_3]$, $[\text{NO}_2]$ gilt in guter Näherung $[\text{O}_x] = [\text{O}_3] + [\text{NO}_2]$. Die Invarianz von O_x ist für die Ozonbelastung in städtischen Gebieten nahe den NO -Quellen wichtig. Hohe NO -Emissionen führen zwar dort zu einem Abbau von Ozon nach R3 mit der Folge, daß man in der Stadt niedrigere Ozonkonzentrationen mißt als im Umland. Die Summe O_x bleibt aber erhalten. Außerhalb der Städte setzt Sonnenlicht (R1) die in NO_2 gebundenen Sauerstoffatome unter Rückbildung von Ozon wieder frei.

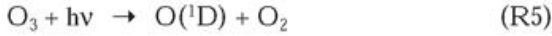
Die zusätzliche chemische Ozonbildung (siehe Abb. 2-1, rechte Bildseite) erfordert eine Störung des Nullzyklus der Reaktionen R1-R3. Dazu tragen die Peroxiradikale RO_2 als Träger reaktiven Sauerstoffs bei. Hier steht R für ein Wasserstoffatom oder eine organische Verbindung, der durch H-Abstraktion ein Wasserstoffatom entzogen wurde. Die Peroxiradikale entstehen beim Abbau von organischen Spurengasen, die aus anthropogenen und biogenen Quellen in die Atmosphäre gelangen. Diese sehr reaktiven Verbindungen reagieren ähnlich wie Ozon mit NO unter Bildung von NO_2 . Dabei wird NO in NO_2 überführt, ohne daß wie in R3 Ozon verbraucht wird.

An dem sehr einfachen Beispiel des Kohlenmonoxids, CO , sei dieser Mechanismus erläutert. CO wird in einem

Schritt zur höchsten Oxidationsstufe, in wasserlösliches CO_2 durch Reaktion mit OH überführt



Das Hydroxylradikal OH entsteht aus der Photolyse von O_3 bei Wellenlänge $\lambda < 320 \text{ nm}$



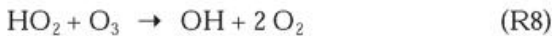
und der anschließenden Reaktion des angeregten Sauerstoffatoms $\text{O}(^1\text{D})$ mit gasförmigem Wasser



Das in R4 ebenfalls entstehende reaktive Wasserstoffatom lagert rasch molekularen Sauerstoff an und bildet das Peroxiradikal HO_2 . Dieses Radikal kann mit NO reagieren



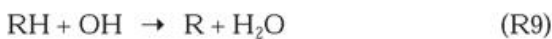
und dabei die angesprochene Umwandlung von NO in NO_2 bewirken, ohne daß Ozon verbraucht wird. Allerdings reagiert HO_2 auch mit O_3



Dies ist eine ozonerstörende Reaktion. Sie ist jedoch wegen $k_8 \ll k_7$ weit weniger wirksam als R7, sie sorgt allerdings in der Hintergrundatmosphäre mit NO_x -Mischungsverhältnissen unter etwa 50 ppt für eine Nettoozonzerstörung. In den stärker belasteten bodennahen Luftmassen über Europa, wo NO_x -Belastungen im Bereich von ppb häufig anzutreffen sind, überwiegt R7 und sorgt für chemische Ozonbildung. Falls nur CO als abbaubares Spurengas vorliegt, ist die Nettobilddungsrate $P(\text{O}_3)$ gegeben durch

$$P(\text{O}_3) = k_7 [\text{NO}] [\text{HO}_2] < k_4 [\text{CO}] [\text{OH}]$$

Sie ist begrenzt durch die Oxidationsrate des Quellgases CO. Der Abbau anderer primärer (d.h. emittierter) Gase, insbesondere organischer Verbindungen wie der Kohlenwasserstoffe, folgt einem ähnlichen Schema. So werden Alkane RH (Kohlenwasserstoffe ohne Doppelbindungen) durch OH umgesetzt



Durch Anlagerung an R entsteht ein organisches Peroxiradikal



das ähnlich wie HO_2 reagiert



Die Oxiradikale RO reagieren rasch, teilweise nach Umlagerung oder Zerfall und meistens unter gleichzeitiger Bildung von HO_2 zu Carbonylen. Das sind Verbindungen der Form $\text{R}_1\text{R}_2\text{CO}$. Die einfachsten Verbindungen dieser Klasse sind Formaldehyd HCHO und Acetaldehyd CH_3CHO . Die Carbonyle werden durch OH weiter abgebaut. Daher wird nicht wie bei CO pro abgebautem Molekül ein O_3 -Molekül erzeugt, sondern die Zahl der gebildeten O_3 -Moleküle steigt in komplizierter Weise mit der Zahl der Kohlenstoffatome in der Verbindung an. Wichtigster chemischer Steuerungsparameter dieser durch NO und NO_2 katalysierten Ozonerzeugung ist die Konzentration von NO_x (siehe Abb. 2-2). Die weitgehend ähnliche Abhängigkeit der OH-Konzentration und der Ozonproduktion von NO_x ist kein Zufall, sondern eine Folge der Kopplung zwischen Spurenstoffabbau und der NO-zu- NO_2 Konversion durch R8.

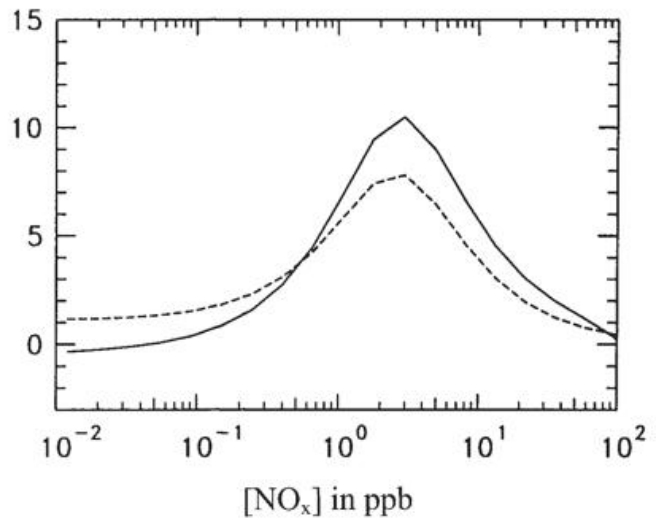


Abb. 2-2: OH-Konzentration (Einheit: 10^6 cm^{-3} , gestrichelte Linie) und die Nettoozonproduktion (Einheit: ppb/h, durchgezogene Linie) als Funktion des NO_x -Mischungsverhältnisses. Chemiemechanismus RADM2 (Stockwell et al. 1990).

Nicht nur der Abbau der Kohlenwasserstoffe durch OH, sondern auch deren Reaktion mit NO_3 greift in die Ozonbildung ein. NO_3 wird durch Reaktion von O_3 mit NO_2 gebildet und führt offenbar damit zu einem zweifachen Abbau von O_x . Tags wird NO_3 sehr rasch (auf der Zeitskala von Sekunden) praktisch quantitativ photolysiert und trägt deshalb zum Spurenstoffabbau nur wenig bei. In der Nacht kann NO_3 nach Maßgabe von Ozon- und NO_2 -Immissionen jedoch erhebliche Konzentrationen aufbauen. Das Nitratradikal reagiert wie OH unter H-Abstraktion mit Kohlenwasserstoffen und liefert dieselben organischen Peroxiradikale. Deren weiterer Abbau kann in Gegenwart von NO die zunächst entstehenden Verluste an O_x mehr als ausgleichen. Während gesättigte Kohlenwasserstoffverbindungen nur durch OH und NO_3 abgebaut werden können, reagieren ungesättigte Kohlenwasserstoffverbindungen (d.h. solche mit Doppelverbindungen) auch mit Ozon.

Diese Ozonolyse ist langsamer als die OH-Reaktion, sie führt im ersten Reaktionsschritt zu einem O_3 -Verlust. Die gebildeten Reaktionsprodukte sind teilweise Radikale, die selbst zur Ozonbildung beitragen. Die übrigen Produkte unterliegen dem Abbau durch OH, die den entstandenen Verlust von O_3 ebenfalls ausgleichen können.

Der umsatzbestimmende Schritt der Netto-Ozonproduktion, ausgelöst durch Ozonolyse oder die Reaktion mit OH, ist der jeweils erste Schritt der Reaktionskette. Da die OH-Konzentration über die primäre Bildung von OH-Radikalen mit dem O_3 -Mischungsverhältnis ansteigt, ist die chemische Ozonproduktion damit ein autokatalytischer Prozeß bezüglich O_3 . In einer völlig ozonfreien Troposphäre würde keine chemische Ozonbildung stattfinden, erst eine Initialzündung durch ein externes Ozon, z.B. durch Eintrag stratosphärischen Ozons, setzt die troposphärische Ozonproduktion in Gang.

Weil die Ozonbildung durch NO_x katalysiert wird, beeinflussen Verluste von NO und NO_2 die chemische Ozonproduktion. In Konkurrenz zu R11 können organische Peroxiradikale relativ stabile organische Nitrate bilden. Als polare und damit wasserlösliche Verbindungen können diese organischen Nitrate gut trocken oder naß deponiert werden. Ihre Bildung ist damit ein endgültiger Verlust an NO_x in der Gasphase. Peroxiradikale, die aus dem Abbau von sauerstoffhaltigen Verbindungen wie Acetaldehyd stammen, addieren reversibel NO_2 unter Bildung von Peroxiacetylnitrat (PAN). Die Lebensdauer von PAN gegenüber dem Zerfall in die Ausgangsprodukte hängt stark von der Temperatur ab. Mit einer Änderung von 15 % pro Kelvin ist der PAN-Zerfall einer der am stärksten temperaturabhängigen Prozesse in der Chemie der Gasphase. Die Lebensdauer bezüglich dieses Zerfalls sinkt von 2 Tagen am Gefrierpunkt auf 22 Minuten bei 30 °C. Durch Vertikaltransport in kältere Luftschichten können daher in PAN gespeichertes NO_2 und Acetylperoxiradikale aufgrund der Lebensdauer im Bereich von Tagen weit transportiert und in Reinluftgebieten in wärmere, bodennahe Luftschichten zurückgemischt werden. Man kann dies auch als gespeicherte und transportierbare Ozonproduktion ansehen, durch die Emissionen in den dichtbesiedelten Gebieten auch ansonsten unbelastete arktische und ozeanische Regionen beeinflussen können.

Bei niedrigen Stickoxidkonzentrationen im Bereich unter 2 ppb dominieren Reaktionen der Peroxiradikale miteinander unter Bildung von Peroxiden, da die Peroxide relativ zu ihrer Photolyse in der Gasphase, die zu teilweiser Rückbildung von reaktivem Sauerstoff führt, schnell deponieren. Zusammen mit Reaktion R8 ist dies der Grund dafür, daß bei Stickoxidkonzentrationen unter etwa 50 ppt die Troposphäre zu einer Ozonsenke wird. In diesem Regime gibt es keine Parallelität mehr zwischen OH-Konzentration und Ozonproduktion.

3 Kohlenwasserstoffe

Während Stickoxide sowohl in Europa als auch global vorwiegend anthropogenen Ursprungs sind, teilen sich Pflanzen und menschenverursachte Prozesse auf der Erde die Kohlenwasserstoffemissionen mit vergleichbarem Gewicht. Bei den Nichtmethankohlenwasserstoffen überwiegt die biogene Emission im globalen Maßstab (Kempf et al. 1996). Deren Gewicht nimmt noch zu, wenn man den Beitrag zur chemischen Bildung von Ozon betrachtet. Die Menge an Ozon, die durch den Abbau von Kohlenwasserstoffen produziert werden kann, hängt zunächst von der Reaktivität und von der Größe ab. Je höher die Reaktivität, desto schneller entstehen aus einem Kohlenwasserstoff die Peroxiradikale, die Sauerstoffatome übertragen können. Je größer der Kohlenwasserstoff, desto mehr Abbauschritte mit intermediären Peroxiradikalen sind möglich. Die wichtigsten biogenen Kohlenwasserstoffe zeichnen sich durch hohe Reaktivität und vergleichsweise hohe Kohlenstoffzahl ab. Hier sind das vorwiegend biogen in die Atmosphäre entlassene Isopren, sowie die sich aus zwei Isoprenelementen herleitenden Terpene zu nennen, die zusammen mit etwa 800 Megatonnen pro Jahr global von Pflanzen emittiert werden (Guenther et al. 1995). Während Isopren bei einer OH Konzentration von $5 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-3}$ eine Lebensdauer von etwa einer halben Stunde hat, liegt diese für die wichtigsten Terpene im Bereich von wenigen Minuten bis 2 Stunden. Zum Teil reagieren diese Verbindungen noch in den Stomata oder direkt an der Pflanze, so daß man in Messungen bereits Abbauprodukte feststellt. Bei Isopren sind es zwei konjugierte Doppelbindungen, die eine Addition von OH erleichtern. Die ersten stabilen Abbauprodukte von Isopren enthalten zwangsläufig eine der beiden Doppelbindungen, und sind dadurch ebenfalls sehr reaktiv, allerdings nun mit Lebensdauern bei 1 bis 3 Stunden (Carter und Atkinson 1996).

Nicht nur die hohe Reaktivität und die hohe Zahl an Kohlenstoffatomen und die damit verbundene hohe Zahl an potentiell Ozon produzierenden Abbauschritten begünstigt die Ozonproduktion durch biogene Kohlenwasserstoffe, sondern auch das Emissionsverhalten von Pflanzen, deren Abgabe von Isopren und anderen organischen Substanzen bis Temperaturen oberhalb von 30 °C auf ein Maximum ansteigt. Vor allem Pflanzen mit hohem physiologischen Umsatz, etwa im Frühjahr, aber auch in Streßsituationen, emittieren verstärkt Isopren. Trockenheit kann dagegen Isopren- und Terpenemissionen verringern. Auch ein hoher Lichteinfall begünstigt Isoprenemissionen. Nachts sind bei vielen Pflanzen die Isoprenemissionen vernachlässigbar. Für andere organische Substanzen werden zumindest deutlich reduzierte Emissionen beobachtet. Isopren und Terpene werden also gerade in den Situationen verstärkt emittiert, die auch für hohe Ozonkonzentrationen bekannt sind: viel Licht und erhöhte Temperaturen. Tragen anthropogene Emissionen auch noch genügend Stickoxide bei, werden ideale Bedingungen für eine erhöhte Ozonproduktion vorgegeben.

Ist die Stickoxidemission aber gering, binden biogene Kohlenwasserstoffe wie Isopren durch die Bildung organischer Nitrate sowie von PAN und ähnlichen Verbindungen so viel Stickoxid, daß die Ozonproduktion dadurch vermindert wird. In Mitteleuropa kommt allerdings ein sehr hohes Immissionsverhältnis biogener Kohlenwasserstoffe zu Stickoxiden wegen der hohen anthropogenen Stickoxidemissionen kaum vor.

Bei den Abbauschritten für die Produkte der Isoprenoxidation und besonders den Abbau der Terpene gibt es noch viele Unbekannte. Auch der Anteil der Aerosolbildung, der bei den Terpenen sehr hoch ist und Kohlenwasserstoffe der Ozonproduktion entzieht, ist bislang nicht geklärt.

4 Zeitskalen der Ozonchemie

Wie schnell die Ozonkonzentration sich ändert, hängt von den Einstellzeiten der Stoffzyklen ab, die an der Ozonproduktion beteiligt sind, aber auch von der Geschwindigkeit des Abbaus der Kohlenwasserstoffe und somit von deren chemischen Lebenszeit (Abb. 2-3).

Die chemische Einstellzeit wird vor allem durch die Hauptverluste des Ozons bestimmt. Hierzu trägt hauptsächlich R8 und auch die Photolyse von O₃ (R5) bei, soweit sie zur Bildung von OH-Radikalen führt (R6). In der planetarischen Grenzschicht in mittleren Breiten ist diese Lebensdauer etwa 10 Tage. Trockene Deposition und Verluste in die freie Troposphäre verkürzen diese Lebensdauer noch einmal auf die Hälfte. Nach „Abschalten“ der chemischen Ozonproduktion und des stratosphärischen Ozoneintrags würde Ozon etwa auf dieser Zeitskala aus der Troposphäre verschwin-

den. Da diese Lebensdauer vergleichbar ist mit charakteristischen Zeiten des atmosphärischen Transports, unterliegt die Ozonimmission auch dem lokalen und regionalen Transport (siehe Abschnitt: 6. Ozonprognose). Die Ozonbildung hängt von der Geschwindigkeit des Kohlenwasserstoffabbaus als geschwindigkeitsbestimmenden Schritt ab. Die Kohlenwasserstoffe haben Lebenszeiten zwischen mehreren Jahren (troposphärische Lebensdauer von Methan ist etwa 10 Jahre) und etwa 10 Minuten (Terpene tagsüber bei [OH] = 10⁷ cm⁻³ in der planetarischen Grenzschicht) (Atkinson 1994). Wie schnell Ozon gebildet wird, hängt daher empfindlich von der Zusammensetzung des emittierten Kohlenwasserstoffgemischs ab. Ein hoher Anteil von höheren Aromaten, von biogenen Kohlenwasserstoffen und anderen Alkenen mit interner Doppelbindung führt schon am ersten Tag zu einer starken Ozonproduktion.

5 Unsicherheiten der Chemie

Unsere Kenntnis der Chemie der Atmosphäre ist notwendig unvollständig und auch fehlerhaft. Unvollständigkeit ergibt sich aus dem Fehlen von kinetischen Daten für identifizierte und noch unbekannt Verbindungen und deren chemische Abbauprodukte. Es ist sehr schwierig, hierüber eine quantitative Abschätzung auf die Unsicherheit des gebildeten Ozons zu machen. Die bekannten chemischen Reaktionen, wie sie in den Reaktionsmechanismen zusammengestellt sind und in Chemie- und Transportmodellen (CTM) verwendet werden, haben im Labor bestimmte Reaktionskonstanten, die experimentelle Unsicherheiten aufweisen.

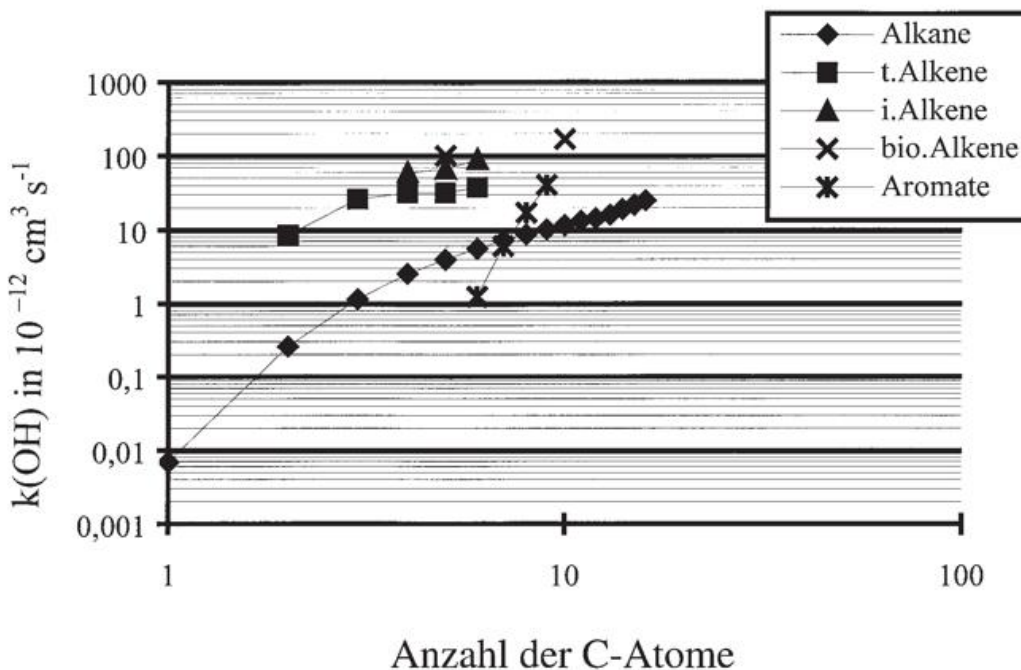


Abb. 2-3: Reaktivitäten von Kohlenwasserstoffen in Abhängigkeit von Kohlenstoffzahl und Typ als Größe der Reaktionskonstante mit OH in 10⁻¹² cm³ s⁻¹. Bei [OH]=10⁶ cm⁻³ reicht die Lebensdauer der Kohlenwasserstoffe von 4 Jahren bei Methan bis 1,5 Stunden bei reaktiven Terpenen. Mittags können diese Lebenszeiten noch um einen Faktor 10 niedriger liegen. Alkene: t = terminale, i = interne, bio = biogene.

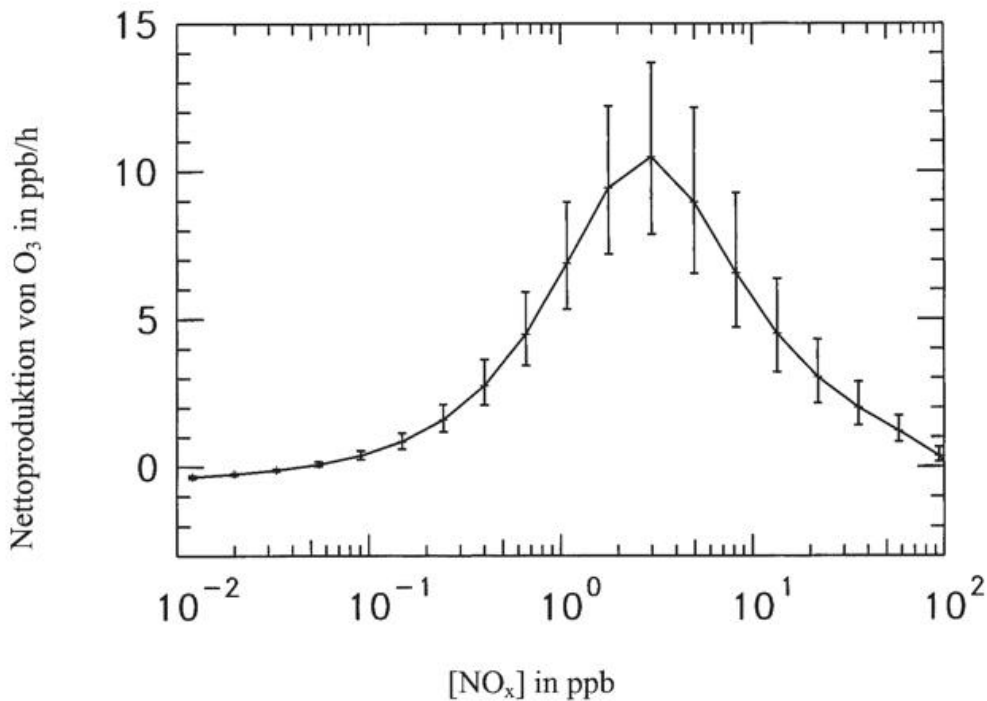


Abb. 2-4:
Ozonbildungsrate $P(O_3)$ als Funktion von $[NO_x]$ in ppb/h. Gasphasenchemie RADM2 (Stockwell et al. 1990). Die Fehlerbalken entsprechen minimalen bzw. maximalen $P(O_3)$ bei Variieren der Geschwindigkeitskonstanten im Rahmen ihrer experimentellen Fehler (optimistischer Fall: alle $0,8 \leq k_i/k_i^* \leq 1,2$) wobei k_i^* der in RADM2 angegebene Wert für diese Geschwindigkeitskonstante ist.

Ihr Einfluß auf die momentane Ozonbildungsrate ist für den Fall einer optimistischen Einschätzung der Fehler von 20 % in Abb. 2-4 dargestellt.

Bei Annahme der Unsicherheiten gemäß den Empfehlungen (siehe z.B. DeMore et al. 1997) können die relativen Fehler von $G(O_3)$ im Maximum durchaus 40 % erreichen.

Einige wenige Reaktionskonstanten tragen überproportional zum Fehler bei, darunter die der zu Beginn herausgestellten Schlüsselreaktionen R1, R3 und R7. Während diese Reaktionen gut untersucht sind, gibt es erheblich größere Unsicherheiten bei den Reaktionen der Ankopplung an das Radikalresevoir PAN, das einen wesentlichen Einfluß auf die Ozonproduktionsrate hat. Hier hat es bereits deutliche Fortschritte durch neuere kinetische Untersuchungen gegenüber dem Stand des Chemiereaktionsmechanismus RADM2 gegeben, die zu einer leichten Verringerung des angegebenen Fehlerbereichs führen können. Weitere signifikante Verbesserungen der Genauigkeit chemischer Mechanismen erfordern jedoch eine Verringerung der Fehler der Schlüsselreaktionen unter 5 %. Das ist eine gewaltige Herausforderung an das experimentelle Geschick von Kinetikern und wird auf absehbare Zeit ein Hindernis für eine weitere Reduktion der Unsicherheit von Mechanismen darstellen.

Der aus dem chemischen Mechanismus stammende Fehler trägt zum Gesamtfehler entsprechend der Gewichtung der chemischen Prozesse bei Konzentrationsänderungen von Ozon bei. Wenn man annimmt, daß die Variabilität der Ozonkonzentration zu mindestens der Hälfte auf Transportprozesse zurückzuführen ist, sollte der Fehlerbeitrag aus den Unsicherheiten der Geschwindigkeitskonstanten für die in einem dreidimen-

sionalen Modell simulierte Ozonkonzentration unter 20 % liegen.

6 Ozonprognose

Die Vorhersage der räumlichen Verteilung und der zeitlichen Entwicklung der Ozonkonzentration in der Grenzschicht hängt nicht nur von Chemie in der betrachteten Luftmasse ab. Emission der Ozonvorläufer (wie CO) und atmosphärischer Transport, der durch Advektion und turbulente Durchmischung, die insbesondere über die Verdünnung von Luftmassen die Chemie beeinflusst, sind ebenfalls wichtige Einflußgrößen. Dies soll an einigen Beispielen durch Vergleich mit experimentellen Daten erläutert werden.

In Abb. 2-5 ist der Vergleich von Modellrechnungen mit Messungen aus einer Photosmogepisode im August 1990 dargestellt. Die numerische Simulation basiert auf einem einfachen Zwei-Schichten-Modell der Grenzschicht und Vernachlässigung des Austausches mit der freien Troposphäre. Gemessene Photolysefrequenzen, Temperatur, Druck, Feuchte sowie gemessene Konzentrationen von Ozonvorläufern wie NO_2 , CO und Kohlenwasserstoffe in der unteren Schicht werden als Antrieb des Modells verwendet. Damit fallen Emissionen primärer Spurengase und auch ein Teil des horizontalen Transports als Quelle für Unsicherheiten weg. Die ziemlich gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zeigt, daß die Chemie zusammen mit dem vertikalen Austausch zwischen der bodennahen und der darüberliegenden Reservoirschicht den größten Teil des Tagesgangs und auch die tagübergreifende Entwicklung während der ersten wie der zweiten Phase der Episode richtig wiedergibt. Der rasche Anstieg des

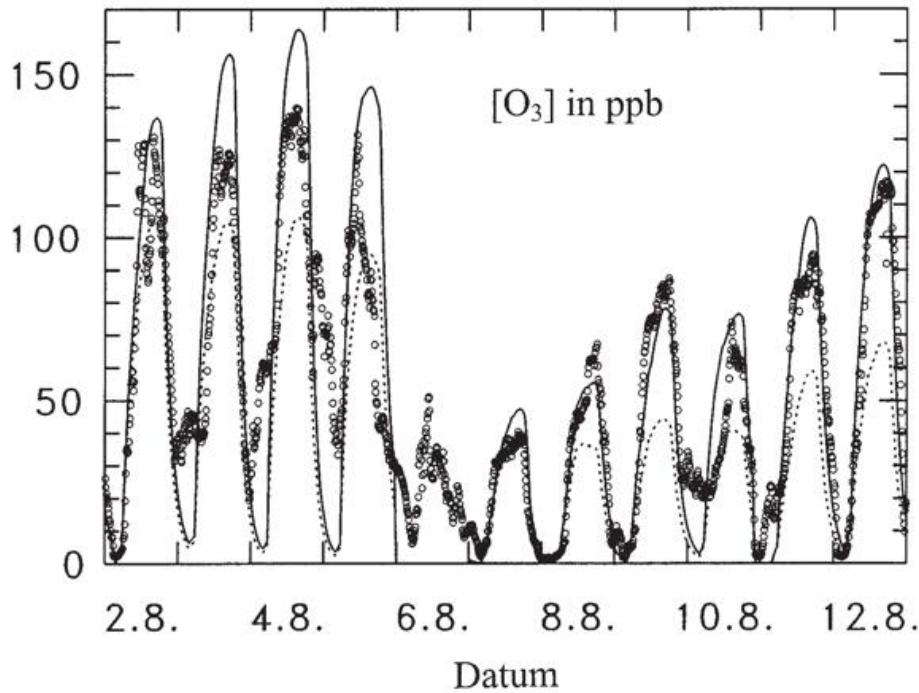


Abb. 2-5:
Das Mischungsverhältnis von Ozon als Funktion der Zeit (02.08.-12.08.1990) in Jülich. Die eingetragenen Punkte entsprechen Meßdaten in Bodennähe. Die Linien zeigen Modellergebnisse unter Berücksichtigung der Isoprenemission (durchgezogene Linie) und ohne Isoprenemission (gestrichelte Linie).

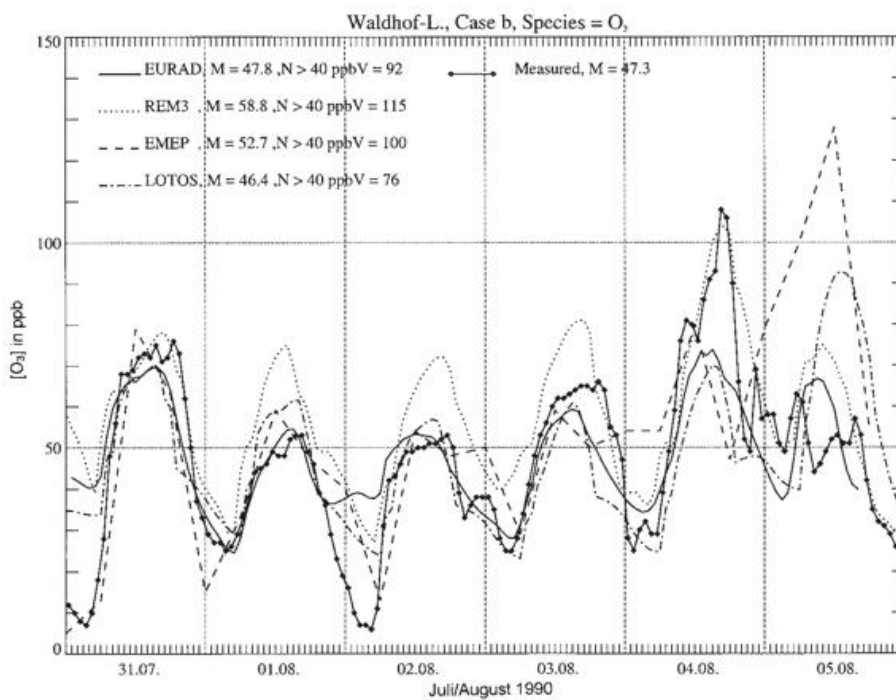


Abb. 2-6:
Tagesgänge von Ozon während einer Sommersmogepisode 1990. Die Rechnungen erfolgten mit den Modellen EURAD, REM3, EMEP und LOTOS. Die Meßdaten (durchgezogen) sind von der Station Waldhof (nach Hass et al. 1997).

Ozons im Laufe des Morgens ist wesentlich durch Heruntermischen ozonreicher Luft aus der Reservoirschicht hervorgerufen. Der Anstieg der täglichen Maxima spiegelt dagegen die viel kleinere chemische Produktion von Ozon wider. Daß Emission und atmosphärischer Transport wesentliche Einflußfaktoren sind, zeigt Abb. 2-6 mit Ergebnissen von 3-dimensionalen CTM-Simulationen (Hass et al. 1997), bei denen ein Modellantrieb durch Emissionen und ein mesoskaliges meteorologisches Modell (MM5) erfolgt.

Die insgesamt größeren Unterschiede gegenüber den Modellen sind auch auf die Unsicherheiten der Emission und des atmosphärischen Transports zurückzuführen.

7 Zusammenfassung

Ozonkonzentrationen in der Grenzschicht sind durch Chemie sowie Transport und Emissionen etwa gleichermaßen bestimmt. In der Chemie wird die Ozonproduktion durch Stoffkreisläufe gesteuert, die durch Stickoxide geregelt und durch Kohlenwasserstoffe angetrieben werden. Dazu tragen anthropogene und biogene Kohlenwasserstoffe bei. Die experimentellen Unsicherheiten in der Chemie können 40 % betragen und leisten einen wesentlichen Fehlerbeitrag bei einer Ozonprognose. Vergleiche zwischen Modellergebnissen und Messungen demonstrieren aber, daß ein gutes Verständnis der chemischen Abläufe erreicht wurde und die Beobachtungen im Rahmen der erwarteten Unsicherheit vorhergesagt werden können.

Literatur

- ATKINSON, R., 1994: Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds, *J. Phys. Chem. Ref. Data, Monograph*, 2, 1-216.
- CARTER, W.P.L., R. ATKINSON, 1996: Development and evaluation of a detailed mechanism for the atmospheric reactions of isoprene and NO_x, *International Journal of Chemical Kinetics*, 28, 497-530.
- DEMORE, W. B. et al., 1997: Chemical kinetics and photochemical data for use of stratospheric modeling, *Jet Propulsion Laboratory Publication 97-4*, California Institute of Technology, Pasadena, USA.
- GUENTHER, A., C.N. HEWITT, D. ERICKSON, R. FALL, C. GERON, T. GRAEDEL, P. HARLEY, L. KLINGER, M. LERDAU, W.A. MCKAY, T. PIERCE, B. SCHOLLES, R. STEINBRECHER, R. TALLAMRAJA, J. TAYLOR, P. ZIMMERMAN, 1995: A global model of natural volatile organic compound emissions, *J. Geophys. Res.*, 100, 8873-8892.
- HASS, H., P.J.H. BUILTJES, D. SIMPSON, R. STERN, 1997: Comparison of model results obtained with several European regional air quality models, *Atmos. Environ.*, 31, 3259-3279.
- KEMPF, K., E. ALLWINE, H. WESTBERG, C. CLAIBORN, B. LAMB, 1996: Hydrocarbon emissions from spruce species using environmental chamber and branch enclosure methods, *Atmos. Environ.*, 30, 1381-1389.
- STOCKWELL, W.R., P. MIDDLETON, J.S. CHANG, X. TANG, 1990: The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, 95, 16343-16367.
- STAEHELIN, J., J. DOMMEN, 1994: Sommersmog aus der Sicht der Atmosphärenchemie, *GAIA*, 3, 157-169.

3 Räumliche und zeitliche Verteilung anthropogener Quellen der Vorläufersubstanzen für Ozon

1 Einleitung

Die Verfügbarkeit von Daten über die Emission atmosphärischer Spurenstoffe stellt eine wichtige Grundlage für eine rationale und effiziente Luftreinhaltepolitik dar. Anhand solcher Daten lassen sich z. B. im Rahmen der Erstellung von Luftreinhalteplänen diejenigen Quellgruppen identifizieren, bei denen die Durchführung von Maßnahmen zur Minderung der Emissionen besonders wünschenswert erscheinen. Sind die maßgeblichen Quellen bekannt, können aus den Emissionsdaten Potentiale möglicher Emissionsmaßnahmen abgeschätzt sowie effiziente Strategien zur Emissionsminderung identifiziert werden. Mit der Aufstellung von Emissionszeitreihen über mehrere Jahre hinweg lassen sich zudem die Auswirkungen zwischenzeitlich umgesetzter emissionsmindernder Maßnahmen auf die Emissionssituation im untersuchten Gebiet überprüfen. Die Abb. 3-1 zeigt die zeitliche Entwicklung der anthropogenen Emissionen an NO_x und NMVOC = *Non-Methan volatile organic compounds* (Leicht flüchtige Kohlenwasserstoffe außer Methan) in Deutschland (alte und neue Bundesländer) für die Jahre 1975 bis 1994 auf (BMU 1996). Die NO_x -Emissionen weisen bis in die zweite Hälfte der neunziger Jahre ein annähernd gleichbleibendes Niveau auf. Danach erfolgt ein stetiger Rückgang der jährlichen Emissionen im Straßenverkehr, bedingt durch die Zunahme des Bestands an schadstoffarmen Fahrzeugen, sowie bei großen Feuerungen in Kraftwerken und der Industrie durch den Einsatz von SCR-Anlagen (Selective Catalytic Reaction) und Primärmaßnahmen. Die jährlichen NMVOC-Emissionen bleiben bis 1990 relativ konstant, danach macht sich die Reduzierung der Emissionen im Straßenverkehr bemerkbar (Abgasreinigung durch geregelten Katalysator, Minderung der Benzinverdunstung durch Aktivkohlefilter).

Die Verfügbarkeit von Emissionsdaten stellt zudem eine unabdingbare Voraussetzung zur Modellierung der atmosphärischen Ausbreitung und luftchemischen Umwandlung von Schadstoffen dar. Mit derartigen numerischen Simulationsmodellen lassen sich die vielfach komplexen und nicht-linearen Beziehungen zwischen Emission und Immission von Luftschadstoffen untersuchen und nachvollziehen. Weiterhin bieten diese Modellrechnungen die Möglichkeit, den Einfluß emissionsmindernder Maßnahmen auf die Immissionssituation zu simulieren, so daß letztendlich Emissionsminderungsstrategien entwickelt werden können, die zu einer effizienten Verminderung von Immissionen – in diesem Fall des aus den Vorläufersubstanzen NO_x und reaktiven NMVOC gebildeten Ozons – führen.

Werden Daten über die Freisetzung von Photooxidantienvorläufer als Eingabegrößen für Chemie-Transport-Modelle (CTM) genutzt, müssen sie, der ausgeprägten Dynamik der ablaufenden atmosphärischen Prozesse entsprechend, allerdings in einer hohen räumlichen und zeitlichen Auflösung vorliegen. Gefordert werden hier keine jährlichen Gesamtwerte für ein ganzes Untersuchungsgebiet, sondern typischerweise stündliche Emissionswerte für Raster mit einer Größe von z. B. $1 \text{ km} \cdot 1 \text{ km}$. Die Methoden zur Berechnung solch räumlich und zeitlich hochaufgelöster Emissionsdaten sowie exemplarische Ergebnisse werden im folgenden vorgestellt.

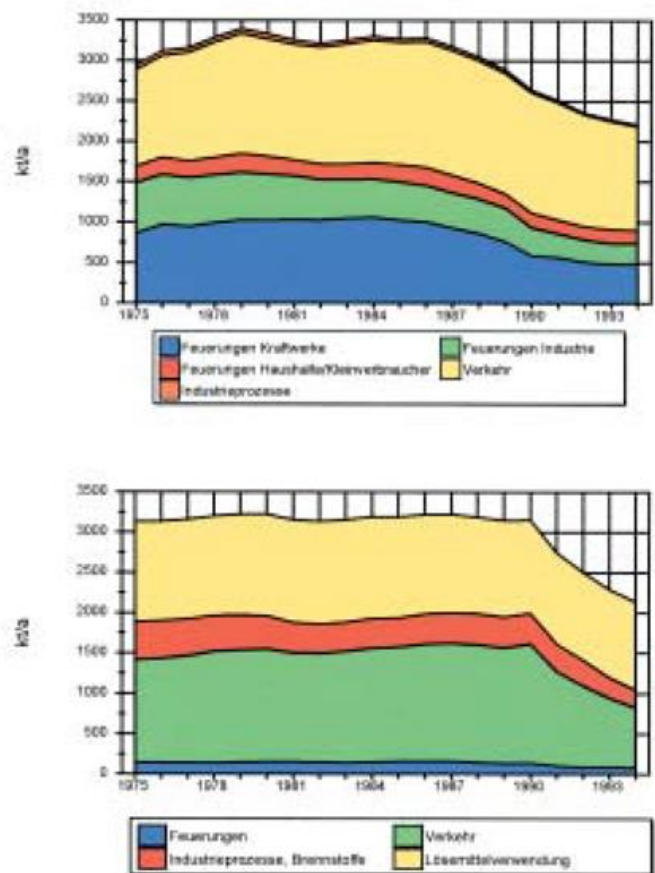


Abb. 3-1: Entwicklung der anthropogenen NO_x -Emissionen (Bild oben) und NMVOC-Emissionen (Bild unten) in Deutschland (BMU 1996)

2 Methoden zur Berechnung von NO_x- und NMVOC-Emissionen

2.1 Grundsätzliche Vorgehensweise

Zur Erstellung eines Emissionskatasters für ein festgelegtes Gebiet, in dem sich eine Vielzahl einzelner Quellen befindet, ist es verständlicherweise nicht möglich, Messungen an jeder einzelnen dieser Quellen vorzunehmen. Die Durchführung von z. T. sehr aufwendigen Emissionsmessungen muß sich vielmehr auf eine mehr oder minder große Auswahl an Einzelquellen konzentrieren, welche als möglichst repräsentativ für größere Kollektive gleichartiger Quellen (Quellgruppen) angesehen werden können. Zudem müssen bei den Messungen all diejenigen Parameter variiert werden, welche das Emissionsverhalten der einzelnen Quellgruppen entscheidend prägen. Beispielsweise sind zur Erfassung des Abgas-Emissionsverhaltens von Kraftfahrzeugen Messungen für die im Straßenverkehr typischerweise auftretenden Geschwindigkeiten, Lastzustände des Motors usw. (definierte Fahrzyklen) vorzunehmen. Die Ergebnisse der Emissionsmessungen können dann zur Bildung sogenannter Emissionsfaktoren herangezogen werden, welche die emittierte Masse an Spurenstoffen je Einheit einer emissionsverursachenden Aktivität angeben. Ein Emissionsfaktor für einen bestimmten Fahrzeugtyp und eine definierte Fahrsituation ist dann zum Beispiel in der Einheit „Gramm NO_x-Emission pro Kilometer Fahrstrecke“ ausgewiesen.

Somit besteht die grundsätzliche Vorgehensweise in der Berechnung der Emissionen einer Quellengruppe darin, die emissionsrelevante Gesamtaktivität des Quellenkollektivs mit einem geeigneten Emissionsfaktor zu multiplizieren. Da solche Aktivitätsdaten allerdings meist nicht oder zumindest nicht in der erforderlichen Aufschlüsselung verfügbar sind, besteht die Aufgabe bei der Erstellung eines Emissionskatasters vor allem auch darin, aus den tatsächlich verfügbaren Daten (z. B. verschiedenste sozio-ökonomische Statistiken, Energie- und Materialbilanzen, meteorologische Daten, Auswertungen von Erhebungen etc.) Rückschlüsse auf die gewünschten Daten zu ziehen bzw. diese in der notwendigen Disaggregation ersatzweise abzuschätzen. Dies trifft vor allem auch dann zu, wenn – wie nachfolgend skizziert – zeitlich und räumlich hochaufgelöste Emissionsdaten berechnet werden sollen. Ausführliche Darstellungen finden sich beispielsweise in (John 1999), (Seier 1998), (Obermeier 1995) sowie (Obermeier et al. 1995).

2.2 Räumliche und zeitliche Auflösung

In der Berechnung räumlich und zeitlich hochaufgelöster Emissionsdaten für Luftverunreinigungen wird grundsätzlich zwischen punkt-, linien- und flächenbezogenen Betrachtungen unterschieden.

Punktquellen

Die Emissionen von immissionsschutzrechtlich genehmigungsbedürftigen bzw. emissionserklärungsspflichtigen Anlagen (sowie ggf. weiteren Quellenarten) werden vorzugsweise punktförmig abgebildet, d. h., die Emissionen dieser Quellen werden anlagen- und standortbezogen ermittelt. Als Grundlage hierfür können die bei den katasterführenden Stellen der Bundesländer vorhandenen Emissionserklärungen der Anlagenbetreiber verwendet sowie alternativ bzw. ergänzend eigene Betreiberbefragungen durchgeführt werden, wobei die Bereitstellung folgender Daten im Vordergrund steht:

- Branchenzuordnung des Betriebes,
- Gemeindekennziffer des Betriebsstandortes,
- Art und Typ der Anlage,
- Anlagenleistung,
- Art und Menge der gehandhabten Stoffe,
- geographische Lage der Emissionsquelle (z. B. in Gauss-Krüger-Koordinaten),
- Höhe der Quelle über Grund,
- Quellengeometrie,
- Art der installierten Abluftreinigungsanlagen,
- Art und Menge der bei verschiedenen Betriebsmodi bzw. Emissionsmodi jährlich emittierten Komponenten,
- Abluftvolumenstrom,
- Ablufttemperatur,
- Häufigkeit und Dauer der Emissionsvorgänge bzw. jährliche Betriebsstundenzahl der Anlagen,
- ggf. stündliche Emissionswerte bzw. Angaben zur Charakterisierung des Betriebsablaufes während ausgewählter Episoden.

Mit o. g. Angaben können Emissionsdaten unter Berücksichtigung der exakten geographischen Lage der Quelle und der Quellenhöhe bereitgestellt werden. Auch die Fahnenüberhöhung läßt sich berechnen. Weitere Angaben wie z. B. die Branchenzuordnung, die genaue Anlagenbezeichnung, die Gemeindezugehörigkeit des Anlagenstandortes sowie die gehandhabten Mengen emissionsrelevanter Stoffe (z. B. Energieträger, Lacke und andere lösemittelhaltige Erzeugnisse) dienen dem erforderlichen Abgleich der punktbezogenen mit den später beschriebenen flächenhaften bzw. statistischen Emissionsberechnungen. Dieser Abgleich ist notwendig, da die Einzelquellen sonst doppelt – d. h. als Punkt- und gleichzeitig als Flächenquelle – erfaßt würden.

Zur zeitlichen Auflösung von Jahresemissionen bzw. auf Jahresbasis verfügbarer Daten über emissionsrelevante Aktivitäten werden statistische Daten wie z. B. monatliche Nettoproduktionsindizes der Wirtschaftszweige im Verarbeitenden Gewerbe, meteorologische Daten wie z. B. stündliche Temperaturwerte in Bodennähe sowie Informationen über Nutzergewohnheiten einbezogen. Da hierzu branchen- und prozeßbezogene typische Zeitgänge verwendet werden, sind entsprechende Angaben erfor-

derlich. Die in Emissionserklärungen enthaltenen zeitbezogenen Angaben zu den Emissionsvorgängen liefern hierbei ergänzende Informationen zur Beschreibung der Emissionsverteilungen auf Werkstage und Wochenendtage sowie zur Ableitung von Tagesgängen.

Linienquellen

Der Kraftfahrzeugverkehr auf Außerortsstraßen wird überwiegend in Form von Linienquellen abgebildet. Dies trifft vor allem auf den Verkehr auf Autobahnen, Bundesstraßen sowie Landes- und Kreisstraßen zu. Im Falle kleinräumiger Untersuchungen wie z. B. für Stadtgebiete werden oft auch wichtige Innerortsstraßen linienförmig erfaßt. Die Emissionsberechnungen basieren auf:

- digitalisierten Straßendaten, welche die geographische Lage und Beschaffenheit der einzelnen Straßenabschnitte beschreiben,
- Verkehrsstärke-Informationen bzw. durchschnittliche tägliche Verkehrsmengen (DTV-Mengen) für jeden Straßenabschnitt,
- Zählergebnissen kontinuierlich arbeitender Verkehrszählstellen sowie ggf. auch eigenen Verkehrserhebungen während ausgewählter Episoden,
- Kraftfahrzeug-Zulassungsstatistiken, aufgeschlüsselt nach Fahrzeugart, Antriebskonzept und Schadstoff-Minderungstechnik,
- fahrstreckenbezogenen, geschwindigkeitsabhängigen Emissionsfaktoren für sämtliche Fahrzeugklassen.

Die Ermittlung stündlicher Emissionen für jeden einzelnen Straßenabschnitt erfolgt durch Multiplikation der Verkehrsstärkeinformationen mit Ganglinienwerten, die aus den Zählstellenergebnissen abgeleitet werden, und den genannten Emissionsfaktoren. Da die DTV-Angaben und Zählstellenergebnisse nur grob nach Fahrzeugarten unterscheiden, müssen die detaillierten Fahrzeugklassen zur weiteren Verfeinerung auf jede Straßenart bzw. die einzelnen Streckenabschnitte abgebildet werden. Hierzu werden die ebenfalls oben aufgeführten Kfz-Zulassungsdaten herangezogen.

Flächenquellen

Alle übrigen Emissionsquellen, die sich weder punktnoch linienförmig abbilden lassen, werden schließlich flächenhaft erfaßt. Dies beinhaltet insbesondere:

- den innerörtlichen Straßenverkehr sowie den Außerortsverkehr auf Gemeindestraßen (soweit nicht als Linienquellen betrachtet),
- die Benzinverdunstung innerhalb der Verteilungskette vom Raffinerieabsatz bis hin zur Zapfsäule der Straßentankstellen (soweit nicht als Punktquellen erfaßt) sowie am Kraftfahrzeug (Tankatmung, Abstellverluste),

- die nicht genehmigungsbedürftigen Feuerungsanlagen in der Industrie, im Kleinverbraucherbereich sowie in Haushalten,
- den Einsatz von lösemittelhaltigen Produkten (z. B. Anstrichmittel und Verdünnungen, Druckfarben, Klebstoffe, Entfettungsmittel, Konsumgüter) in allen gewerblichen und privaten Anwendungsbereichen (soweit nicht als Punktquellen erfaßt),
- diverse emissionsrelevante Produktionsprozesse (z. B. in der kunststoffverarbeitenden Industrie, im Baugewerbe, im Nahrungs- und Genußmittelgewerbe).

Die Emissionen jeder Quellgruppe werden zunächst unter Verwendung sektor- bzw. prozeßbezogener Emissionsfaktoren auf Länderebene ermittelt und anschließend mittels geeigneter Indikatoren – wie z. B. branchenbezogener Beschäftigtenzahlen, Einwohnerzahlen oder Kfz-Bestandsdaten – regionalisiert. Die zeitliche Auflösung flächenhaft ermittelter Emissionen erfolgt – ähnlich wie bei Punktquellen – mit Hilfe von meteorologischen Daten (bodennahe Lufttemperatur), Produktionsindizes sowie quelltypbezogenen Zeitgängen. Die Umrechnung der z. B. gemeindeweise ermittelten Daten anthropogener Emissionen auf Raster im Gauss-Krüger-Koordinatensystem erfolgt auf der Basis von Landnutzungsdaten, die eine Unterscheidung von nicht bebauten, bebauten sowie dicht bebauten Gebieten ermöglichen.

3 Räumliche und zeitliche Variabilität der NO_x- und NMVOC-Emissionen

Die Abb. 3-2 und Abb. 3-3 verdeutlichen die räumliche Verteilung der anthropogenen NO_x- bzw. NMVOC-Emissionen in Deutschland für das Jahr 1994 (Wickert et al. 1999). Die Ausdehnung der dargestellten Rasterelemente beträgt 3 km · 3 km. Im Falle der NO_x-Emissionen (Abb. 3-2) treten besonders hohe Emissionen eher punktuell auf, und zwar an Standorten großer Kraftwerke und Industriefeuerungen. Darüber hinaus sind Autobahnen und stark frequentierte Bundesstraßen als Emissionsschwerpunkte erkennbar. Im Gegensatz dazu weisen die NMVOC-Emissionen (Abb. 3-3) ein völlig anderes räumliches Verteilungsmuster auf. Hier stehen die Ballungsgebiete und dicht besiedelten sowie verkehrsreichen Städte als Emissionsschwerpunkte eindeutig im Vordergrund. Einzelne Punktquellen sowie Autobahnen sind demgegenüber kaum auszumachen.

Die Bedeutung einer hohen zeitlichen Auflösung wird anhand von Abb. 3-4 deutlich: Hier sind stündliche NMVOC-Emissionen aus dem Straßenverkehr für jeweils eine Winter- und eine Sommerwoche des Jahres 1994 von ganz Deutschland dargestellt. Neben den reinen Abgasemissionen, die bei warmem Betriebszustand des Motors entstehen, haben auch die Tank-

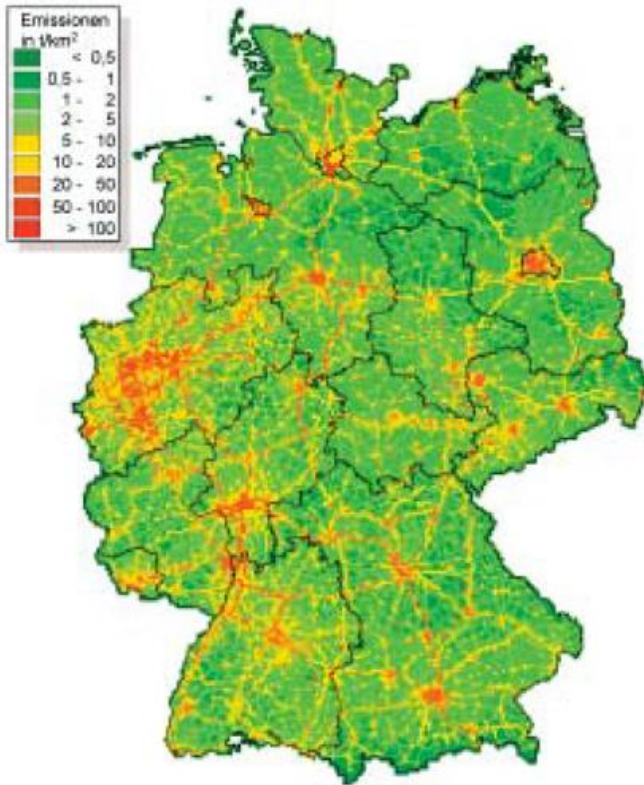


Abb. 3-2: Räumliche Verteilung der anthropogenen NO_x-Emissionen in Deutschland (1994)

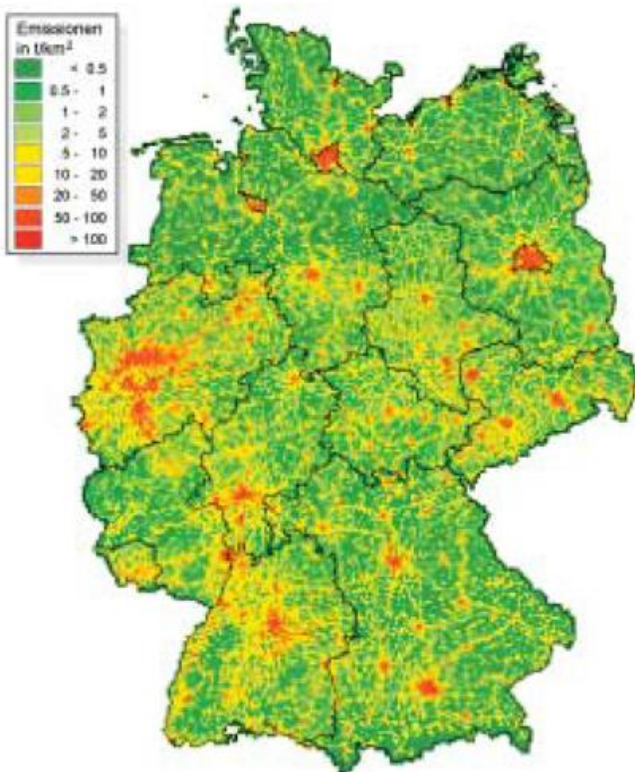


Abb. 3-3: Räumliche Verteilung der anthropogenen NMVOC-Emissionen in Deutschland (1994)

atmung (Verdampfungsverluste durch Schwankungen der Außentemperatur), die Hot Soak Emissionen (Verdampfungsverluste nach Abstellen eines warmgelaufenen Fahrzeugs) und die Kaltstartzuschläge (zusätzliche Emissionen während der Aufheizphase des Motors und des Katalysators) einen erheblichen Anteil an den Gesamtemissionen. In die Emissionsberechnungen gingen unter anderem die stündlichen Temperaturen von 21 meteorologischen Stationen sowie stündliche Daten von über 800 automatischen Zählstellen ein. Zunächst ist ein deutlicher Unterschied im zeitlichen Verlauf der Abgasemissionen während der Woche erkennbar, besonders im Tagesverlauf von Freitag, Samstag und Sonntag im Vergleich zu den untereinander sehr ähnlichen Tagesgängen von Montag bis Donnerstag. Der große Einfluß der temperaturabhängigen Emissionsprozesse (Kaltstart und Tankatmung) zeigt sich besonders ausgeprägt am Donnerstag und Freitag der Sommerperiode. Dort steigen die Außentemperaturen gegen Mittag stark an, wodurch die Kaltstartemissionen im Vergleich zu den vorherigen Tagen zurückgehen, die Verdunstungsemissionen dagegen ansteigen. Im Winter sind die Kaltstartemissionen wegen der niedrigeren Temperaturen über den gesamten Wochenverlauf höher als im Sommer, während die Tankatmung im Winter kaum eine Rolle spielt. Die Abgasemissionen liegen bei beiden Episoden wegen der saisonal nur sehr wenig variablen Fahrleistungen ungefähr auf demselben Niveau.

Daß die räumliche und auch die zeitliche Variabilität der NO_x- und NMVOC-Emissionen nicht deckungsgleich ist, wird auch aus den Zahlenwerten in Tab. 3-1 deutlich. Angegeben sind hier die Massenverhältnisse der anthropogenen NMVOC- zu NO_x-Emission in ausgewählten Gitterelementen in Baden-Württemberg, und zwar zum einen als Jahresdurchschnittswerte und zum anderen als stündliche Momentanwerte während eines Freitag mittags bei hochsommerlicher Wetterlage.

Gebiet	Rastergröße in km · km	Massenverhältnis NMVOC/NO _x	
		Jahresmittel	Stundenwert Freitag mittag
Baden-Württemberg	150 · 200	1,2	1,5
Region Schwäbisch Hall (dünn besiedelt)	60 · 60	1,4	1,7
Region Stuttgart (dicht besiedelt)	60 · 60	1,6	2,3
Stadtgebiet Stuttgart	25 · 20	1,8	2,6
Innenstadt Stuttgart	5 · 5	3,9	7,5

Tab. 3-1: Massenverhältnisse der anthropogenen NMVOC- zu NO_x-Emission in ausgewählten Gitterelementen in Baden-Württemberg

Aus Tab. 3-1 wird deutlich, daß neben den Emissionen auch die Massenverhältnisse der Emissionen verschiedener Photooxidantenvorläufer eine beträchtliche räumliche und zeitliche Variabilität aufweisen. So ist das

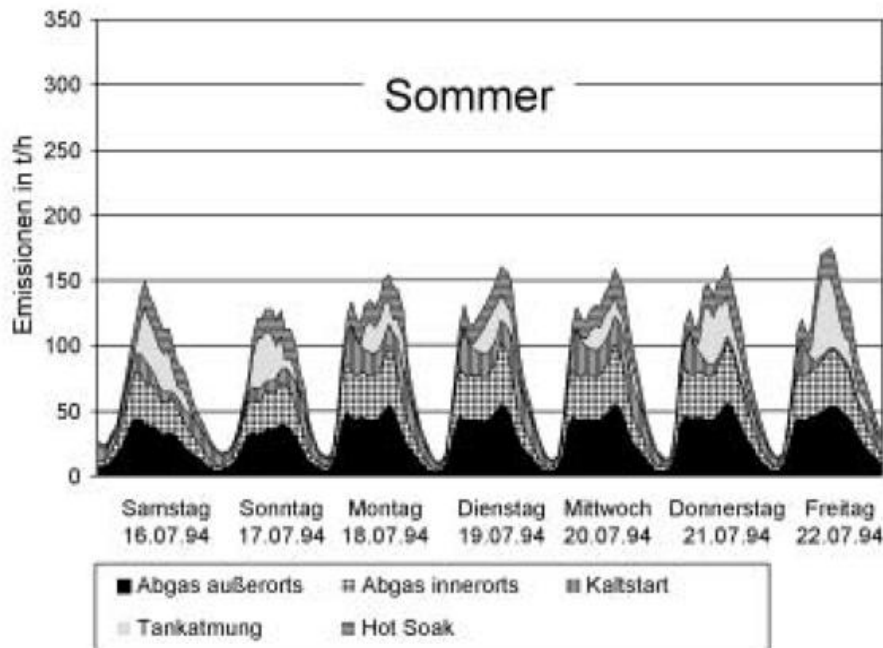


Abb. 3-4: Beispiel für den zeitlichen Verlauf der NMVOC-Emissionen des Straßenverkehrs im Jahr 1994 während einer Sommerepisode (oben) und einer Winterepisode (unten) für ganz Deutschland

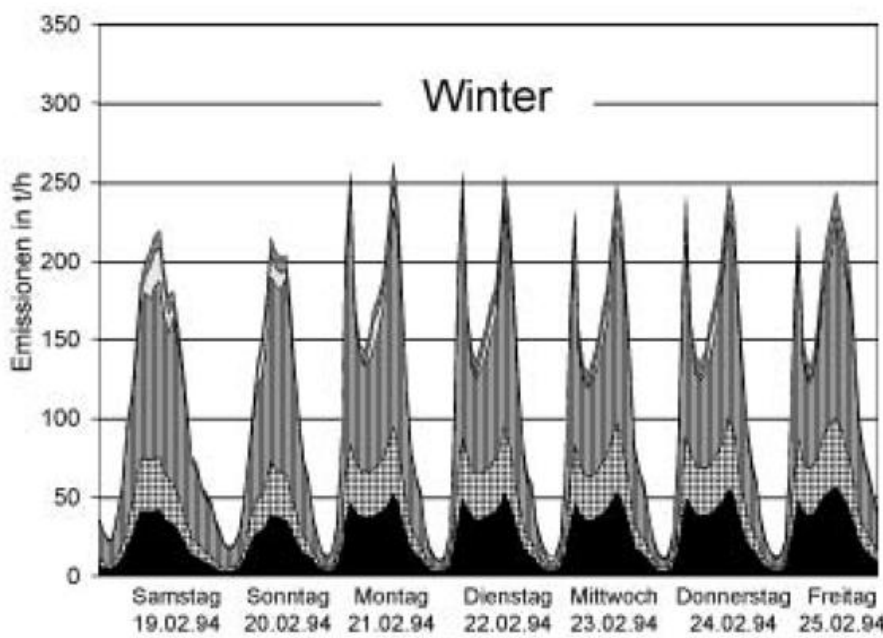
Literatur

BUNDESMINISTERIUM FÜR UMWELT, NATURSCHUTZ UND REAKTORSICHERHEIT, 1996: Bericht der Bundesregierung an den Deutschen Bundestag; Sechster Immissionsschutzbericht der Bundesregierung. Drucksache 13/4825, Bonn.

JOHN, C., 1999: Emissionen von Luftverunreinigungen aus dem Straßenverkehr in hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung – Untersuchung von Emissionsszenarien am Beispiel Baden-Württembergs. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart, Forschungsberichte IER (ISSN 0938-1228), Bd. 58, Stuttgart.

SEIER, J., 1998: Luftschadstoffemissionen aus Feuerungsanlagen. Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte FZKA 6062 (ISSN 0947-8620), Karlsruhe.

OBERMEIER, A., 1995: Ermittlung und Analyse von Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen in Baden-Württemberg. Institut für Energiewirtschaft und Rationelle Energieanwendung der Universität Stuttgart, Forschungsberichte IER (ISSN 0938-1228), Bd. 19, Stuttgart.



NMVOC/NO_x-Verhältnis an Sommertagen deutlich höher als im Jahresmittel. Darüber hinaus weist das Verhältnis je nach betrachtetem Gebiet bzw. gewählter Gitterauflösung aber auch erhebliche Schwankungen auf.

Eine realitätsnahe Simulation der Ozonbildung setzt damit ein hohes räumliches und zeitliches Auflösungsvermögen der eingesetzten Chemie-Transport-Modelle ebenso voraus wie die Bereitstellung entsprechend hochaufgelöster Emissionsdaten, welche den zeitlichen Verlauf und die räumliche Verteilung der Emissionen möglichst präzise wiedergeben.

OBERMEIER, A., FRIEDRICH, R., JOHN, C., SEIER, J., VOGEL, H., FIEDLER, F., VOGEL, B., 1995: Photosmog - Möglichkeiten und Strategien zur Verminderung des bodennahen Ozons. Ecomed, Landsberg.

WICKERT, B., SCHWARZ, U., BLANK, P., JOHN, C., KÜHLWEIN, J., OBERMEIER, A., FRIEDRICH, R., 1999: Generation of an Emission Data Base for Europe 1994. In: P. M. Borrell and P. Borrell (eds.): Proceedings of EUROTRAC Symposium '98. WITpress, Southampton.

FRIEDRICH, R., KESSELMEIER, J., MEIXNER, F.X., NEFTEL, A., OBERMEIER, A., STAUDT, M., 2000: Emissionen von Spurenstoffen. In: Guderian, R. (Hrsg.): Handbuch der Umweltveränderungen und Ökotoxikologie - Band 1A: Atmosphäre. Anthropogene und biogene Emissionen - Photochemie der Troposphäre - Chemie der Stratosphäre und Ozonabbau, S. 61-194. Springer, Heidelberg.

4 Räumliche und zeitliche Verteilung biogener Quellen der Vorläufersubstanzen für Ozon

1 Einleitung

Der stetige Anstieg von Kohlendioxid (CO_2) und einigen anderen Spurengasen in der Atmosphäre wird ernsthafte Konsequenzen für die Bewohnbarkeit unseres Planeten haben. Dazu gehören unter anderem:

- die globale Erwärmung aufgrund des stetigen Anstiegs der sogenannten „Treibhausgase“ (CO_2 , Methan (CH_4), und Distickstoffoxid (N_2O)),
- die Zerstörung der stratosphärischen antarktischen und arktischen Ozonschicht durch halogenierte Kohlenwasserstoffe und N_2O ,
- der Anstieg der troposphärischen Ozonkonzentration durch zunehmende anthropogene und biogene Emissionen von Stickoxiden (NO_x , $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$), Kohlenmonoxid (CO), und der Gruppe der sogenannten flüchtigen organischen Verbindungen (engl. „*volatile organic compounds*“, VOCs), darunter auch die Gruppe der Kohlenwasserstoffe.

Während globale und regionale CO - und NO_x -Budgets gegenwärtig meist durch anthropogene Aktivitäten dominiert werden, sind im übrigen biogene Prozesse (in Boden, Vegetation, Wasser und Tieren) bestimmend. Unser Wissen über die raum-zeitliche Verteilung der biogenen Emissionen, insbesondere wie diese mit regionalem Klima, Landschaftsform, bzw. Topographie variieren, ist noch sehr rudimentär (z.B. Meixner und Eugster 1999). Deshalb wird in diesem Kapitel hauptsächlich auf die biogeochemischen Grundlagen der NO_x - und VOC-Emissionen eingegangen. Aspekte der räumlichen und zeitlichen Verteilung der biogenen Ozon-Vorläufersubstanzen werden anschließend an einigen Fallbeispielen für den südwestdeutschen Raum näher betrachtet.

2 Biogene Spurengasemission aus Böden und Vegetation

Da viele Spurengase in Böden sowohl produziert als auch abgebaut werden, tragen Böden sowohl zu den Senken als auch zu den Quellen von CO , CH_4 , N_2O und NO im globalen und regionalen Maßstab bei (s. Tab. 4-1). Die angegebenen Zahlen weisen jedoch aus folgenden Gründen ein beachtliches Maß an Unsicherheit auf (Conrad 1996). Flußmessungen von Spurengasen können heute mit einer gewissen Vielfalt von Methoden durchgeführt werden. Die Zuverlässigkeit der einzel-

nen Methoden und die Repräsentativität der Messungen variiert sehr, da sie teils durch den Einschluß einzelner Blätter oder Zweige bzw. kleiner Bodenproben oder teils durch direkte mikrometeorologische Flußmessungen an hohen Türmen bzw. mit instrumentierten Flugzeugen durchgeführt werden. (Matson und Harriss 1995). Darüber hinaus ist es nicht trivial aus einzelnen (spezifischen) Feldmessungen auf regionale oder gar globale Spurengasemissionen zu schließen. Die meisten Unsicherheiten und Probleme können darauf zurückgeführt werden, daß entsprechende punktuelle Spurengasflüsse raum-zeitlich hochvariabel sind wegen der enormen Vielfalt von vorwiegend mikrobiellen Prozessen, die die Emissionen aus dem Boden regulieren. Ein übliches Verfahren zur Lösung solcher Probleme, nämlich die Integration biogener Emissionen über größere Flächen bzw. längere Zeiträume führt nicht unbedingt zum Erfolg, da „jede Emission (aus Böden) durch deterministische (mikrobielle) Prozesse bestimmt ist, welche sich nichtlinear verhalten, auch wenn sich die Umgebungsbedingungen nur wenig ändern“ (siehe Conrad 1996). Dies ist sicherlich genauso gültig für die biogenen Emissionen von flüchtigen Kohlenwasserstoffen (VOCs) aus Pflanzen (siehe Tab. 4-2). Es sind mittlerweile einige hundert biogene VOCs bekannt. Unter luftchemischen Aspekten sind relevant die Isoprenoide, Alkane und Alkene, organische Säuren (z.B. Ameisen- und Essigsäure), Carbonylverbindungen (z.B. Form- und Acetaldehyd), sowie Alkohole, einige Ester und Ether (z.B. Methanol, Ethanol, Ethylacetat). Die globale Quellstärke der prominentesten VOCs, Isopren und Monoterpene, wird gegenwärtig auf $300\text{-}980 \text{ Tg a}^{-1}$ geschätzt, was im Bereich derjenigen des atmosphärischen Methans (CH_4) liegt (540 Tg a^{-1} , siehe Tab. 4-1). Im allgemeinen wird der Kohlenstoffverlust durch biogene VOC-Emission in der Größenordnung einiger Prozent des durch Pflanzen assimilierten Kohlenstoffs eingeschätzt (Kesselmeier und Staudt 1999). Im globalen Maßstab tragen die biogenen VOCs mehr als zwei Drittel zu den VOC-Gesamtemissionen bei und spielen daher eine entscheidende Rolle für die troposphärische Oxidantien- (Ozon-) Bildung.

Spurengas	Mischungsverhältnis (ppbv)	Typische Lebenszeit (Tage)	Gesamtbudget (Tg a ⁻¹)	Jährlicher Anstieg (%)	Prozentualer Anteil der Böden an den Quellen (%)	Prozentualer Anteil der Böden an den Senken (%)
CO	70 - 170	100	2600	1,0	1	15
CH ₄	1700	4000	540	< 0,8	60	5
N ₂ O	310	60000	15	0,2 - 0,3	70	?
NO	< 0,1 - 20	1	60	?	20	?

Tab. 4-1:

Der Beitrag der biogenen Emission aus Böden zu den globalen Kreisläufen verschiedener Oxidantien-Vorläufergase (in Anlehnung an Meixner und Eugster 1999)

Spurengas	Mischungsverhältnis (ppbv)	Typische Lebenszeit (Tage)	Gesamtbudget (Tg a ⁻¹)	Jährlicher Anstieg (%)	Prozentualer Anteil der Pflanzen an den Quellen (%)	Prozentualer Anteil der Pflanzen an den Senken (%)
CO	70 - 170	100	2600	1,0	6	0
VOCs	0,1 - 100	0,004 - 2	900 - 1400	?	> 80	< 1 ?
NO	< 0,1 - 20	1	60	?	< 4	?

Tab. 4-2:

Der Beitrag der biogenen Emission aus Pflanzen zu den globalen Kreisläufen verschiedener Oxidantien-Vorläufergase (in Anlehnung an Meixner und Eugster 1999)

3 Mechanismen der Produktion und des Abbaus von Stickstoffmonoxid in Böden

Bodenprozesse können in chemische (abiotische) und mikrobielle (biotische) Vorgänge eingeteilt werden. Abiotische Prozesse, insbesondere die thermische Dekomposition von Huminsäuren und anderem organischen Material dominieren die Produktion von Kohlenstoffmonoxid (CO) in Böden, jedoch können biogene CO-Emissionen – verglichen mit anthropogenen CO-Emissionen (Industrie, Verkehr) – als vernachlässigbar erachtet werden (siehe Tab. 4-1). Bei den biotischen Prozessen in Böden sind Mikroorganismen für nahezu alle Produktions- und Abbauprozesse von Spurengasen verantwortlich. In ihrem oxidativen und reduktiven Stoffwechsel können Spurengase die Substrate für deren Wachstum sein, bzw. die Rolle von Partnern im Stoffwechselvorgang übernehmen, oder sie stellen stöchiometrische oder andere Produkte dar. Für eine ausgezeichnete und umfassende Übersicht relevanter Mikroorganismen und metabolischer Prozesse wird auf die Arbeit von Conrad (1996) verwiesen, aus der wir lernen können, daß jede Produktion bzw. jeder Abbau von Spurengasen in Böden (und damit jeglicher Spurengasaustausch zwischen Böden und Atmosphäre) prinzipiell auf der mikroskopischen Ebene des Stoffwechsels der Mikroorganismen reguliert wird. Will man jedoch die Rolle biogener Bodenemissionen bei der (regionalen) Oxidantienbildung untersuchen, müssen höhere Organisations- und Kontrollebenen der Spurengasemissionen betrachtet werden.

Obwohl die Kontrollmechanismen der CH₄-Emission ein äußerst interessantes und wohluntersuchtes Forschungsgebiet darstellen, beschränkt sich das folgende auf die Beschreibung der Stickstoffmonoxidemission.

Denn die CH₄-Emissionen aus Böden in mitteleuropäischen Breiten tragen nicht wesentlich zur Oxidantienbildung bei.

Im Boden werden stickstoffhaltige Moleküle ständig zwischen den Kompartimenten Boden-Pflanzen-Tierwelt verschoben. Zentral dabei ist, daß die verschiedenen Lebewesen ihren Stickstoffbedarf in verschiedenen Formen decken müssen. Ohne näher auf den sich im Boden einstellenden Stickstoffkreislauf einzugehen, sei festgehalten, daß Mikroorganismen (Bakterien und Pilze) organisch gebundenen Stickstoff in anorganische Formen umwandeln. Die Oxidation von Ammonium zu Nitrat (*Nitrifikation*) erfolgt in mehreren Schritten durch nitrifizierende Bakterien. Diese fixieren CO₂ für die Synthese von Biomasse und brauchen molekularen Sauerstoff für die Reaktion, d.h. sie benötigen einen gut durchlüfteten, aeroben Boden. Bei der *Denitrifikation* reduzieren denitrifizierende Mikroorganismen zur Energiegewinnung Nitrat und Nitrit bei Sauerstoffmangel (anaerobe Bedingungen) in mehreren Schritten enzymatisch zu gasförmigen N-Verbindungen (NO, N₂O und N₂). Conrad (1996) und Ludwig et al. (2000) geben gute Übersichten über die Vielfalt und Komplexität der biotischen und abiotischen Prozesse der Stickstoffumwandlung im Boden. Nitrifikation und Denitrifikation können zur Produktion, die Denitrifikation auch zum Abbau von NO (und N₂O) in Böden führen; beide Prozesse sind somit für den NO-Austausch zwischen Boden und Atmosphäre hauptsächlich verantwortlich. Unter stationären Bedingungen bestimmt das Verhältnis von Produktions- zu Abbaurate die jeweilige Konzentration in der Bodenluft. Da für NO diese im allgemeinen höher ist als die entsprechende Konzentration in der bodennahen Luftschicht, wird NO aus Böden meistens emittiert.

tiert. Gelegentlich konnte selbst bei niedrigen, für sog. Reinluftgebiete typischen atmosphärischen NO-Mischungsverhältnissen von etwa 1-2 ppbv, bei niedrigen Bodenwassergehalten (< 10%) bzw. bei geringer mikrobieller Aktivität des Bodens über längere Zeiträume eine signifikante NO-Nettodeposition nachgewiesen werden (Ludwig et al. 2000). Sind die Konzentrationen in beiden Kompartimenten (Boden, Atmosphäre) gleich, so wird der Austausch zu Null. Der bidirektionale Austausch zwischen Boden und Atmosphäre kann durch das Konzept der Kompensationskonzentration beschrieben werden (Conrad 1996).

4 Bestimmende Größen des NO-Austausches zwischen Böden und Atmosphäre

Im Hinblick auf die oben erwähnten Prozesse, welche die Konzentration in der Bodenluft bzw. das Austauschverhalten von NO zwischen Böden und bodennaher Luftschicht bestimmen, können die wichtigsten Einflußfaktoren wie folgt benannt und beschrieben werden.

Bodenwassergehalt und Sauerstoffangebot

Unter sehr trockenen Bodenverhältnissen werden nur minimale mikrobielle Aktivitäten beobachtet, welche allerdings nach den ersten Niederschlagsereignissen dramatisch ansteigen (z.B. Ludwig et al. 2000). Die Anzahl der mit Wasser gefüllten Bodenporen regelt darüberhinaus die Verfügbarkeit von Sauerstoff im Boden. Hinsichtlich der O₂-Verfügbarkeit sind Nitrifikation und Denitrifikation gegenläufige Prozesse. Der Bodenwassergehalt beeinflusst auch den diffusiven Transport aller gasförmigen und gelösten Reaktanden und Produkte der Nitrifikation und Denitrifikation. Der optimale Bodenwassergehalt für die NO-Emission liegt meist bei 10-30% des mit Wasser gefüllten Bodenporenraumes, bei höheren Bodenwassergehalten werden zunehmend Distickstoffoxid (N₂O) bzw. molekularer Stickstoff (N₂) emittiert (siehe Abb. 4-1).

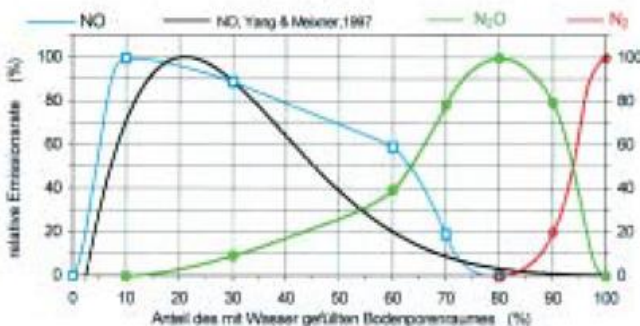


Abb. 4-1: Der Einfluß des mit Wasser gefüllten Porenraumes auf die relativen Emissionen von NO, N₂O und N₂ aus Böden (in Anlehnung an Meixner und Eugster 1999)

Bodentemperatur

Die biogene NO-Emission (wie die meisten biologischen Prozesse) zeigt im allgemeinen eine (exponentielle) Temperaturabhängigkeit. So wurden bei Labor- und Feldversuchen für einen Anstieg der Bodentemperatur von 10 °C auf 20 °C eine Verdoppelung bis Verfünffachung der NO- bzw. N₂O-Emissionsraten beobachtet. Nitrifikation und Denitrifikation weisen in Böden ein Optimum bei 25-35 °C auf. Solange jedoch die NO-Emission durch zu geringe Bodenwassergehalte limitiert wird, kann eine deutliche Temperaturabhängigkeit der NO-Emission nicht beobachtet werden (Ludwig et al. 2000).

Bodenbeschaffenheit und Vegetationsbedeckung

Die chemische Bodenbeschaffenheit, vor allem die Verfügbarkeit von anorganischem Stickstoff, ist eine wichtige regulierende Größe der NO-Emission aus Böden, da die den Emissionen zugrundeliegenden Prozesse (Nitrifikation, Denitrifikation) oft durch die Eigenschaften der jeweiligen Stickstoffverbindung begrenzt sind. Zuweilen gelingt es, den mittleren Nitrat- bzw. Ammonium-Gehalt des Bodens als indirektes (leichter zugängliches) Maß für den Stickstoffumsatz im Boden, und damit auch für NO-Emissionen zu benutzen (siehe Abb. 4-2); generell hat sich bislang jedoch kein einheitliches Bild ergeben. Im Vergleich zu unbewachsenen Böden wird durch Pflanzen – vor allem im Wurzelbereich – die physikalische und chemische Bodenbeschaffenheit geändert. Durch diese Veränderungen kann die Vegetationsbedeckung einen erheblichen Einfluß auf die Nitrifikation bzw. Denitrifikation, sowie auf den diffusiven Transport im Boden haben. Bei Feldversuchen wurde über Böden mit niedriger Vegetation eine im Vergleich zum unbewachsenen Boden niedrigere NO Emission gefunden. Ein bislang wenig erforschter Effekt eines Pflanzenbestandes auf die NO-Emission aus Böden besteht darin, daß das aus dem Boden stammende NO den Pflanzenbestand nur in geringeren Mengen bzw. überhaupt nicht mehr als Stickstoffmonoxid verläßt. Innerhalb des Pflanzenbestandes kann nämlich NO durch

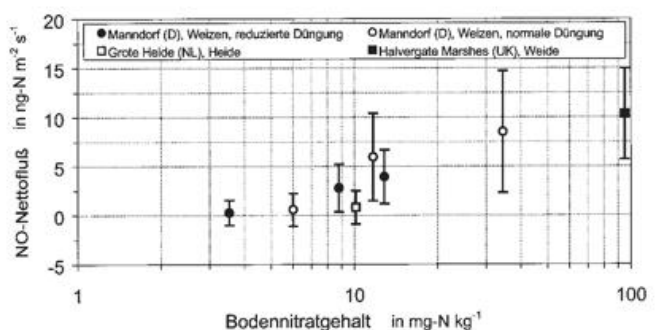


Abb. 4-2: Der Nettofluß von NO über verschiedenen europäischen Ökosystemen in Abhängigkeit des Bodennitratgehaltes (nach Ludwig et al. 2000): Halvergate (UK) September 1989, Manndorf (Niederbayern), Mai, Juni, Juli, August 1990, Grote Heide (NL) Mai 1991.

Ozon ganz oder teilweise zu Stickstoffdioxid (NO_2) umgewandelt werden. NO_2 kann dann aus dem Pflanzenbestand über den turbulenten Austausch in die bestandsnahe Luftschicht gelangen, sofern es nicht zuvor von Pflanzenteilen aufgrund der Deposition aufgenommen wurde (siehe Jacob und Wofsy 1990).

Anthropogene Einflußfaktoren

Mit dem Aufbringen von Hof- und Mineraldünger wird den Mikroorganismen das nötige Stickstoffsubstrat in großer Menge geliefert und ihre Aktivität angeregt, wenn die Umweltbedingungen (Bodenfeuchte, -temperatur) dies zulassen. Dies trifft im allgemeinen für Waldökosysteme nicht zu. Dort können jedoch die Emissionen von stickstoffhaltigen Gasen (NO_x , NH_3) aus Hausbrand, Verkehr, Landwirtschaft und Industrie zum dauerhaften (bzw. episodenhaften) nassen bzw. trockenen Eintrag von Nitrat und Ammonium aus der Atmosphäre führen, welcher über dem Bedarf dieser Ökosysteme liegen kann. Damit erhöhen sich auch die NO - (und N_2O) Emissionen aus Waldböden (z.B. Butterbach-Bahl et al. 1997).

Zusammenfassend soll nach Darstellung der wesentlichen Prozesse der Produktion und des Abbaus von NO und der sie kontrollierenden Einflußgrößen folgendes festgehalten werden:

- die Anzahl der relevanten mikrobiellen Prozesse im Boden ist groß und erst zum Teil in ihrer Wirkweise verstanden (insbesondere Nitrifikationsprozesse),
- soweit verstanden, ist die Wirkweise der Prozesse komplex und wegen weitreichender Rückkopplungsprozesse nur schwer quantifizierbar,
- nicht zuletzt wegen der Heterogenität der Böden hinsichtlich physikalischer und chemischer Beschaffenheit stehen wir erst am Beginn, streng kausale, unmittelbare Beziehungen zwischen NO -Austauschraten und einfach bestimmbaren Bodenkenngrößen und -parametern aufzustellen.

5 Quantitative Erfassung der biogenen NO -Emission

Sowohl zur Untersuchung von Prozessen der NO -Produktion und des NO -Abbaus in Böden als auch zur Quantifizierung der NO -Quellstärke aus Böden werden im Labor und im Feld meist sogenannte Einschluß- oder Kammermethoden benutzt. Bei der dynamischen Kammermethode werden etwa $0,3 \text{ m}^2$ der zu beprobenden Bodenfläche mit einer transparenten Kammer überdeckt. Umgebungsluft wird durch die Kammer gepumpt und somit das Kammervolumen ständig ausgetauscht (etwa $2\text{-}3 \text{ min}^{-1}$). Die Konzentrationsdifferenz zwischen Eingangsluft und Ausgangsluft ist proportional zum Nettofluß und kann *in situ* durch empfindliche NO -Analysatoren (Chemilumineszenzdetektoren) bestimmt werden. Während sich Kammermessungen bestens für die Unter-

suchung von Prozessen und der sie kontrollierenden Einflußgrößen eignen, wird vor allem bei der Quantifizierung der NO -Quellstärke unter Feldbedingungen die mangelnde räumliche Repräsentativität (aufgrund der geringen eingeschlossenen Bodenfläche) als nachteilig erachtet. Es ist der Vorteil von mikrometeorologischen Techniken, daß der NO -Austausch integrierend über eine größere Fläche bzw. ein gesamtes Ökosystem ohne Beeinträchtigung desselben bestimmt werden kann. Voraussetzung für die Anwendung dieser Techniken ist die Höhenkonstanz des NO -Nettoflusses in der bestands- bzw. bodennahen Luftschicht, d.h. die Messungen sind an die Existenz ausreichender atmosphärischer Turbulenz und das Vorhandensein einer hinreichend großen, homogenen und ebenen Fläche in Luv der Messungen gebunden. Die direkteste Flußbestimmung ist mit der Erfassung der turbulenten Kovarianz zwischen Konzentration und Vertikalwind zu erreichen. Dabei wird der turbulente NO -Austausch aus den Fluktuationen (im Bereich $0,001$ bis 20 Hz) des NO -Mischungsverhältnisses und der vertikalen Windkomponente bestimmt. Für diese Art der Flußbestimmung werden empfindliche und sehr schnell ansprechende NO -Analysatoren benötigt. Es soll jedoch nicht unerwähnt bleiben, daß für reaktive Moleküle wie NO die Annahme der Höhenkonstanz des NO -Nettoflusses in der bodennahen Luftschicht prinzipiell nicht gültig ist. Dies liegt in den oben bereits erwähnten raschen chemischen Umsetzungen zwischen NO , NO_2 und O_3 (sowie HO_2 , RO_2 und $\text{NO}_3\cdot$) während des turbulenten Transportes in der bestands- bzw. bodennahen Luftschicht. Werden jedoch bei Anwendung der Kovarianz-Methode zumindest die vertikalen Konzentrationsgradienten bzw. die Nettoflüsse der (wichtigsten) Reaktionspartner simultan mitgemessen, so lassen sich durch geeignete Algorithmen korrekte NO -Austauschraten bestimmen (siehe Kramm 1989).

6 Mechanismen der VOC-Produktion in Pflanzen

An dieser Stelle soll nur auf die flüchtigen Isoprenoide eingegangen werden. Andere VOC Spezies werden weiter unten angesprochen. Isoprenoide werden aus C_5 -Einheiten aufgebaut, die der zellulären zur Verfügung stehenden Gesamtmenge an Isopentenylpyrophosphat (IPP) oder „aktiven Isopren“ entnommen werden. Die Biosynthese kann auf zwei verschiedenen Synthesewegen erfolgen. Im sogenannten „Mevalonatweg“, der im Cytoplasma abläuft, wird ausgehend von Acetyl-CoA Mevalonat synthetisiert, welches dann in Isopentenyl-Diphosphat (IPP) überführt wird. IPP kann reversibel zu Dimethylallylpyrophosphat (DMAPP) isomerisiert werden, dem eigentlichen Startermolekül für den weiteren Aufbau der verschiedenen Isoprenoidklassen wie Sesquiterpene, Sterole, Tri- und Polyterpene. In jüngster Zeit konnte bei Prokaryoten für das IPP ein anderer Syntheseweg als der Mevalonatweg nachgewiesen werden (Fleisch und Rohmer 1988; Rohmer et al. 1993 und 1996; Zeidler et al. 1997), der als sogenannter „Rohmer-Weg“ oder, nach seinen Substraten, als „DOXP-Syntheseweg“ bezeichnet wird. Diese alternative IPP-Synthese,

die offensichtlich nur in Plastiden stattfindet, umgeht den Acetyl-CoA-Pool und nutzt die Substrate Glycerinaldehyd-3-Phosphate und Pyruvat als Startermoleküle, um über 1-Deoxy-D-Xylulose-5-Phosphate (DOXP) IPP zu synthetisieren. Diese Isopren-Synthese ist typisch für eukaryotische Organismen und Chloroplasten höherer Pflanzen. Aus diesem IPP entstehen dann in einer Reihe weiterer Reaktionen die Isoprenoide wie Monoterpene, Diterpene, Carotinoide und Plastocyanin. Eine ausführliche Übersicht findet man bei Lichtenthaler (1999). Der in den Chloroplasten lokalisierte Syntheseweg, der für die Produktion der von den Blättern emittierten Isoprenoide, dem Isopren und den Monoterpenen, verantwortlich ist, hat damit eine sehr viel engere Anbindung an die Photosynthese als bisher angenommen. In diesem Zusammenhang ist auch der Verlust an Kohlenstoff im Verhältnis zum durch die Photosynthese fixiertem Kohlenstoff von Interesse. In vielen Untersuchungen, in denen an den Pflanzen neben der Monoterpen- bzw. Isoprenemissionsrate auch die Netto-photosynthese gemessen wurde, finden sich Angaben über den emissionsbedingten Verlust an assimiliertem Kohlenstoff. Bei Lichtsättigung liegt der prozentuale Kohlenstoffverlust üblicherweise zwischen wenigen Promillen und wenigen Prozenten; in Ausnahmefällen, wobei auch Streß eine Rolle spielt, werden aber auch 10, 20 und sogar 50 % beobachtet. Der Assimilatverbrauch durch Monoterpen- und Isoprenemissionen ist somit nicht unerheblich und es stellt sich die Frage, ob Isopren und Monoterpene nur ein Abfallprodukt des pflanzlichen Stoffwechsels sind oder ob sich aus der Bildung dieser flüchtigen Isoprenoide Vorteile für das Überleben der Spezies an ihrem natürlichen Wuchsort ergeben. Zu Vertiefung wird auf einen jüngeren Übersichtsartikel verwiesen (Kesselmeier und Staudt 1999).

7 Bestimmende Größen der VOC-Emission aus Pflanzen

Seit mehreren Jahrzehnten wurden die Isoprenoidemissionen verschiedenster Pflanzen mit der allgemeinen Zielsetzung untersucht, den Mengeneintrag von der Vegetation in die Atmosphäre besser abschätzen zu können (siehe Tab. 4-2). Die Inventare der Isoprenoidemissionen basieren auf Emissionsfaktoren und Emissionsalgorithmen sowie Daten zum Klima, zur Landnutzung bzw. Vegetationsverbreitung und Biomassenverteilung. Der Emissionsfaktor bezeichnet eine Grundemissionsrate bzw. Emissionspotential und ist die von einer Einheit Blattmasse oder Blattfläche unter Standardtemperatur und Standardstrahlung emittierte Menge pro Zeit. Die Ungenauigkeit der Emissionsinventare wird mit einem Faktor 3 angegeben. Intensive Feldmeßkampagnen, in denen die Emissionen eines Vegetationstypes charakterisiert wurden, belegten eine enorme Variabilität in Qualität und Quantität pflanzlicher Emissionen (BEMA Joint Issue 1997). Selbst artspezifisch und ökologisch nahe verwandte Arten können ein völlig unterschiedliches Emissionsbild aufweisen (Kesselmeier und

Staudt 1999). Auch innerhalb einer Art ist die Variabilität groß: Die temperaturbereinigten Emissionsraten, die z.B. für ausgewachsenen Fichten und Kiefern in fünf verschiedenen Regionen in Mittel- und Nordeuropa angegeben werden, divergieren bis zu einem Faktor 50. Unabhängig von der Abgabemenge schwanken hierbei auch die Prozentanteile der einzelnen Monoterpene erheblich. Unsicherheitsfaktoren sind unter anderem Unkenntnis der kurz- und langfristigen Wirkung von Umwelteinflüssen auf die Menge und Zusammensetzung pflanzlicher Emissionen. Zwar wurden bereits zahlreiche Untersuchungen zur Wirkung diverser Umwelteinflüsse auf die Spurengasabgabe durchgeführt, allgemeingültige Modelle zur Emissionsvorhersage konnten bisher jedoch nur in sehr begrenztem Umfang erstellt werden (Übersicht in Monson et al. 1995; Lerdau et al. 1997). Die meisten Studien zur Abhängigkeit der Emission von Umweltfaktoren konzentrierten sich auf den kurzfristigen Einfluß von Temperatur und Strahlung (siehe Abb. 4-3). Im allgemeinen ähnelt die Reaktionskurve der Lichtabhängigkeitskurve der CO_2 -Assimilation: Nach einem steilen Anstieg nähert sich die Emissionsrate asymptotisch einem Lichtsättigungswert. Demgegenüber unterscheidet sich die Temperaturabhängigkeit der Isoprenabgabe von der CO_2 -Assimilation. Ihr Verlauf ähnelt der Temperaturoptimumskurve von Enzymen. Lerdau und Keller (1997) fanden allerdings eine Adaptation an Standortbedingungen, die sich in einer fehlenden Lichtsättigung äußerte.

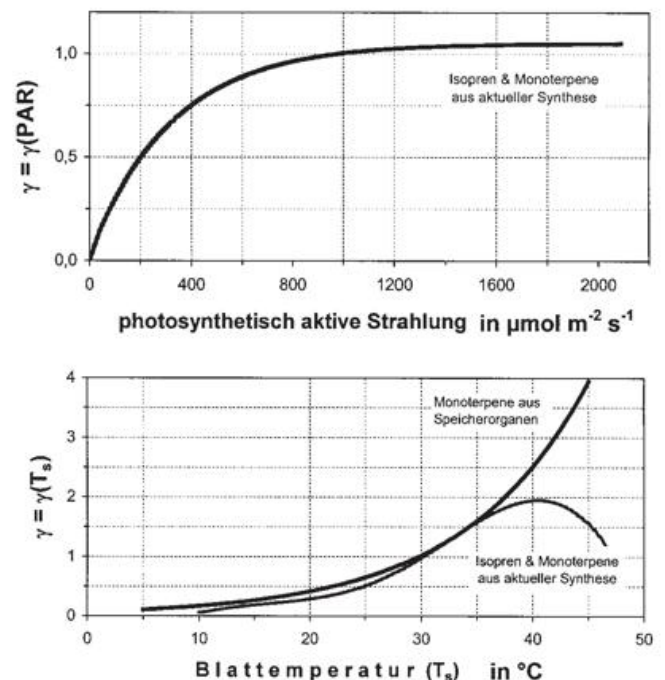


Abb. 4-3: Verallgemeinertes Verhalten der dimensionslosen Aktivitätsfaktoren $\gamma = \gamma(T_s)$ und $\gamma = \gamma(\text{PAR})$ der biogenen Isoprenoidemission aus Pflanzen. Diese Aktivitätsfaktoren werden benutzt, um pflanzenspezifische Primäremissionspotentiale hinsichtlich kurzfristiger Veränderung der Blatttemperatur (T_s) und der photosynthetisch aktiven Strahlung (PAR) zu skalieren (Abbildungen in Anlehnung an Kesselmeier und Staudt 1999)

Zur Beschreibung der Temperatur- und Lichtabhängigkeit der Isoprenabgabe wurden verschiedene, empirisch erstellte Algorithmen vorgeschlagen, von denen sich das semi-mechanistische Modell von Guenther et al. (1993) bisher behaupten konnte. Bei der Monoterpenabgabe wurde in frühen Untersuchungen in der Regel kein kurzfristiger Einfluß des Lichtes festgestellt und die Temperaturabhängigkeitskurve der Emission (siehe Abb. 4-3) zeigte, ähnlich wie die des Terpendampfdrucks, einen streng exponentiellen Anstieg mit Temperaturzunahme (Tingey et al. 1991). Steinbrecher et al. (1992) konnte bei den α -Pinen-Emissionen von Fichtenzweigen einen unmittelbaren, positiven Lichteinfluß feststellen. Steinbrecher schloß daraus, daß ein Teil der Emissionen aus einer lichtabhängigen Terpensynthese stammt, was durch Markierungsexperimente mit $^{13}\text{CO}_2$ bestätigt werden konnte (Schürmann et al. 1993). Ein außergewöhnliches Emissionsverhalten konnte jüngst bei der Steineiche (*Quercus ilex*) und bei der Pinie (*Pinus pinea*) nachgewiesen werden. Zahlreiche Arbeiten zeigen, daß dieser starke Monoterpenemitter keine Monoterpendepots enthält, die Emissionen sowohl temperatur- als auch lichtabhängig sind, und daß alle Monoterpene unmittelbar vor Emission neu synthetisiert werden (BEMA Joint Issue 1997). Damit sind auch Monoterpenemissionen aus aktuell synthetisierten Pools mit dem „Isopren-Algorithmus“ beschreibbar (siehe Abb. 4-3), der letztendlich auch für andere VOC-Komponenten, die licht- und temperaturabhängig produziert und freigesetzt werden, brauchbar ist. Eine weitere sehr interessante Anwendung von Emissionsalgorithmen wird von Schuh et al. (1997) vorgeschlagen. Die Autoren kombinieren die Algorithmen nach Tingey et al. (1991) sowie Guenther et al. (1993). Unter Einfügung geringer Modifikationen beschreiben sie damit einen Emissionsvorgang, der sowohl auf einer aktuellen Biosynthese wie auch auf einer Diffusion aus bereits vorhandenen Reservoiren beruht.

8 Andere flüchtige Kohlenwasserstoffe

Unter den biogenen VOC findet man neben Isopren und Monoterpenen auch Alkane, Alkene, Carbonyle, Alkohole, Ester, Ether und organische Säuren. Große Probleme bei der Interpretation der Emissionen einer Reihe dieser VOCs bereiten die Unkenntnis über die Abhängigkeit der Abgaben von Faktoren wie Entwicklungsstadium des jeweiligen Organismus sowie der Veränderung der Emissionsspektren unter Streß, wie zum Beispiel Verletzung oder auch Ozonbelastung. Aber auch der Einfluß von „einfachen“ Außenfaktoren, wie Licht und Temperatur, sind, im Gegensatz zur Emission von Monoterpenen und Isopren, kaum verstanden. In den folgenden Abschnitten wird eine kurze Übersicht über diese Verbindungsklassen gegeben, wobei aus Platzgründen auf die Angabe der vielfältigen Quellen weitgehend verzichtet wird. Interessierte Leser finden weitergehende Informationen in verschiedenen angegebenen Schlüssel- und/oder Übersichtsartikeln.

Alkane und Alkene

Als terrestrische biogene Quellen für C_2 - C_4 -Alkane werden Bäume, Nutzpflanzen, Gräser, Flechten, Moose, Heidepflanzen und Marschland diskutiert. Ihr Beitrag zur Gesamtemission an VOCs erscheint allerdings zur Zeit als gering (siehe Kesselmeier und Staudt 1999). Für Ethen, Propen und Buten sind signifikante biogene Quellen bekannt. Für den Nordosten der Vereinigten Staaten kann man damit feststellen, daß Emissionen von Propen und Buten die anthropogenen Emissionen dieser Verbindungen übersteigen (Goldstein et al. 1996). Für Ethen entsprechen sie der Hälfte der anthropogenen Freisetzung. Dabei sind aber auch jahreszeitabhängige Veränderungen der Emissionen zu berücksichtigen. Die wichtigste Quelle für diese Verbindungen ist demnach sicherlich die terrestrische Vegetation mit auf das Blatt-Trockengewicht bezogenen Emissionsstärken im Bereich von wenigen $\mu\text{g g}^{-1} \text{h}^{-1}$. Böden können als Quelle wie auch als Senke wirksam sein. Diese Interpretation basiert aber auf einer sehr limitierten Datenbasis und bedarf weiterer intensiver Untersuchungen der Aufnahmekapazität und -wege.

Organische Säuren

Bildungsmechanismen und Quellen organischer Säuren sind nicht ausreichend geklärt. Da hier nicht auf die umfangreiche Literatur eingegangen werden kann (zur Übersicht siehe Kesselmeier und Staudt 1999), soll hier nur betont werden, daß sowohl direkte als auch indirekte biogene Freisetzungen eine wesentliche Rolle im globalen Budget der organischen Säuren in der Troposphäre spielen können. Für eine indirekte Freisetzung, gemeint ist damit eine chemische Produktion aus verschiedenen Vorläufersubstanzen, gibt es zahlreiche Berichte. Es mehren sich aber auch die Argumente, die auch für eine direkte Emission von Ameisen- und Essigsäure aus der Vegetation sprechen. Offensichtlich gibt es aber für Ameisen- und Essigsäure auch einen bidirektionalen Austausch mit der Vegetation, was sich in der Aufnahme beider Säuren in Abhängigkeit von der aktuellen atmosphärischen Konzentration zeigt.

Carbonylverbindungen

Biogene Beiträge findet man hier, wie bei den organischen Säuren, in den direkten Emissionen oder in der indirekten Freisetzung (= Oxidation von anderen Kohlenwasserstoffen). In vegetationsreichen Gebieten können demnach einige reaktive Terpene sowie das Isopren zu hohen Aldehydkonzentrationen führen. Auch das aus Pflanzen emittierte Methanol (Nemecek-Marshall et al. 1995) kann durch Reaktion mit OH zur Bildung atmosphärischen Formaldehyds beitragen. Bei der Oxidation höherer VOCs mit O_3 und OH können pro Molekül mehrere Aldehydmoleküle gebildet werden (Atkinson et al. 1995). Wegen der vielen Reaktionsmöglichkeiten sowie Umlagerungen ist eine genaue Aldehydausbeute allerdings schwer abschätzbar. Auch die

direkte Freisetzung von Aldehyden aus Pflanzen ist von Bedeutung. Unter den niedermolekularen Substanzen sind die C6-Aldehyde Hexanal, cis-Hexenal und trans-Hexenal („Blätteraldehyd“) besonders häufig. Viele dieser Verbindungen werden unter Streß oder bei Verwundung abgegeben (Kimmerer und Kozlowski 1982; Fall et al. 1999). Neuere Arbeiten berichten über signifikante mit Küvetten gemessene direkte Emissionen von Form- und Acetaldehyd aus der Vegetation, wobei zu beachten ist, daß der Austausch bidirektional (Emission und Deposition) erfolgen kann und daß dieser Austausch in Abhängigkeit von der jeweiligen Außenkonzentration erfolgt (Kesselmeier und Staudt 1999).

Alkohole, Ester und Ether

Die Anzahl der bis heute identifizierten Spezies an emittierten, organischen Verbindungen schätzt man mindestens auf einige Hundert. Viele dieser Verbindungen sind Alkohole und Ester, die normalerweise dem Blütenduft zugeordnet werden, und wahrscheinlich von geringerer Bedeutung sind als die Terpenoide. Die Emissionsraten sind in den meisten Fällen unbestimmt. Eine große Anzahl von Arbeiten hat sich mittlerweile mit der Untersuchung dieser oxidierten Komponenten befaßt. Dabei wurden neben den Alkoholen auch eine Reihe von Estern und Ethern als eindeutig „biogen emittiert“ benannt (Übersicht siehe Puxbaum 1997). Die bisher bestimmten Emissionsraten dieser Verbindungen sind im Vergleich zu Monoterpen oder Isopren relativ niedrig, im Bereich um 1-3 $\mu\text{g g}^{-1} \text{h}^{-1}$ (Blatt-Trockengewicht). Allerdings sind erhebliche Änderungen im pflanzlichen Emissionsverhalten in Abhängigkeit vom Entwicklungsstadium (z.B. Blütezeit) zu beobachten. Methanol dagegen wird offensichtlich von sehr vielen Pflanzen in einer Größenordnung abgegeben, die mit 0,3 - 17 $\mu\text{g (C) g}^{-1} \text{h}^{-1}$ Blatt-Trockengewicht mengenmäßig der Isopren-Emission typischer Isopren-Emitter entspricht (Nemecek-Marshall et al. 1995; Kirstine et al. 1998).

9 Berechnete Verteilungen der biogenen NO und VOC Emissionen für Südwestdeutschland

Numerische Modelle, wie sie in den späteren Kapitel beschrieben werden, benötigen neben den räumlichen und zeitlichen Verteilungen der anthropogenen Emissionen auch die entsprechenden Verteilungen der biogenen NO und VOC Emissionen. Diese Notwendigkeit liegt insbesondere darin begründet, daß die biogenen Emissionen die untere Grenze dessen darstellen, was sich bei Emissionsminderungsstrategien in Bezug auf die Gesamtemissionen der Vorläufersubstanzen von Ozon und anderen Photooxidantien erreichen läßt. Da die biogenen Emissionen in starkem Maße von der Temperatur und der Strahlung abhängen, liegt es nahe, die Berechnung der biogenen Emissionen in das jeweilige Modellsystem zu integrieren, da die zur Anwendung kommenden numerischen Modelle die Temperatur und die solare Strah-

lung mit hoher zeitlicher und räumlicher Auflösung flächendeckend zur Verfügung stellen. Im folgenden werden die in das Modellsystem KAMM/DRAIS (Vogel et al. 1995) integrierten Parametrisierungen zur Bestimmung der biogenen NO und VOC Emissionen (Isopren und Terpene) beschrieben und exemplarisch berechnete Emissionsverteilungen dargestellt. Diese Verteilungen stellen, wegen der bereits erwähnten Unsicherheiten, die bezüglich der biogenen Emissionen zur Zeit noch existieren, eine erste Abschätzung der tatsächlichen Verhältnisse dar.

Die Emissionsraten der biogenen Kohlenwasserstoffe an jedem Gitterpunkt werden nach folgender Gleichung bestimmt:

$$E_i = \sum A_{ij} E_j F_i(S, T) \quad (4.1)$$

E_i ist hierbei die Emissionsrate der chemischen Substanz i , A_{ij} beschreibt den prozentualen Anteil der Substanz i an den Gesamtemissionen und den Flächenanteil des Vegetationstyps j . E_j ist der jeweilige Emissionsfaktor bei 30 °C und voller Einstrahlung, und $F_i(S, T)$ ist ein Korrekturfaktor, der von der Temperatur und der Einstrahlung abhängt. Eine Auflistung der Emissionsfaktoren für die verschiedenen Vegetationstypen und den prozentualen Anteil der verschiedenen Substanzen an den Emissionen findet man bei Vogel et al. (1995). Gegenüber dieser Arbeit wurde die Temperaturabhängigkeit der Emissionen entsprechend der Parametrisierung von Guenther et al. (1993) modifiziert. Somit wird berücksichtigt, daß oberhalb einer Bestandstemperatur von 33 °C die Emissionen wieder abnehmen. Für die Isoprenemissionen wird der Korrekturfaktor $F_i(S, T)$ wie folgt berechnet:

$$F_i(S, T) = C_L C_T \quad (4.2)$$

C_L beschreibt die Strahlungsabhängigkeit und bestimmt sich aus:

$$C_L = \frac{\alpha c_{L1} L}{\sqrt{1 + \alpha^2 L^2}} \quad (4.3)$$

α und c_{L1} sind empirische Koeffizienten, die aus Messungen bestimmt wurden und in Tabelle 4-3 aufgelistet sind. L ist der Fluß der photosynthetisch aktiven Strahlung in $\mu\text{E m}^2 \text{s}^{-1}$. Dieser wird in KAMM/DRAIS (Vogel et al. 1995) berechnet. Die Temperaturabhängigkeit der Isoprenemissionen wird nach Gleichung 4.4 bestimmt:

$$C_T = \frac{\exp \frac{C_{T1} (T - T_S)}{RT_S T}}{1 + \exp \frac{C_{T2} (T - T_M)}{RT_S T}} \quad (4.4)$$

C_{T1} , C_{T2} und T_M sind wiederum empirische Koeffizienten (Tab. 4-3), T_S ist die Standardtemperatur von 303,15 K, für die die Emissionsfaktoren bestimmt wurden, und R ist die Gaskonstante.

Die Temperaturabhängigkeit für Terpenemissionen wird nach folgender Beziehung bestimmt:

$$F_i(T) = \exp(\beta(T - T_s)) \quad (4.5)$$

Der Koeffizient β ist ebenfalls in Tabelle 4-3 aufgelistet.

α	0,0027
c_{L1}	1,066
C_{T1}	95000 J mol ⁻¹
C_{T2}	230000 J mol ⁻¹
T_M	314 K
β	0,09 K ⁻¹

Tab. 4-3: Empirische Koeffizienten in den Gleichungen 4.3 bis 4.5

Die biogenen NO-Emissionen hängen von der Landnutzung, der Bodentemperatur, der Düngung und dem Niederschlag ab. Zur Bestimmung der NO-Emissionen wurde die Parametrisierung von Yienger & Levy II (1995) in nachfolgend beschriebener Form in das Modellsystem integriert (Förstner 1996, Ludwig et al. 2000). Es wird zwischen drei verschiedenen Temperaturbereichen unterschieden. Danach ergeben sich für die biogenen NO-Emissionen die folgenden Beziehungen:

$$E_{NO} = \begin{cases} k_1 A_{LN} T_B & 0^\circ\text{C} < T_B \leq 10^\circ\text{C} \\ A_{LN} \exp(k_2 T_B) & 10^\circ\text{C} < T_B \leq 30^\circ\text{C} \\ k_3 A_{LN} & 30^\circ\text{C} < T_B \end{cases} \quad (4.6)$$

E_{NO} ist der N-Emissionsfluß in ng-N m² s⁻¹, T_B die Bodentemperatur, die vom Boden-Vegetationsmodell bestimmt wird, und A_{LN} ist der Landnutzungsfaktor. Er beinhaltet die Emissionsfaktoren für die verschiedenen Landnutzungsarten sowie deren Anteil am jeweiligen Gittervolumen. Die Emissionsfaktoren für die ungedüngten Flächen sind in Tabelle 4-4 aufgelistet. Liegen auch gedüngte Flächen vor, so setzt sich A_{LN} wie folgt zusammen:

$$A_{LN}(\text{gedüngte Flächen}) = A_{LN}(\text{ungedüngte Flächen}) + S \cdot D \quad (4.7)$$

Die Konstanten k_1 , k_2 , k_3 und S sind der Tabelle 4-4 zu entnehmen. Als Düngerate D wird eine monatliche Verteilung entsprechend den Verhältnissen für Baden-Württemberg angesetzt. Eine detaillierte Beschreibung dieser Parametrisierung findet man bei Förstner (1996) und Ludwig et al. (2000).

k_1	0,28 °C ⁻¹
k_2	0,103 °C ⁻¹
k_3	21,97
A_{Wald}	0,03 ng-N m ² s ⁻¹
A_{Wiese}	0,36 ng-N m ² s ⁻¹
A_{Acker}	0,36 ng-N m ² s ⁻¹
$A_{Wein-Obstbau}$	0,36 ng-N m ² s ⁻¹
S	0,0375 ng-N m ² s ⁻¹ ha Monat kg-N ⁻¹

Tab. 4-4: Konstanten zur Bestimmung der biogenen NO-Emissionen

Die Abbildungen 4-4 und 4-5 zeigen die auf diese Weise mit KAMM/DRAIS berechneten Verteilungen der biogenen NO und VOC Emissionen für den 3. August 1990 für das südliche Oberrheintal. An diesem Tag erreichten die Maximaltemperaturen im Untersuchungsgebiet Werte von über 32 °C. Entsprechend hoch waren auch die biogenen Emissionen. Ein Vergleich der beiden Abbildungen zeigt die räumliche unterschiedliche Verteilung der Emissionen. Während beim NO insbesondere die landwirtschaftlich genutzten Flächen hervortreten, ergeben sich die maximalen VOC Emissionen in den

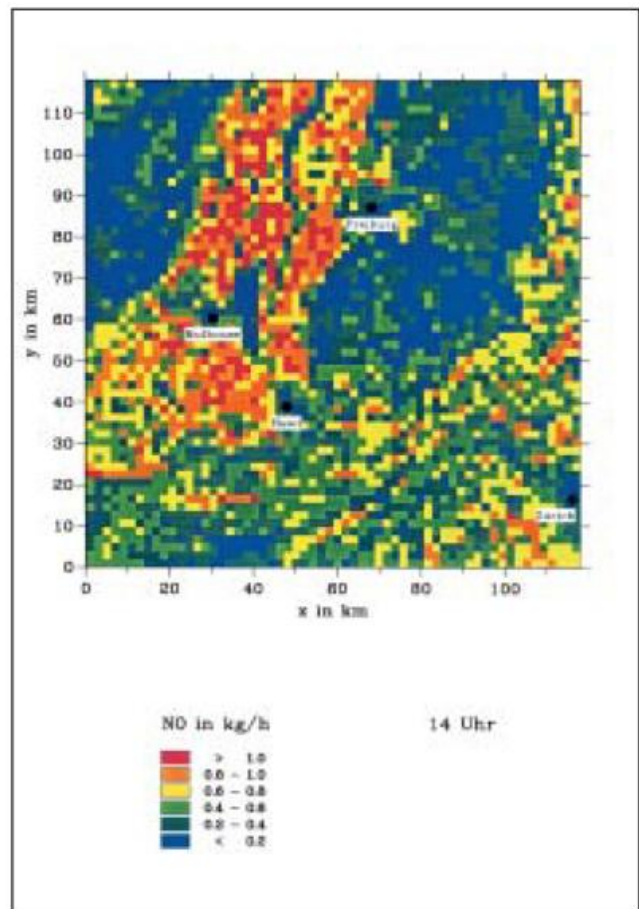


Abb. 4-4: Berechnete Horizontalverteilung der biogenen NO Emissionen für den 3. August 1990.

Waldgebieten wie z.B.: im Schwarzwald. In Kapitel 12 findet sich eine Gegenüberstellung der hier gezeigten biogenen Emissionen und der im gleichen Gebiet vorliegenden anthropogenen Emissionen. Es zeigt sich, daß die biogenen VOC Emissionen in der gleichen Größenordnung liegen, wie die anthropogenen Emissionen, während die biogenen NO Emissionen etwa 10 % der Gesamtemissionen ausmachen.

10 Zusammenfassung

Die biogenen Emissionen von NO und VOC tragen sowohl auf der globalen als auch der regionalen Skala in erheblichem Maße zu den Gesamtemissionen dieser Stoffklassen bei. Sie dürfen daher auch bei der numerischen Simulation von Photochemie-Episoden nicht vernachlässigt werden. So konnten Vogel et al. (1995) für das Gebiet des Oberrheingrabens zeigen, daß bei der Vernachlässigung der biogenen Emissionen die Ozonkonzentrationen, die während der betrachteten Episode Maximalwerte von etwa 110 ppb erreichten, um bis zu 20 % reduziert werden. In den letzten Jahren wurde in Bezug auf die biogenen Emissionen ein erheblicher Fortschritt im Prozeßverständnis erzielt, dennoch existieren noch erhebliche Wissenslücken. Regionale oder globale Budgets biogener Spurengase sind zur Zeit

eher als grobe Abschätzungen zu betrachten. Die Genauigkeit dieser Zahlen wird beeinträchtigt durch fehlende Emissionsfaktoren oder Unkenntnis der Emissionsvariabilität oder ungenügende Daten über wichtige Ökotypen der Erde, wie zum Beispiel der Tropen. Saisonaler Entwicklungszustand, Wasserverfügbarkeit und selbst Licht- und Temperatureinflüsse sind Stichworte für weitere dringend notwendige Forschungsarbeiten. Pflanzliche Entwicklung, Frost- oder Hitzeereignisse, Nährstoffversorgung, Verletzung, Streß und Luftverschmutzung müssen als potentielle wichtige beeinflussende Größen der Emissionsvorgänge in Betracht gezogen werden. Aktuelle Forschungsvorhaben werden versuchen diese Lücken zu schließen.

Literatur

- ATKINSON, R., E.C. TUAZON, S.M. ASCHMANN, 1995: Products of the gas-phase reactions of O₃ with alkenes. *Environ. Sci. Technol.* 29: 1860-1866.
- BEMA JOINT ISSUE, 1997: BEMA, A European Commission Project on Biogenic Emissions in the Mediterranean Area (Seufert G, guest editor), *Atmos. Environm.* 31 (S1).
- BUTTERBACH-BAHL, K., R. GASCHKE, L. BREUER, H. PAPAN, 1997: Fluxes of NO and N₂O from temperate forest soils: Impact of forest type, N deposition and of liming on the NO and N₂O emissions. *Nutrient Cycling in Agroecosystems* 48: 79-90.
- CONRAD, R., 1996: Soil micro-organisms as controllers of atmospheric trace gases (H₂, CO, CH₄, OCS, N₂O, and NO). *Microbiological Reviews* 60: 609-640.
- FALL, R., T. KARL, A. HANSEL, A. JORDAN, W. LINDINGER, 1999: Volatile organic compounds emitted after leaf wounding: On-line analysis by proton-transfer-reaction mass spectrometry. *J. Geophys. Res.*, 104 (D13): 15963-15974.
- FLESCHE, G., M. ROHMER, 1988: Prokaryotic triterpenoids. The biosynthesis of the bacteriohopane skeleton: formation of isoprenic units from two distinct acetate pools and a novel type of carbon/carbon linkage between a triterpene and D-ribose. *Eur. J. Biochem.* 175: 405-411.
- FÖRSTNER J., 1996: Berechnung der biogenen NO-Emissionen für das Gebiet von Baden-Württemberg. - Seminararbeit, Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Universität Karlsruhe/Forschungszentrum Karlsruhe
- GOLDSTEIN, A.H., S.M. FAN, M.L. GOULDEN, J.W. MUNGER, S.C. WOFSEY, 1996: Emissions of ethene, propene, and I-butene by a midlatitude forest. *J. Geophys. Res.* 101: 9149-9157.
- GUENTHER, A.B., P. ZIMMERMAN, P.C. HARLEY, R.K. MONSON, R. FALL, 1993: Isoprene and monoterpene emission variability: model evaluations and sensitivity analysis. *J. Geophys. Res.* 89: 12609-12617.

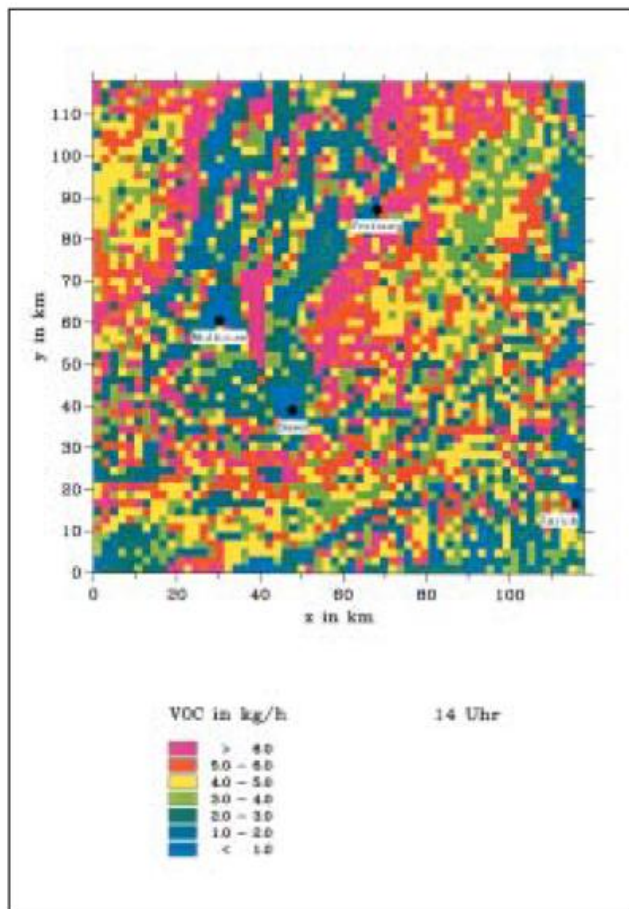


Abb. 4-5: Berechnete Horizontalverteilung der biogenen VOC Emissionen für den 3. August 1990.

- JACOB, D.J., S.C. WOFSY, 1990: Budgets of reactive nitrogen, hydrocarbons, and ozone over the Amazon rain forest during the wet season. *Journal of Geophysical Research* 95: 14737-14754.
- KESSELMEIER, J., M. STAUDT, 1999: Biogenic volatile organic compounds (VOC): an overview on emission, physiology and ecology. *J. Atmos. Chemistry* 33: 23-88, 1999.
- KIMMERER T.W., T.T. KOZLOWSKI, 1982: Ethylene, ethane, acetaldehyde, and ethanol production by plants under stress. *Plant Physiology* 69: 840-847.
- KIRSTINE, W., I. GALBALLY, Y. YE, M. HOOPER, 1998: Emissions of volatile organic compounds (primarily oxygenated species) from pasture. *J. Geophys. Res.* 103 (D9): 10605-10619.
- KRAMM, G., 1989: A numerical method for determining the dry deposition of atmospheric trace gases. *Boundary-Layer Meteorology* 48:157-176.
- LERDAU, M., M. KELLER, 1997: Controls on isoprene emission from trees in a subtropical dry forest. *Plant, Cell, Environment* 20: 569-578.
- LERDAU, M., A. GUENTHER, R. MONSON, 1997: Plant production and emission of volatile organic compounds. *BioScience* 47: 373-383.
- LICHTENTHALER, H.K., 1999: The 1-Deoxy-D-Xylulose-5-Phosphate pathway of isoprenoid biosynthesis in plants. *Annu. Rev. Plant Physiol. Plant Mol. Biol.* 50: 47-65.
- LUDWIG, J., F.X. MEIXNER, B. VOGEL, J. FÖRSTNER, 2000: Processes, influencing factors, and modelling of nitric oxide surface exchange – an overview, *Biogeochemistry*, in press.
- MATSON, P.A., R.C. HARRISS, 1995: Biogenic trace gases: measuring emissions from soil and water. 394 pp. Oxford: Blackwell Scientific Publications Ltd.
- MEIXNER, F.X., W. EUGSTER, 1999: Effects of landscape pattern and topography on emissions and transport, in: Integrating Hydrology, Ecosystem Dynamics, and Biogeochemistry in Complex Landscapes, Tenhunen, J.D., Kabat, P. (eds.), pp. 147-175, Dahlem Workshop Report, Chichester: John Wiley & Sons Ltd.
- MONSON, R.K., M.T. LERDAU, T.D. SHARKEY, D.S. SCHIMMEL, R. FALL, 1995: Biological aspects of constructing volatile organic compound emission inventories. *Atmos. Environ.* 29: 2989-3002.
- NEMECECK-MARSHALL, M., R.C. MACDONALD, J.J. FRANZEN, C.L. WOJCIECHOWSKI, R. FALL, 1995: Methanol emission from leaves: Enzymatic detection of gas-phase methanol and relation of methanol fluxes to stomatal conductance and leaf development. *Plant Physiol.* 108: 1359-1368.
- PUXBAUM, H., 1997: Biogenic emissions of alcohols, ester, ether and higher aldehydes. In: Biogenic volatile organic compounds in the atmosphere - Summary of present knowledge (Helas, G., Slanina, S., Steinbrecher, R., eds.) pp 79-99, SPB Academic Publishers, Amsterdam, The Netherlands.
- ROHMER, M., M. KNANI, P. SIMONIN, B. SUTTER, H. SAHM, 1993: Isoprenoid biosynthesis in bacteria: a novel pathway for the early steps leading to isopentenyl diphosphate. *Biochem. J.* 295: 517-524.
- ROHMER, M., M. SEEMANN, S. HORBACH, S. BRINGERMEYER, H. SAHM, 1996: Glycerinaldehyde 3-phosphate and pyruvate as precursors of isoprenic units in an alternative non-mevalonate pathway for terpenoid biosynthesis. *J. Am. Chem. Soc.* 118: 2564-2566.
- SCHUH, G., A.C. HEIDEN, T.H. HOFFMANN, J. KAHL, P. ROCKEL, J. RUDOLPH, J. WILDT, 1997: Emissions of volatile organic compounds from sunflower and beech: Dependence on temperature and light intensity. *J. Atmos. Chem.* 27: 291-318.
- SCHÜRSMANN, W., H. ZIEGLER, D. KOTZIAS, R. SCHÖNWITZ, R. STEINBRECHER, 1993: Emission of biosynthesized monoterpenes from needles of Norway spruce. *Naturwissenschaften* 80: 276-278.
- STEINBRECHER, R., K. STAHL, J. SLEMR, J. HAHN, 1992: Untersuchung der Emission niedermolekularer organischer Verbindungen durch verschiedene Pflanzen. Final Report, 07 EU 720/2, IFU, Garmisch-Partenkirchen.
- TINGEY, D. T., D.P. TURNER, J.A. WEBER, 1991: Factors controlling the emissions of monoterpenes and other volatile organic compounds. In Trace gas emissions from plants, (ed. T. D. Sharkey, E.A. Holland, H.A. Mooney), pp. 93-119. Academic Press, San Diego.
- VOGEL B., F. FIEDLER, H. VOGEL, 1995: The influence of topography and biogenic VOC emissions in the state of Baden-Württemberg on the ozone concentrations during episodes of high air temperature. *J. Geophys. Res.* 100 (D11): 22907-22918
- YIENGER J.J., H. LEVY II, 1995: Empirical model of global soil-biogenic NOx emissions. *J. Geophys. Res.* 100: 11447-11464
- ZEIDLER, J.G., H.K. LICHTENTHALER, H.U. MAY, F.W. LICHTENTHALER, 1997: Is isoprene emitted by plants synthesized via the novel isopentenyl diphosphate pathway? *Z. Naturforsch.* 52c: 15-23.

5 Typischer zeitlicher Verlauf von Photosmog-Episoden

Neben den ablaufenden chemischen Reaktionen (Kapitel 2) ist in der Atmosphäre eine Reihe weiterer physikalischer Prozesse an der zeitlichen Entwicklung hoher Ozonkonzentrationen beteiligt. Im folgenden wird aufgezeigt, welche typischen tageszeitlichen Verläufe der Ozonkonzentration während einer Photosmogepisode auftreten, wie deren zeitliche Entwicklung von Tag zu Tag aussieht und über welche Zeiträume Photosmogepisoden andauern. Es werden die Besonderheiten je nach Lage einer Station erläutert. Anhand von Messungen und Modellsimulationen wird der Frage nachgegangen, welche Prozesse die zeitlichen Verläufe bewirken und durch welche Vorgänge eine Episode wieder beendet wird. Dabei wird insbesondere der Einfluß der atmosphärischen Variablen und des Transportes im Zusammenwirken mit den chemischen Prozessen untersucht.

1 Typische Tagesgänge während Photosmogepisoden

Als Beispiel für einen typischen Verlauf einer Sommermogepisode zeigt die Abb. 5-1 die gemessene Ozonkonzentration für den Zeitraum vom 24.07. – 06.08.1990 an verschiedenen Stationen der Landesanstalt für Umweltschutz des Landes Baden-Württemberg (LfU) im Bereich von Karlsruhe. An allen Stationen ist das für eine Photosmogepisode charakteristische Verhalten erkennbar. Beginnend mit niedrigen Werten steigt die maximale Ozonkonzentration zunächst von Tag zu Tag an. Kurz unterbrochen wird diese Episode am 29.07.90 mit relativ niedrigen Konzentrationen, danach werden jedoch wieder Konzentrationen von über 90 ppb beobachtet, wobei sich bis zum Ende der Episode die Tageshöchstwerte nur noch wenig voneinander unterscheiden. Vergleicht man die auftretenden Maximalwerte an den einzelnen Stationen, findet man trotz der räumlichen Nähe doch beträchtliche Unterschiede in den Konzentrationen. In unmittelbarer Quellnähe dominiert die Reaktion des NO mit O₃ und führt dadurch zu niedrigeren Werten der Ozonkonzentration. Der direkte Abstand einer Meßstation von Quellen und deren Quellstärken macht sich daher in unterschiedlichen Ozonkonzentrationen bemerkbar. Einheitlich an allen Stationen im Karlsruher Raum ist der nächtliche Rückgang der Ozonkonzentration bis auf nahezu Null. In weniger stark belasteter Luft wie z. B. am Hohenpeißenberg weist die Zeitreihe der Ozonkonzentration ein von Abb. 5-1 abweichendes Verhalten auf (Abb. 5-2). Man erkennt zwar den Aufbau hoher Ozonkonzentrationen, jedoch bleiben die Ozonwerte auch während der Nachtstunden auf einem hohen Niveau. Die Tagesamplituden der Konzentrationswerte sind dadurch

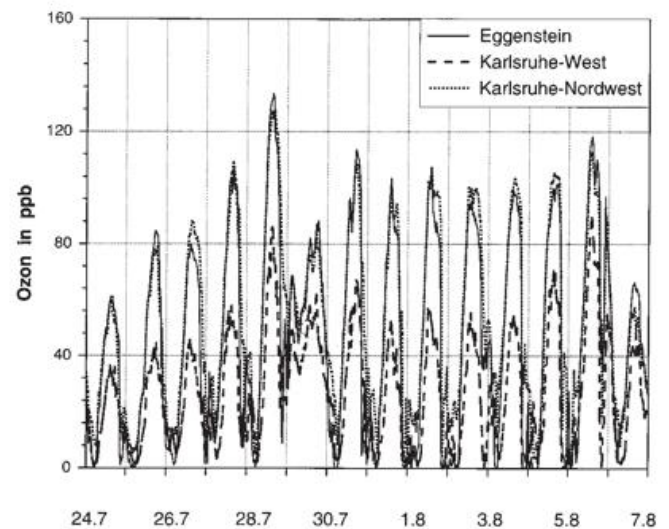


Abb. 5-1: Zeitliche Entwicklung der Ozonkonzentrationen an Stationen in Karlsruhe in der Zeit vom 24.07.90 – 06.08.90. Eggenstein liegt etwa 10 km nördlich der Stadtgrenze.

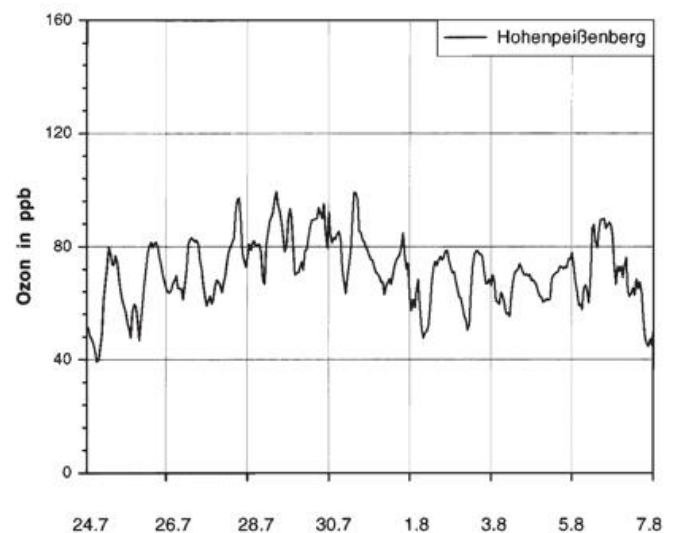


Abb. 5-2: Zeitliche Entwicklung der Ozonkonzentrationen am Hohenpeißenberg in der Zeit vom 24.07.90 – 06.08.90

wesentlich geringer, der Tagesmittelwert der Ozonkonzentration ist allgemein höher. Wichtig ist auch die Beobachtung, daß das Ozonmaximum am Hohenpeißenberg nicht am Nachmittag, sondern erst am Abend oder sogar erst nachts eintritt.

Untypisch an der dargestellten Situation ist, daß über einen Zeitraum von 10 Tagen der Schwellenwert von 90 ppb überschritten wird. Wie exemplarisch für einige Stationen in Baden-Württemberg in Tab. 5-1 aufgelistet, dauern Photosmogepisoden in der Regel nur 3 bis 4 Tage an. Danach erfolgt häufig eine Umstellung der großräumigen Wetterlage, die zu einem Ende der Ozonepisode führt, bevor durch chemische Reaktionen eine Änderung des Konzentrationsniveaus sichtbar wird.

Dauer in Tagen	Anzahl in Tagen mit O ₃ ≥ 90 ppb		
	Freiburg-Mitte	Schwarzwald-Süd	Weil am Rhein
1	45	37	55
2	19	28	29
3	11	15	10
4	6	9	4
5	7	8	5
6	3	4	3
7	0	4	1

Tab. 5-1: Andauer der Episoden hoher Ozonkonzentrationen in den Jahren 1986 – 1992.

2 Vertikale Austauschvorgänge

Zunächst werden die Verhältnisse an den quellnahen und meist in Tallagen gelegenen Stationen betrachtet. An diesen Stationen dominiert während des ganzen Tages die Reaktion des freigesetzten NO mit dem in der herantransportierten Luftmasse vorhandenen Ozon. Infolgedessen kommt es an diesen Stationen zunächst zu einem deutlichen Rückgang der Ozonkonzentration im Vergleich zu quellferneren Stationen. Im Tagesverlauf entwickelt sich jedoch an Strahlungstagen die konvektive Grenzschicht. Damit verbunden erfolgt eine kräftige vertikale Durchmischung der Atmosphäre. Die bodennah freigesetzten Substanzen werden in größere Höhen transportiert. Es laufen die in Kapitel 2 beschriebenen chemischen Umwandlungen ab und Ozon wird unter dem Einfluß der Strahlung photochemisch gebildet.

Zusätzlich dazu wird zu Beginn einer Episode am Oberrand der Grenzschicht Ozon aus der freien Troposphäre eingemischt. Infolge der turbulenten Vermischung in der konvektiven Grenzschicht wird das in höheren Schichten gebildete und auch eingemischte Ozon nach unten transportiert. Somit kommt es auch an quellnahen Stationen, obwohl dort ständig ein chemischer Abbau von Ozon vorliegt, im Tagesverlauf zu einer Zunahme der Ozonkonzentration. In den Abendstunden stabilisiert sich die Atmosphäre wieder, der Austausch mit den höheren Luftschichten wird mehr und mehr unterbunden. Somit gehen die Konzentrationen in den Quellgebieten aufgrund der Reaktion mit NO und in Tallagen aufgrund der Deposition deutlich

zurück. In den oberen Luftschichten dagegen bleiben die hohen Ozonkonzentrationen erhalten. Mit der Grenzschichtentwicklung des folgenden Tages werden dann wiederum die in der Reservoirschicht vom Vortag erhaltenen erhöhten Ozonkonzentrationen eingemischt. Dies führt mit dem zusätzlich dazu gebildeten Ozon zu einem Anstieg der Maximalkonzentrationen von Tag zu Tag.

Demgegenüber weisen Bergstationen wie der Hohenpeißenberg einige Besonderheiten auf. Das Ozonminimum tritt im Gegensatz zur Talstation erst morgens zwischen 8:00 und 9:00 Uhr ein. Dies hängt mit der Auflösung der nächtlichen Inversion zusammen. Unterhalb der Inversion wird, wie oben beschrieben, nachts Ozon abgebaut. Am Morgen wird diese ozonarme Luft durch einsetzende Konvektion und Turbulenz mit der darüber befindlichen sogenannten Reservoirschicht vermischt. Dies führt am Hohenpeißenberg zum Einbruch der Ozonkonzentration, gleichzeitig setzt der Temperaturanstieg ein. Am Abend, wenn sich erneut eine Inversion bildet, verbleibt der Hohenpeißenberg in der sogenannten Reservoirschicht, in der das tags photochemisch gebildete Ozon erhalten bleibt und zu dem das neu gebildete Ozon am Folgetag hinzukommt. Auch die Tatsache, daß das Ozonmaximum am Hohenpeißenberg nicht am Nachmittag, sondern erst am Abend oder sogar erst nachts auftritt, ist ein Hinweis darauf, daß der Ort nicht unmittelbar in einem Quellgebiet von Ozon-Verläufersubstanzen liegt, sondern daß das Ozon herantransportiert wird.

Zur Verdeutlichung dieser Vorgänge zeigen die Abb. 5-3 und 5-4 Vertikalschnitte der simulierten Ozonkonzentration in West-Ostrichtung von den Vogesen im Westen über den Rheingraben und dem Schwarzwald des 03. 08. 1990 zu den Zeiten 8:00 und 14:00 Uhr (Vogel et al. 1995). In den Morgenstunden erkennt man sehr niedrige Konzentrationen im Bereich des Rheintales. Dort liegen die Werte unterhalb von 10 ppb. Durch Deposition am Boden und chemische Reaktionen geht in den untersten 300 m während der Nacht die Ozonkonzentration auf sehr kleine Werte zurück. In den Höhenlagen des Schwarzwaldes dagegen findet man auch bodennah noch Konzentrationen von 50 bis 60 ppb. Darüber ist jedoch eine vom Vortag angefüllte Schicht mit relativ hohen Ozonwerten zu erkennen. Mit Beginn des stärkeren vertikalen Austauschs am frühen Morgen wird ozonreiche Luft rasch wieder eingemischt, so daß in dem schmalen Band in Bodennähe die Konzentrationen wieder ansteigen. Dem insbesondere in vertikaler Richtung wirkenden turbulenten Austausch ist die von der Sonneneinstrahlung und der Lufttemperatur beeinflusste Photochemie überlagert, wodurch ebenfalls im gleichen Rhythmus die Tagesvariation angeregt wird. Dieses führt dann zu sehr hohen Maximalkonzentrationen in der Rheinebene, während im Schwarzwald in den Mittagsstunden die Werte noch etwas niedriger sind. Innerhalb der gesamten Grenzschicht jedoch liegt das Konzentrationsniveau höher als am Vortag, da im Tagesverlauf zusätzlich Ozon gebildet wurde.

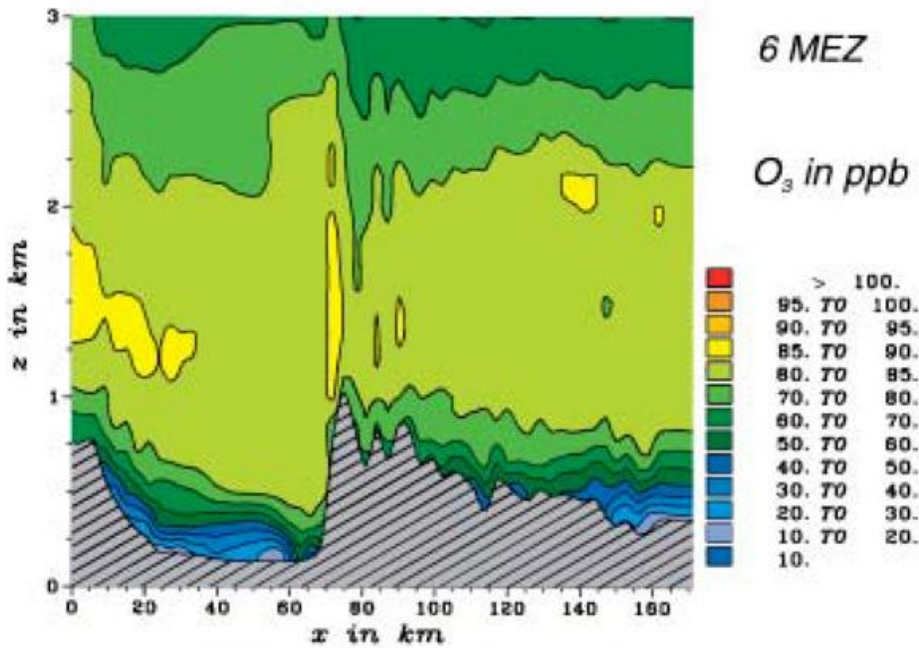


Abb. 5-3:
Vertikalschnitte für die berechnete Ozonverteilung quer über dem Oberrheingraben (Vogesen im Westen, Schwarzwald im Osten) am 03.08.90 um 6:00 Uhr morgens.

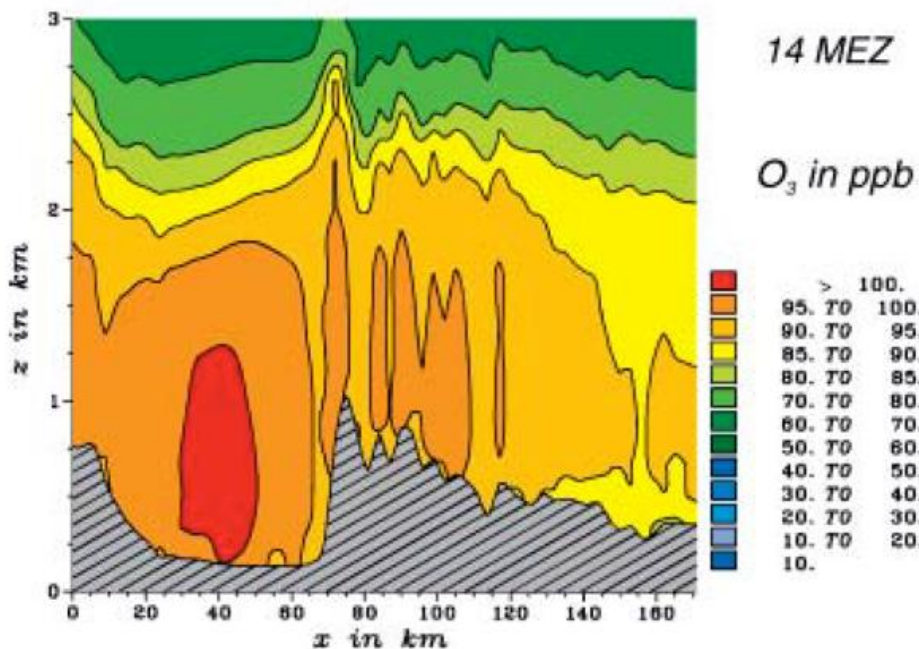


Abb. 5-4:
Vertikalschnitte für die berechnete Ozonverteilung quer über dem Oberrheingraben (Vogesen im Westen, Schwarzwald im Osten) am 03.08.90 um 14:00 Uhr mittags.

Die Überlagerung von chemischer Produktion und vertikalem Austausch führt somit zu dem Anstieg der Maximalkonzentrationen von Tag zu Tag während einer Photo-smog-episode. Zusätzlich dazu gibt es einen weiteren direkten atmosphärischen Einfluß auf die Ozonkonzentration, der ebenfalls zum Ansteigen der maximalen Ozonkonzentration während einer Photo-smog-episode führt. Dieses wird im nächsten Abschnitt detaillierter ausgeführt.

3 Der direkte Einfluß der Temperatur

Die Temperatur ist ein meteorologischer Parameter, der verschiedene an der Ozonbildung beteiligte Pro-

zesse beeinflusst. Um diesen Sachverhalt zu verdeutlichen, zeigen die Abb. 5-5 und 5-6 die Korrelation der maximalen Ozonkonzentration mit der maximalen Globalstrahlung bzw. mit der maximalen Temperatur. Dargestellt sind jeweils Messungen im Raum Karlsruhe für die Verhältnisse der Jahre 1987 – 1992. Es ist zwar auf beiden Abbildungen erkennbar, daß tendenziell die Ozonkonzentration sowohl mit zunehmender Strahlung als auch mit höheren Temperaturen zunimmt. Ohne starke Einstrahlung wird nicht genügend NO_2 photolysiert und weniger OH gebildet, jedoch ist die Streuung bei der Korrelation mit der Globalstrahlung gerade bei höheren Werten deutlich höher als bei der Temperatur. Bei Temperaturen unterhalb von 20 °C werden unabhängig von der Einstrahlung keine Ozon-

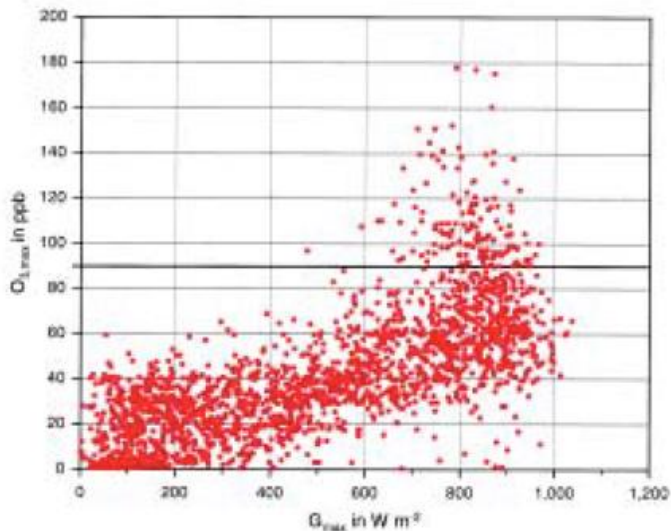


Abb. 5-5: Korrelation zwischen den Tagesmaxima der Globalstrahlung und den Tagesmaxima der Ozonkonzentration in Eggenstein (Karlsruhe) für die Jahre 1987 – 1992.

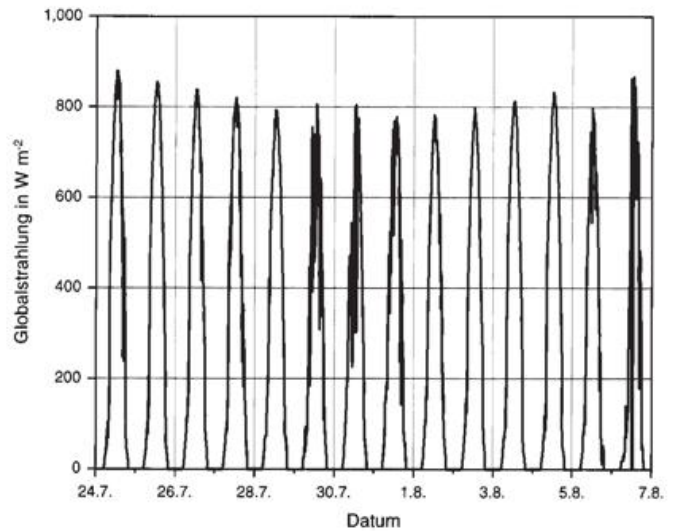


Abb. 5-7: Zeitlicher Verlauf der gemessenen Globalstrahlung in Karlsruhe für den Zeitraum 24.07.90 – 06.08.90.

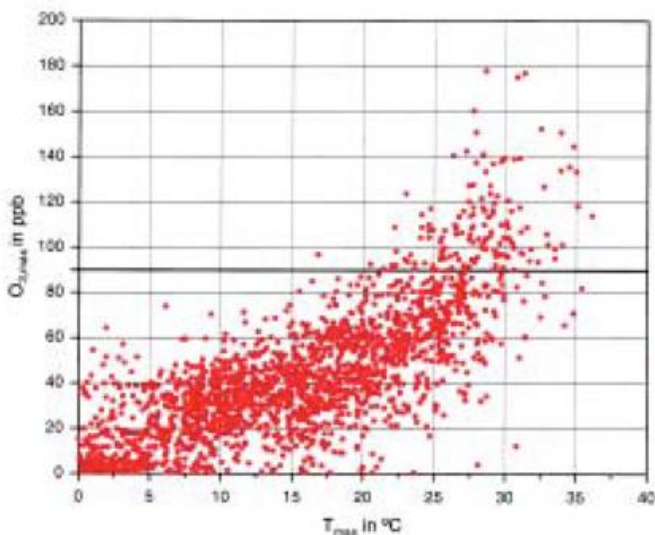


Abb. 5-6: Korrelation zwischen den Tagesmaxima der Temperatur und den Tagesmaxima der Ozonkonzentration in Eggenstein (Karlsruhe) für die Jahre 1987 – 1992.

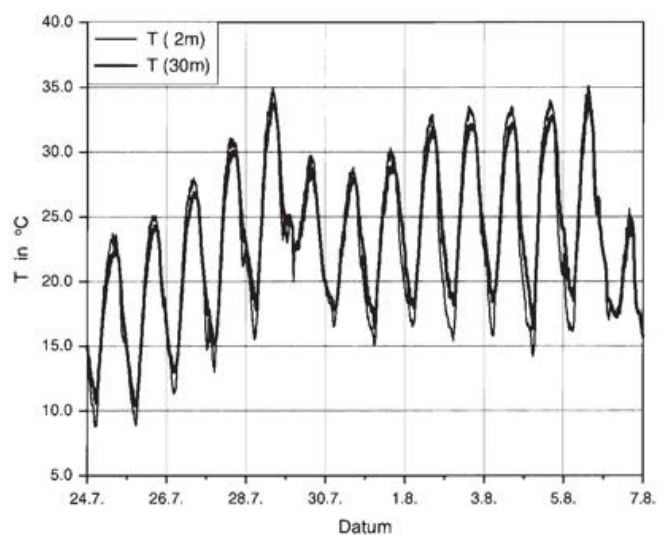


Abb. 5-8: Zeitlicher Verlauf der gemessenen Temperatur in Karlsruhe für den Zeitraum 24.07.90 – 06.08.90.

werte von über 90 ppb erreicht. Bei starker Einstrahlung können sehr hohe aber auch relativ niedrige Ozonkonzentrationen auftreten. Auch für die oben dargestellte Episode findet man dieses Verhalten. Die Abb. 5-7 und 5-8 zeigen für den gleichen Zeitraum die im Raum Karlsruhe beobachteten Tagesgänge der Globalstrahlung und der Temperatur. Der zeitliche Verlauf der Globalstrahlung weist eine sehr geringe Variation über den gesamten Zeitraum auf. Auffallend sind lediglich die deutlichen Einbrüche in der Mitte des dargestellten Zeitraums und am Ende als Folge von Frontdurchgängen. Im Gegensatz dazu findet man bei den täglichen Temperaturmaxima einen analogen Verlauf wie bei den Ozonkonzentrationsmaxima. Zu Beginn der Episode steigt die Tageshöchsttemperatur von 23 °C

bis auf 35 °C. Am 29.07 und 30.07. erfolgt ein deutlicher Rückgang der Werte, danach variiert die Tageshöchsttemperatur nur noch gering.

Es gibt mehrere Gründe für die gute Korrelation zwischen der Temperatur und der Ozonkonzentration. Eine Ursache ist die Temperaturabhängigkeit der Geschwindigkeitskonstanten der in Kapitel 2 beschriebenen chemischen Reaktionen. Insbesondere der thermische Zerfall von Peroxyacetylnitrat (PAN) nimmt mit steigenden Temperaturen deutlich zu, wobei zusätzlich Stickoxide freigesetzt werden. In Gebieten, in denen die Ozonbildung durch die Verfügbarkeit von Stickoxiden limitiert ist, führt dies zu einer Zunahme der Ozonkonzentration.

Des weiteren nehmen die biogenen Kohlenwasserstoffemissionen mit steigender Temperatur zunächst exponentiell zu (Kapitel 4). Oberhalb von etwa 37 °C kommt es allerdings wieder zu einem Rückgang der biogenen Emissionen. Während einer Hochdrucklage mit von Tag zu Tag steigenden Temperaturen steigen die biogenen VOC-Emissionen an und die chemischen Reaktionen verlaufen rascher, wodurch die Entstehung einer Ozonepisode sehr begünstigt wird. Rein meteorologisch sind derartige Situationen mit niedrigen Windgeschwindigkeiten, also stagnierenden Luftmassen, gekoppelt und eine Absinkinversion sorgt für geringe Bewölkung und beschränkt den Vertikalaustausch auf die darunter liegenden Schichten. Der Einfluß der synoptischen Situation auf die oben beschriebene Ozonepisode wird im folgenden detaillierter behandelt.

4 Der Einfluß der synoptischen Situation

In der dritten Juliwoche des Jahres 1990 bildete sich zwischen den über dem Nordatlantik bzw. über Rußland gelegenen Trögen über Südwesteuropa (Frankreich und iberische Halbinsel) ein ausgeprägter Hochdruckkeil. Am 24.7. liegt Deutschland wie schon am

Vortag im Bereich antizyklonaler Strömung zwischen hohem Druck über der Nordsee und tiefem Druck über der Ostsee. Das Tiefdruckgebiet über der Ostsee zieht langsam weiter ostwärts zum Baltikum. Zwischen einem atlantischen Tief südwestlich von Island und dem Tief über der Ostsee erstreckt sich eine Hochdruckzone von den Alpen bis über das Nordmeer und Nordskandinavien. Über Nordostdeutschland kommt es im Bereich der von Nordwest einströmenden maritimen Luft bis 25.7. zu leichten Schauern und Gewittern mit Temperaturen kaum über 19 °C. Erst mit auflockernder Bewölkung und zunehmender Sonnenscheindauer steigen auch im Norden, wie schon im übrigen Deutschland, die Temperaturen langsam an. Am 26.7. beträgt die Tagessumme der Sonnenscheindauer im Norden Deutschlands etwa 5 bis 11 und im Süden 11 bis 14 Stunden und die Temperaturen steigen im Norden Deutschlands bis über 24 °C, im Südwesten bis über 29 °C. Am 28.7. verlagert sich die Hochdruckzone über Polen nach Rumänien. Deutschland gerät dadurch auf der Rückseite des Hochs in eine südliche Strömung. Die Temperaturen steigen in fast ganz Deutschland über 30 °C. In dieser mehrtägigen warmen Hochdrucksituation erreichen die Ozonkonzentrationen auch an den Stationen im Karlsruher Raum Werte von über 120 ppb. Etwa ab

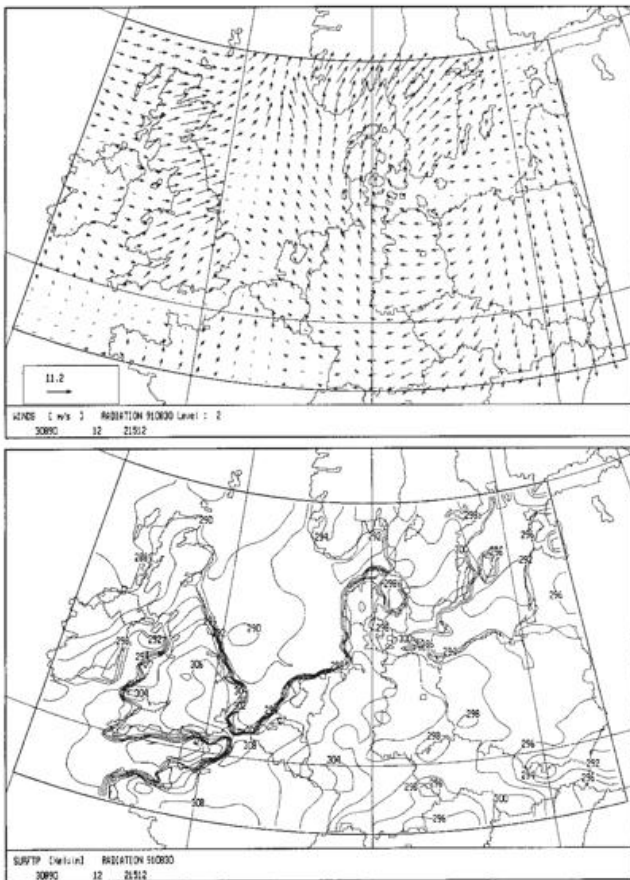


Abb. 5-9: Windfeld (oben) der Mischungsschicht und bodennahes Temperaturfeld in K (unten) am 03. August 1990, 12 UTC.

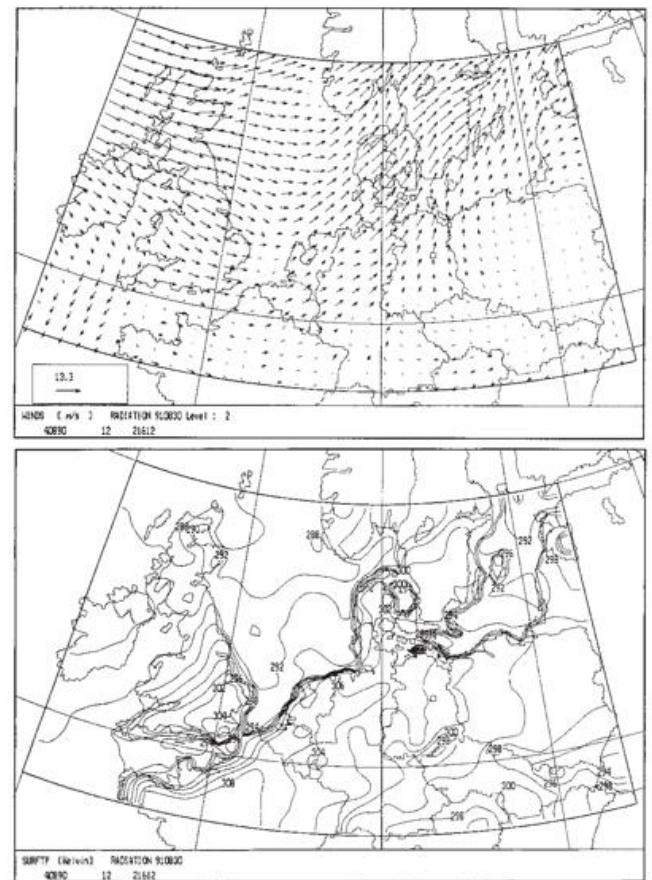


Abb. 5-10: Wie Abb. 5-9, jedoch für den 04. August 1990, 12 UTC.

Mittag überquert das zu einem nordatlantischen Tief gehörende Frontensystem den äußersten Westen Deutschlands. Vor der Front steigen die Temperaturen im Südwesten örtlich bis über 36 °C. Im Verlauf des 29.7. zieht das Frontensystem langsam über Deutschland hinweg. Es kommt zu dichter Bewölkung, Schauern und Regen. Die Lufttemperatur sinkt dabei im Vergleich zum Vortag im Süden um 5 K, im Norden um 10 K. Nur im Osten und Südosten sowie am Oberrhein scheint die Sonne über 8 bzw. 12 Stunden, im übrigen Deutschland ist sie oft weniger als eine Stunde zu sehen. Damit ist ein Rückgang der Ozonkonzentration verbunden und es werden nur noch 80 ppb erreicht. Ab 30. Juli bildet sich zwischen dem Tiefdruckwirbel über dem Nordatlantik und tiefem Druck über dem Mittelmeer erneut eine von Westeuropa bis nach Polen reichende Hochdruckzone aus. Zum 1. August verlagert sich das Zentrum des Hochs über die Nordsee und bei geringer Bewölkung werden Sonnenscheindauern bis zu 13 Stunden beobachtet. Die Temperaturen steigen dabei im Süden bis über 30 °C. In den Folgetagen wandert das Hoch von der südlichen Nordsee nach Polen. Im Zuge dieser Entwicklung gerät Deutschland langsam vom kalten in den warmen Teil des Hochs wodurch erwärmte Kontinentalluft nach Deutschland geführt

wird. Der Wind dreht von östlichen Richtungen über Süd nach Südwest. Bei wolkenfreiem Himmel werden in dieser Phase bis zu 14 Stunden Sonnenschein und in ganz Deutschland Temperaturen über 30 °C registriert (Abb. 5-9 und Abb. 5-10, Stern et al. 1995). Vom 5. August ab zieht das Hochdrucksystem weiter nach Osten. Von der Nordsee verlagert sich die Front eines skandinavischen Tiefs langsam südwärts, so daß zuerst das nördliche Deutschland später der Süden bei westlichen bis nordwestlichen Windrichtungen wieder unter den Einfluß kühlerer Meeresluft gerät. Die Temperaturen steigen daher nur noch auf 20 °C bis 22 °C. (Abb. 5-11). Es kommt, wie schon am Vortag, zu ausgiebigen Niederschlägen. Auch in den nächsten Tagen herrschen in Deutschland westliche Winde vor. Wegen einer leichten Drehung der Höhenströmung von West auf Südwest wird wieder etwas wärmere Luft nach Deutschland geführt. Da sich aber keine neue ausgeprägte Hochdruckzone entwickelt, bleibt die Schauer- und Gewitterneigung erhalten. Dadurch wird die Ozonepisode beendet (7.8.).

5 Der großräumige Transport

Neben den turbulenten Austauschvorgängen hat auch die vorliegende großräumige Strömung einen nicht unerheblichen Anteil am Verlauf von Photosmogepisoden. Dieses soll am Beispiel einer Simulation, die mit dem EURAD-Modell (Memmesheimer et al. 1995) ebenfalls für die oben beschriebene Episode durchgeführt wurde, verdeutlicht werden.

In den Abb. 5-12 bis 5-17 sind die simulierten bodennahen Ozonverteilungen vom 3. bis 5. August jeweils um 16 MESZ dargestellt. Hohe Konzentrationen von über 100 ppb treten vor allem in Belgien, den Niederlanden und dem Nordwesten Frankreichs auf. Mit östlichen Winden, die am 2. und 3. August über West- und Mitteleuropa vorherrschend sind (Abb. 5-9), werden ozonreiche Luftmassen vom Kontinent in den Bereich der englischen und französischen Atlantikküste transportiert. Die höchsten Ozonwerte treten an der warmen Westflanke des Hochs auf, ein typisches Verhalten, das auch in den USA beobachtet wird. Die herannahende Front läßt sich sowohl am Boden wie in der Höhe gut erkennen: am 3. August hat sie Schottland bereits überquert, am Nachmittag des 4. August liegt nur noch der Südosten Englands im Bereich feuchtwarmer, ozonreicher Luft vor der Front. Bereits an diesem Tag ist in 1550 m Höhe (Abb. 5-15) der Transport ozonreicher Luft von England über die Nordsee nach Skandinavien zu erkennen. Am 5. August werden lediglich in Hessen am Nachmittag nochmals 100 ppb überschritten (Abb. 5-16), bevor auch dort die durchziehende Front diese Ozonepisode beendete. Um die Wechselwirkungen der verschiedenen Transportvorgänge zu verdeutlichen, zeigen die Abb. 5-13, 5-15 und 5-17 die Ozonkonzentration in etwa 1550 m. Über dem Kontinent gelangt verhältnismäßig viel Ozon durch konvek-

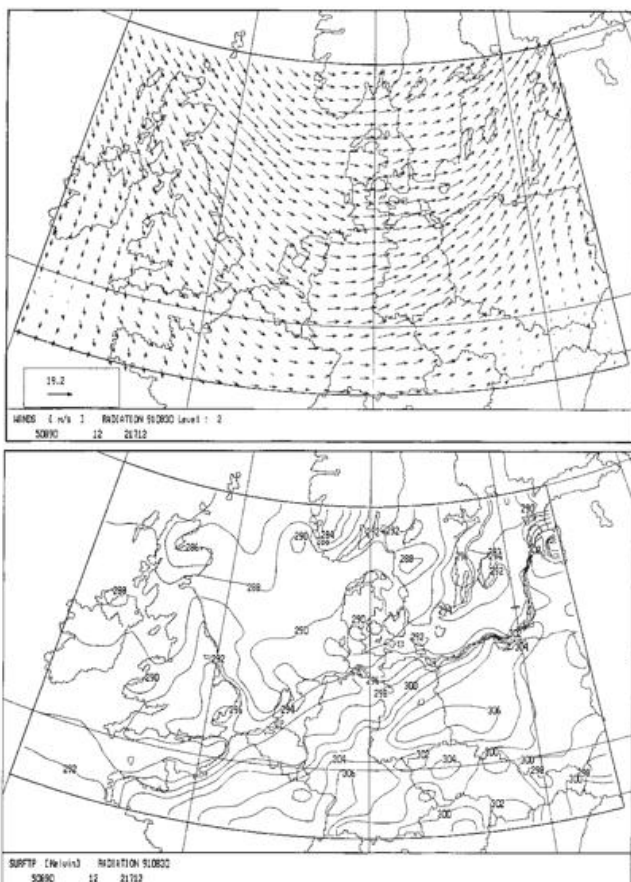


Abb. 5-11: Wie Abb. 5-9, jedoch für den 05. August 1990, 12 UTC.

tive Durchmischung in höhere Schichten und kann dort über weite Distanzen transportiert werden. Diese Effekte zeigen sich besonders deutlich am 4. und 5. August, wenn die Winde mit der herannahenden Front auffrischen und auf Südwest drehen (Abb. 5-15 und 5-17). In diesem Fall kann ozonreiche Luft in 1550 m Höhe von Großbritannien und Mitteleuropa bis Skandinavien gelangen. Dort verläßt sie das Modellgebiet am östlichen Rand. Der Effekt der konvektiven Durchmischung durch die Aufheizung des Bodens auf dem Kontinent ist vor allem am 3. und 4. August zu erkennen. Im Bereich der dichtbesiedelten Küstenregionen der Nordsee- und Mittelmeerküste kommt es zu hohen Ozonkonzentrationen in der bodennahen Schicht über dem Meer (geringer Vertikalaustausch). Während über dem Kontinent auch in 1500-1600 m Höhe hohe Ozonkonzentrationen auftreten, fehlen diese im Küstenbereich über dem Meer in dieser Höhe fast völlig. Die Lufttemperatur ändert sich über dem Meer nur wenig, so daß es dort nicht zur konvektiven Durchmischung kommt.

6 Zusammenfassung

Sowohl die Tagesgänge als auch die zeitlichen Verläufe der Tagesmaxima der Ozonkonzentration während einer Photosmogepisode zeigen typische zeitliche Muster, die sich aus dem Zusammenwirken physikalischer und luftchemischer Vorgänge ergeben. Im Quellbereich sorgt die turbulente Diffusion dafür, daß in höheren Schichten sich bildendes Ozon zum Boden transportiert wird und es dadurch zu einem Anstieg der Ozonkonzentration im Tagesverlauf kommt. Während der Nacht bleibt die Ozonkonzentration oberhalb der Inversion in der sog. Reservoirschicht auf hohem Niveau. Mit einsetzender Grenzschichtentwicklung am folgenden Tag kommt es zur Einmischung des Ozons in die Grenzschicht. Erneute photochemische Bildung führt dann zur Anreicherung der Konzentration an den folgenden Tagen. Quellferne und höher gelegene Gebiete weisen dagegen in der Nacht deutlich höhere Konzentrationen auf. Sie liegen zum einen innerhalb dieser Reservoirschicht und zum anderen sorgt größere Turbulenz für einen Transport aus der Atmosphäre zum Boden hin und damit zur Kompensation des Verlustes durch Deposition.

Begünstigt wird die photochemische Bildung durch ein gleichzeitiges Ansteigen der täglichen Maximaltemperaturen, die einerseits zu erhöhten biogenen Kohlenwasserstoffemissionen, andererseits zu höheren Reaktionsgeschwindigkeiten beteiligter Reaktionen führen. Durch die vorliegende mittlere Strömung erfolgt dann ein Transport auch in quellfernere Gebiete. Günstig für solche Photosmog-situationen sind stagnierende Hochdrucklagen, in denen die photochemischen Umsetzungen im warmen Teil des Hochs rascher ablaufen (raschere chemische Reaktion) als im kalten Teil eines Hochdruckgebietes.

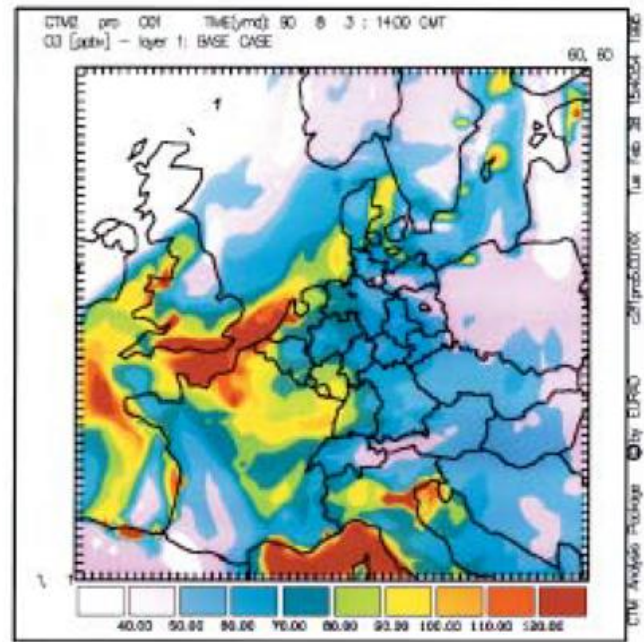


Abb. 5-12: Bodennahe (0 - 70 m) Ozonkonzentration in ppb am 3. August 1990, 16 MESZ. Hohe Ozonkonzentrationen treten an der Westflanke des über der südlichen Ostsee liegenden Hochdruckgebietes (vgl. Abb. 5-9) auf. Ein Teil der ozonreichen Luft ist offenbar mit den vorherrschenden östlichen Winden am 2. und 3. August vor die englische und französische Atlantikküste transportiert worden.

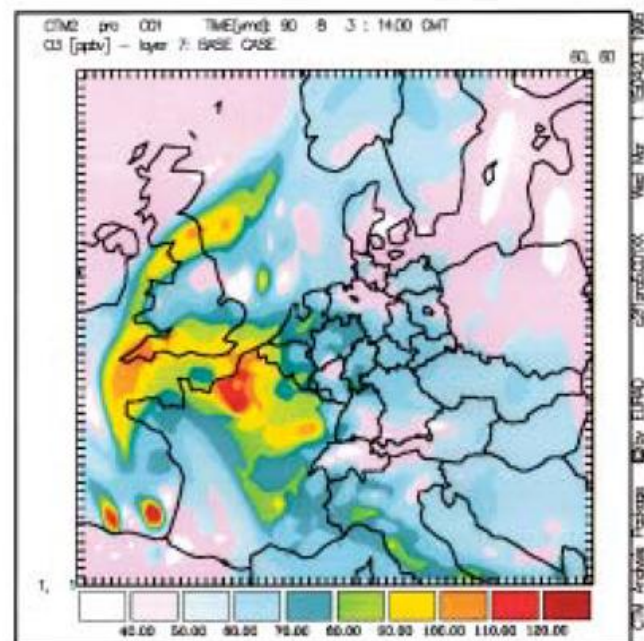


Abb. 5-13: wie Abb. 5-12, jedoch etwa 1550 m Höhe. Man erkennt deutlich geringere Ozonkonzentrationen infolge fehlender konvektiver Durchmischung im Bereich der Nordsee- und der Mittelmeerküste.

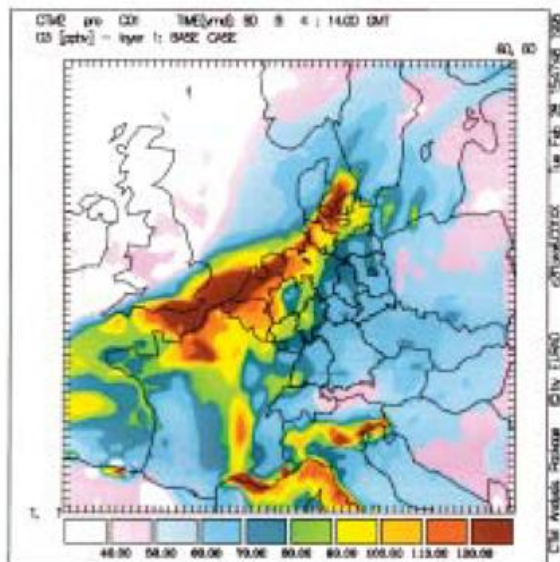


Abb. 5-14: Ozonkonzentration in ppb am 4. August 1990, 16 MESZ, in der bodennahen Modellschicht (0 - 70 m). Auf der Vorderseite der Front, die nun fast ganz England überquert hat, kommt es zu einem Ozontransport Richtung Dänemark und Südschweden.

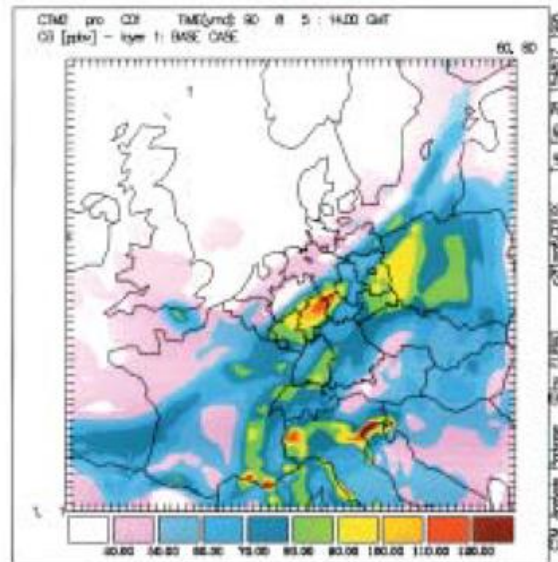


Abb. 5-16: Ozonkonzentration in ppb am 5. August 1990, 16 MESZ, in der bodennahen Modellschicht (0 - 70 m). Die Front hat nun ganz England überquert und liegt über den nördlichen Teilen West- und Mitteleuropas.

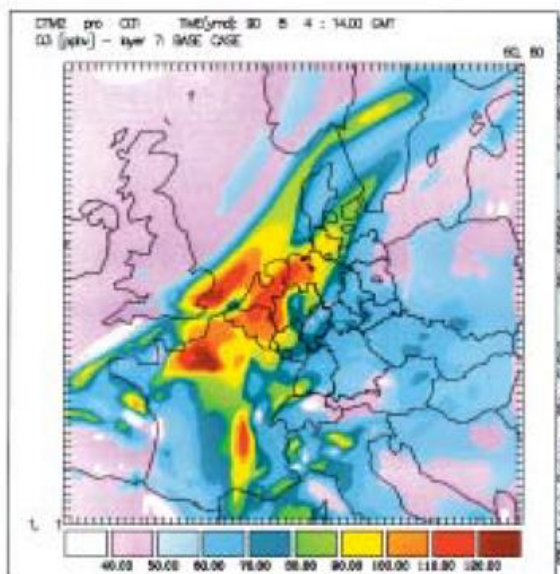


Abb. 5-15: wie Abb. 5-14, jedoch für etwa 1550 m Höhe. Vor der Front zeigen sich in der Höhe mit südwestlichen Winden deutliche Transporte ozonreicher Luft von England und Mitteleuropa nach Skandinavien.

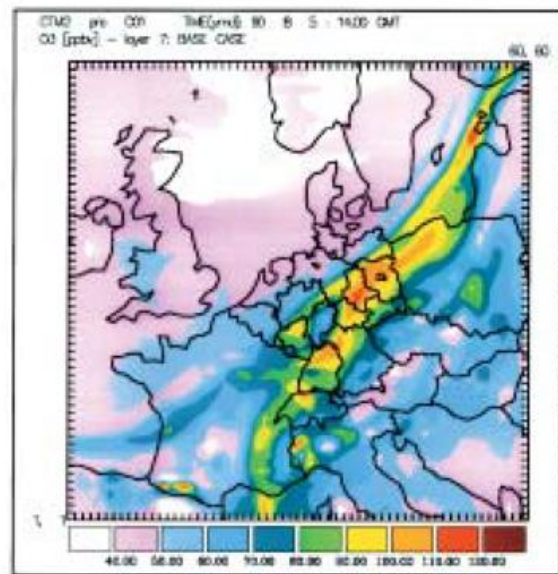


Abb. 5-17: wie Abb. 5-16, jedoch für etwa 1550 m Höhe. Vor der Front zieht sich ein schmales Band mit hohen Ozonkonzentrationen von Frankreich über Süddeutschland bis weit in die Ostsee.

Literatur

MEMMESHEIMER, M., H. JAKOBS, G. PIEKORZ, A. EBEL, H. HASS, 1995: Großräumige Ozon-Modellrechnungen mit verschiedenen Emissionsminderungsszenarien mit Hilfe des Modellsystems EURAD. Abschlußbericht zum Teilvorhaben A-5: Großräumige Ozon-Ausbreitungsrechnungen, FE-Vorhaben 104 02 812/01, „Aktionsprogramm und Maßnahmenplan Ozon“ des Umweltbundesamtes, Köln.

STERN, R., J. FATH, E. REIMER, 1995: Bewertung der Effektivität von Ozonminderungsstrategien mit Hilfe des photoche-

mischen Ausbreitungsmodells REM3. Freie Universität Berlin, Institut für Meteorologie. Abschlußbericht zum Teilvorhaben A-5 „Großräumige Ozon-Ausbreitungsrechnungen“ im Rahmen des FE-Vorhabens 10402812/01 „Aktionsprogramm und Maßnahmenplan Ozon“ des Umweltbundesamtes

VOGEL, B., F. FIEDLER, H. VOGEL, 1995: Influence of topography and biogenic volatile organic compounds emission in the state of Baden-Württemberg on ozone concentrations during episodes of high air temperatures, J. Geophys. Res., 100, 22907-22928.

6 Langzeittrends der mittleren Konzentrationen und von Spitzenwerten von Ozon

1 Einleitung

Das troposphärische Ozon besitzt natürliche und anthropogene Quellen. Zu den natürlichen Quellen zählen Transport aus der Stratosphäre und natürliche photochemische Produktion aus Kohlenwasserstoffen (z.B. Pflanzen) in Verbindung mit natürlichen NO_x -Quellen (z. B. Blitze). Durch anthropogene Aktivitäten werden sowohl NO_x als auch Kohlenwasserstoffe (sog. Vorläufergase) an die Atmosphäre abgegeben, die bei starker Sonneneinstrahlung den Photosmog bilden. Ozon ist, wie NO_2 , ein photoaktives Gas, das durch UV-Licht zerlegt wird und damit die Grundlage für nahezu alle luftchemischen Reaktionen legt. Wären nur Ozon und NO_x vorhanden, dann würde sich je nach Sonneneinstrahlung rasch eine Gleichgewichtskonzentration einstellen (photostationärer Zustand). Bei der Photolyse von Ozon entstehen sogenannte Hydroxylradikale (OH), die mit anderen Spurengasen wie CO, Methan oder höheren Kohlenwasserstoffen reagieren, wobei es je nach dem Verhältnis von NO_x und Kohlenwasserstoffen (VOC) zu einer Nettoproduktion oder in sehr reiner Luft (wenig NO_x) zu einem Nettoabbau von Ozon kommt (Ehhalt 1999; s. auch Kapitel 2). Hierauf soll jedoch nicht näher eingegangen werden, sondern es soll vielmehr die großräumige troposphärische Ozonverteilung und die Wechselwirkung mit meteorologischen Prozessen behandelt werden. Wichtig ist in diesem Zusammenhang die Kenntnis der Lebensdauer des Ozons, da sich hieraus die Bedeutung der Transportprozesse abschätzen läßt. Wegen der Photoaktivität und der Temperaturabhängigkeit photochemischer Reaktionen ist die gesamt-troposphärische Lebensdauer im Winter hoch (etwa 180 Tage) und im Sommer niedrig (etwa 60 Tage). In der planetarischen Grenzschicht ist die Lebensdauer wegen der wirksamen Abbauprozesse kurz und beträgt nur einige Tage.

2 Natürlicher Ozongehalt der Troposphäre

Der Ozongehalt der Troposphäre wird natürlicherweise aus dem Zusammenspiel unterschiedlicher Quellen und Senken bestimmt: Eine der Hauptquellen ist die Stratosphäre, aus der Austauschvorgänge an der Tropopause Ozon in die Troposphäre einmischen, wo es sich anschließend infolge der Turbulenz verteilt. Dieser Eintrag variiert mit der Jahreszeit und er hängt von der geographischen Breite ab: In den Tropen ist der Austausch mit die Tropopause durchstoßenden Cumulonimben verbunden, in mittleren Breiten spielen Tropopausenfaltungen eine große Rolle, an Tropopausenbrüchen können Luftpakete entlang der Isentropen

ohne Energieaufwand ausgetauscht werden und in polaren Breiten ist die Tropopause generell wenig scharf ausgeprägt. Eine zweite Quelle für das troposphärische Ozon stellen natürliche und anthropogen verursachte photochemische Reaktionen in der Troposphäre dar, an denen CO, CH_4 , Kohlenwasserstoffe und NO_x (z. B. aus Blitzen oder bakterieller Aktivität in Böden, VOC aus Pflanzen) beteiligt sind (z.B. WMO 1991). Dabei führen sehr geringe NO_x -Konzentrationen (in Reinstluft mit < 15 ppt) zu einem Ozonabbau, wird dagegen ein Schwellenwert von etwa 15 ppt NO_x überschritten, kommt es zur Ozonbildung. Diese natürliche Ozonbildung ist zwar in der Regel schwach, kann aber in großen Volumina stattfinden und zu einer gewissen Akkumulation von Ozon führen. Senken für Ozon sind Reaktionen mit anderen Spurengasen, Reaktionen in Wolken (langsam), Reaktionen mit Aerosol und vor allem Abbau an der Erdoberfläche und durch Pflanzenatmung.

Die Austauschvorgänge an der Tropopause umfassen mehrere Prozesse (Reiter 1975):

- die jahreszeitlich variierende Tropopausenhöhe, wodurch im Jahr etwa 10 % der stratosphärischen Luftmasse einer Hemisphäre ausgetauscht werden,
- Vertikaltransport durch die Hadleyzirkulation (Cumulonimben, welche die Tropopause durchstoßen), wodurch knapp 40 % der hemisphärischen Stratosphäre ausgetauscht werden,
- Tropopausenfaltungen im Bereich von Strahlströmen und Kaltlufttropfen, wobei vor allem in mittleren und hohen Breiten etwa 20 % der hemisphärischen Stratosphärenmasse ausgetauscht werden,
- kleinskalige Turbulenz, die nach bisherigen Schätzungen nur ungefähr 1 % der stratosphärischen Masse austauscht.

Verschiedene Schätzungen über den Beitrag dieser Austauschvorgänge zum Ozonhaushalt der Troposphäre haben wegen bestehender Unsicherheiten in den Schätzmethode zu sehr unterschiedlichen Zahlen geführt. Man kann aber davon ausgehen, daß mindestens 50 % des troposphärischen Ozons aus der Stratosphäre stammen. Die Ursache für die Unsicherheit liegt in der episodischen Natur der Tropopausenfaltungen. Man schätzt deren Häufigkeit auf 4 – 5 pro Tag in der Hemisphäre, wobei beträchtliche Unterschiede in Ausdehnung, Tiefe der Einfaltung, Ozongehalt in der Falte und Vermischungsprozeß bestehen. Im Winter und

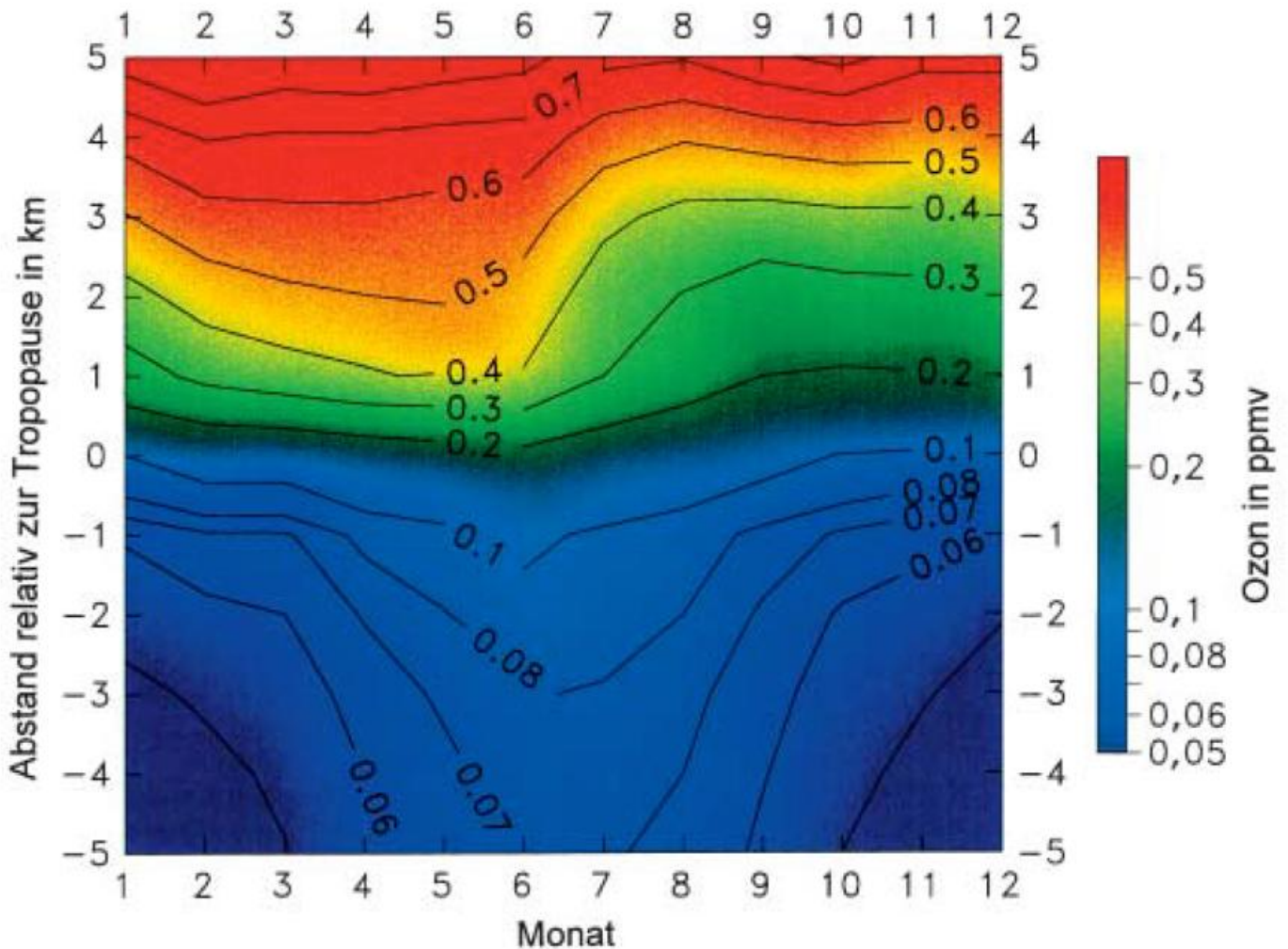


Abb. 6-1: Ozonmischungsverhältnisse im Jahresverlauf. Abstände relativ zur Tropopause in km anhand von Messungen am Observatorium Hohenpeißenberg. Man erkennt, daß bis Juni oberhalb der Tropopause höhere Mischungsverhältnisse vorkommen als in der zweiten Jahreshälfte.

Frühjahr ist z. B. die Stratosphäre direkt über der Tropopause ozonreicher, im Sommer und Herbst ozonärmer (Abb. 6-1). Eine Tropopausenfaltung transportiert daher im Frühling mehr Ozon in die Troposphäre als eine gleichartige Faltung im Herbst.

Auch ist der Ozongehalt direkt oberhalb der Tropopause breitenabhängig. Der Jahresgang der Faltungen und der oberhalb der Tropopause bestehende Ozongehalt bestimmen den Jahresgang des stratosphärischen Ozoneintrages zusammen mit dem Jahresgang der Tropopausenhöhe. Im allgemeinen kann man davon ausgehen, daß diese Vorgänge zu einem troposphärischen Ozonmaximum im April/Mai führen, wie es z. B. in Hawaii mitten im Pazifik oder auch an Reinflustationen im Atlantik gemessen wird (der Ozonabbau an der Ozeanoberfläche ist sehr gering). Es soll noch darauf hingewiesen werden, daß infolge des Ozonabbaus in der Stratosphäre und der damit verbundenen langfristigen Ozonabnahme in der unteren Stratosphäre der Zustrom in die Troposphäre durch Austausch abgenommen hat.

Der Eintrag von stratosphärischem Ozon in die Troposphäre wird sehr gut an einem Meridionalschnitt des troposphärischen Ozons über dem Atlantik sichtbar (Kley 1997), wie er auf einer Fahrt des Forschungsschiffes POLARSTERN längs 30° W aufgenommen wurde (Abb. 6-2). An der innertropischen Konvergenzzone (bei 10° N) erkennt man ozonarme Luft, die aus oberflächennahen Schichten von der Konvektion bis zur Tropopause verfrachtet wird. Durch die subtropischen Tropopausenbrüche gelangt ozonreiche stratosphärische Luft in die Troposphäre, die in den Subtropenhochs mit der Hadley-Zirkulation absinkt und als Zunge ozonreicher Luft erkennbar ist. Dies ist bei 20° N (Höhe um 15 km) und ausgeprägter noch bei 13° S (Höhenbereich 15 bis 5 km) gut zu erkennen.

Die natürliche photochemische Ozonproduktion ist an den Strahlungsfluß und die Temperatur gebunden. Letztere spielt in zweifacher Hinsicht eine Rolle, da erstens die chemischen Reaktionsraten temperaturabhängig sind und zweitens Pflanzenemissionen (Kohlenwasserstoffe), die Aktivität von Bodenbakterien (NO_x -

Quelle) sowie die Gewitteraktivitäten (NO_x -Erzeugung durch Blitze) der Temperatur folgen. Da diese Prozesse im Juli/August über den Kontinenten ihr Maximum erreichen, überlagert die damit verbundene Ozonproduktion den stratosphärischen Eintrag und verschiebt das damit verbundene Frühjahrsmaximum über den Kontinenten zum Sommer hin.

Aus historischer Zeit gibt es einzelne Meßreihen über bodennahes Ozon. In Wien wurde von 1853 bis 1920 nach dem Schönbein-Verfahren gemessen (Lauscher 1984). Dieses Farbreaktionsverfahren von Ozon mit einem chemisch präparierten Filter ist feuchteempfindlich und die Datenqualität entsprechend unsicher. Eine zweite historische Reihe stammt von Montsouris bei Paris. Das dort angewandte Arsenit-Verfahren ist sehr zuverlässig, wie eine Nachuntersuchung von Volz und Kley (1988) ergeben hat. In Abb. 6-3 sind diese historischen Reihen sowie einige sporadische Messungen vor 1960 im süddeutschen Raum mit heutigen Messungen zusammengestellt. Man erkennt, daß früher die Ozon-

konzentration nur etwa halb so hoch war wie heute. Im allgemeinen wird dieser Anstieg mit photochemischer Produktion von Ozon aus anthropogen erzeugten Vorläufergasen in Zusammenhang gebracht. Bisher wurde allerdings noch nicht untersucht, ob auch das damals generell etwas kühlere Klima, z.B. wegen geringeren Vertikalaustausches, dazu beigetragen hat, daß in Bodennähe weniger Ozon vorhanden war.

3 Anthropogenes Ozon

In Gebieten mit viel Industrie wie Europa, Ost-USA und Japan wird viel NO_x aus Energieerzeugung, Industrie und Verkehr freigesetzt. Bei gleichzeitig hohen Kohlenwasserstoffemissionen (Benzin und Lösungsmittel) kommt es bei hoher Sonneneinstrahlung zu starker photochemischer Ozonbildung. Der Vorgang wird auch als Photosmog oder nach dem Ort, wo das Phänomen zuerst nachgewiesen wurde, als Los Angeles Smog bezeichnet (siehe Kapitel 1).

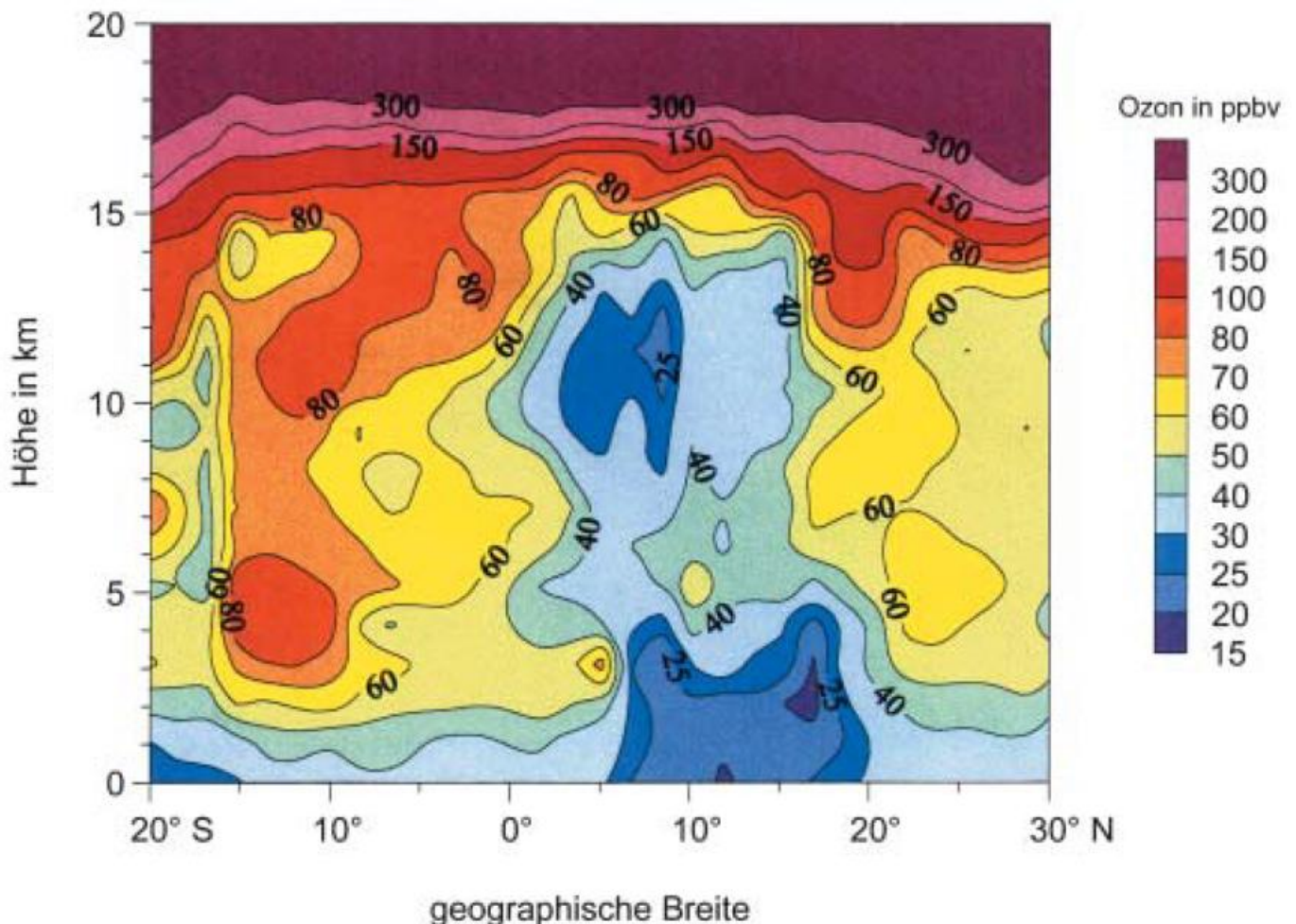


Abb. 6-2:

Meridionalschnitt der vertikalen troposphärischen Ozonverteilung über dem Zentralatlantik aufgenommen in der Zeit September/Oktober 1988 während der Reise ANT VII/1 des Forschungsschiffes POLARSTERN nach Kley 1997. An der innertropischen Konvergenzzone (bei 10° N) findet man ozonarme Luft, die aus oberflächennahen Schichten mit Hilfe der Konvektion bis zur Tropopause verfrachtet wird. Durch die subtropischen Tropopausenbrüche gelangt ozonreiche stratosphärische Luft in die Troposphäre und sinkt in den Subtrophochs mit der Hadley-Zirkulation ab. Dies ist bei 20° N und noch ausgeprägter bei 13° S gut zu erkennen.

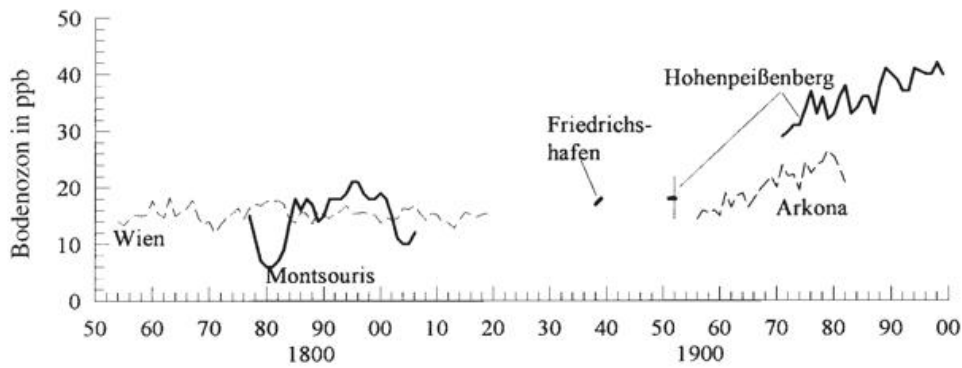


Abb. 6-3:
Entwicklung des bodennahen Ozons seit 1853. Wiener Reihe nach Lauscher (1984), Montsouris nach Volz und Kley (1988), Friedrichshafen nach Ehmert (1941), Arkona nach Feister und Warmbt (1987), und Hohenpeißenberg.

Das Phänomen ist an bestimmte Wettersituationen gekoppelt (hohe Sonneneinstrahlung, geringer Vertikal-austausch unter einer Absinkinversion und hohe Temperatur) und verläuft episodenhaft. Eine Änderung der Häufigkeit solcher Wettersituationen führt zu großer Variabilität von Ozonepisoden von Jahr zu Jahr. Für Mitteleuropa haben Perlwitz und Graf (1995) die Zunahme solcher Wetterbedingungen seit Mitte der 50er Jahre anhand des mittleren Anstiegs des 500 hPa Niveaus nachgewiesen.

Wichtig ist bei der Bildung von Photosmog das Verhältnis von NO_x zu VOC. In NO_x -reicher Luft, wie sie z.B. in Städten angetroffen wird, wird bei typischerweise hohem NO_x -Gehalt zunächst Ozon abgebaut, die Ozonbildung ist hier VOC-limitiert. Von Sonnenaufgang bis zur maximalen Ozonbildung vergehen einige Stunden. Da in diesem Zeitraum die belasteten Luftmassen mit dem Wind verfrachtet werden, bauen sich die höchsten Ozonkonzentrationen bei Photosmog daher erst in einiger Entfernung von der Hauptquelle auf (50 – 100 km, je nach Windstärke) und werden daher oft in ländlichen Gebieten angetroffen (siehe Obermaier et al. 1995; Abb. 4.5-5). Beim Transport dorthin wird NO_x aber meist rascher abgebaut als die VOC's, so daß die Ozonbildung dann in der Regel zur NO_x -Limitierung wechselt.

Das in Photosmog-Episoden erzeugte Ozon überlagert sich dem natürlichen Pegel. Unterhalb der nächtlichen Bodeninversion wird Ozon abgebaut, weshalb ein starker Tagesgang entsteht. Oberhalb der Inversion, wie an Bergstationen beobachtet werden kann, bleibt es aber in der sog. Reservoirschicht erhalten und gelangt mit der Auflösung der Bodeninversion am Folgetag durch Turbulenz wieder in Bodennähe und überlagert sich mit der photochemischen Neubildung von Ozon.

Will man daher Trends analysieren, muß man versuchen, einerseits die großräumige Entwicklung des troposphärischen Ozongehalts festzustellen und andererseits die Häufigkeit von photosmogbegünstigenden Wetterlagen bzw. deren Trend zu erfassen.

4 Großräumige und bodennahe Entwicklung

Das Ozon in der freien Troposphäre wurde über längere Zeiträume hinweg nur mit Ozonsondierungen an den meteorologischen Observatorien Hohenpeißenberg und Lindenberg erfaßt. Diese Daten geben Auskunft über die großräumige Entwicklung des Hintergrundozons, da oberhalb von 3 km der lokale Einfluß aus der planetarischen Grenzschicht nur gering ist und wegen der troposphärischen Lebensdauer des Ozons von mehr als 4 Wochen großräumige Transporte die Konzentration in der freien Troposphäre bestimmen. In Abb. 6-4 ist der Ozonverlauf von 1967 bis 1998 oberhalb der planetarischen Grenzschicht für Hohenpeißenberg und Payerne (Schweiz) dargestellt. Man erkennt den langfristigen Anstieg des troposphärischen Ozons seit Beginn der Meßreihe bis etwa Mitte der 80er Jahre und danach ein Verharren auf hohem Konzentrationsniveau. Es handelt sich dabei nicht nur um Ozon, welches in Europa entstanden ist. Inzwischen ist auch mittels Trajektorienuntersuchungen nachgewiesen, daß z.B. über den Atlantik wandernde Tiefs bodennahe Luft aus den Südstaaten der USA bis in die obere Troposphäre anheben, die über Europa wieder absinkt und hohe Ozon-Mischungsverhältnisse mit sich führt (Stohl und Trickl 1999). Es ist noch unklar, weshalb ein weiterer Anstieg des troposphärischen Ozons ab Mitte der 80er Jahre ausblieb. Luftreinhaltemaßnahmen in Europa haben z.B. die SO_2 -Emissionen erfolgreich reduzieren können, beim Photosmog sind trotz Emissionsminderungsmaßnahmen dagegen gleiche Erfolge noch nicht zu verbuchen, denn, wie in Abb. 6-5 gezeigt wird, hat die Überschreitungshäufigkeit eines Schwellenwertes von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (≈ 60 ppb) in Deutschland im Mittel zugenommen. Mit Sicherheit hat sich die mittlere Zirkulation in atlantisch-europäischen Raum verändert (Perlwitz und Graf 1995), was ein häufigeres Auftreten von photosmog-günstigen Wetterlagen zur Folge hat. Der seit Mitte der 80er Jahre sich nicht mehr fortsetzende troposphärische Ozonanstieg könnte auch mit vermindertem Zustrom aus der Stratosphäre zusammenhängen. Da die untere Stratosphäre langfristig ozonärmer geworden ist, trans-

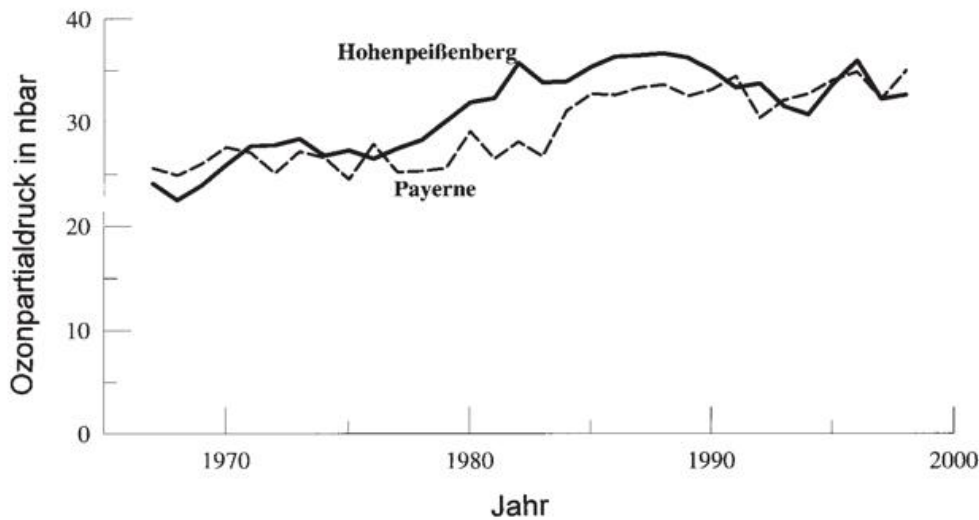


Abb. 6-4:
Langzeitentwicklung des Ozons in der freien Troposphäre aus Ballonsondierungen in Hohenpeißenberg (4 km Höhe) und Payerne (Schweiz, 4,25 km Höhe). Hohenpeißenberg zeigt bis Mitte der 80er Jahre eine kontinuierliche Zunahme, danach ein Verharren auf hohem Niveau. In Payerne verläuft der Anstieg etwas unterschiedlich, der großräumige Anstieg ist aber auch hier festzustellen.

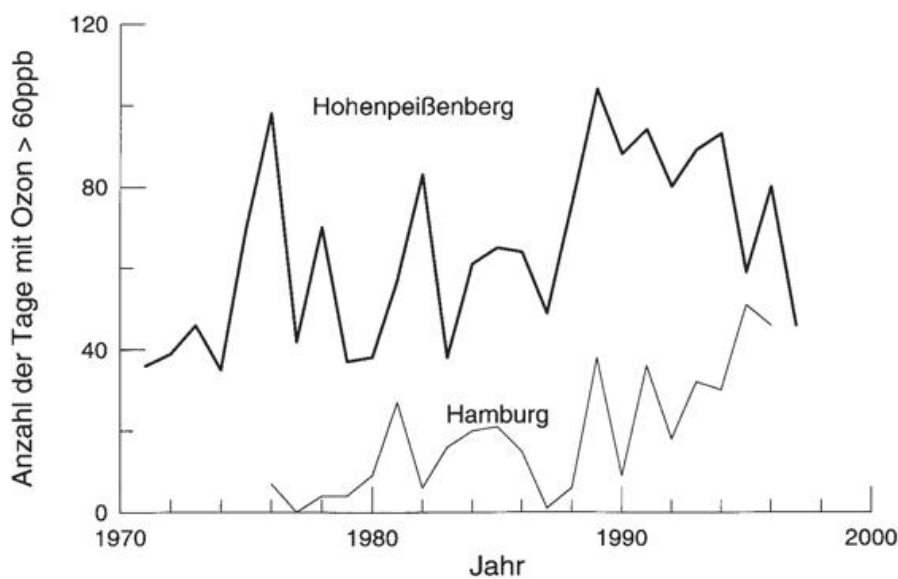


Abb. 6-5:
Überschreitungshäufigkeiten eines Mischungsverhältnisses von 60 ppb in Süddeutschland (Hohenpeißenberg) und Norddeutschland (Hamburg). In Hamburg zeigte sich ab 1990 eine stärkere Zunahme der Anzahl der Tage mit hoher Ozonkonzentration. In Süddeutschland ist die Überschreitungshäufigkeit generell höher und es ist eine leichte Zunahme der Zahl der Tage mit hohen Ozonwerten festzustellen. (Eine Konzentration von 60 ppb entspricht etwa $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$, die Umweltämter warnen ab einer Konzentration von $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

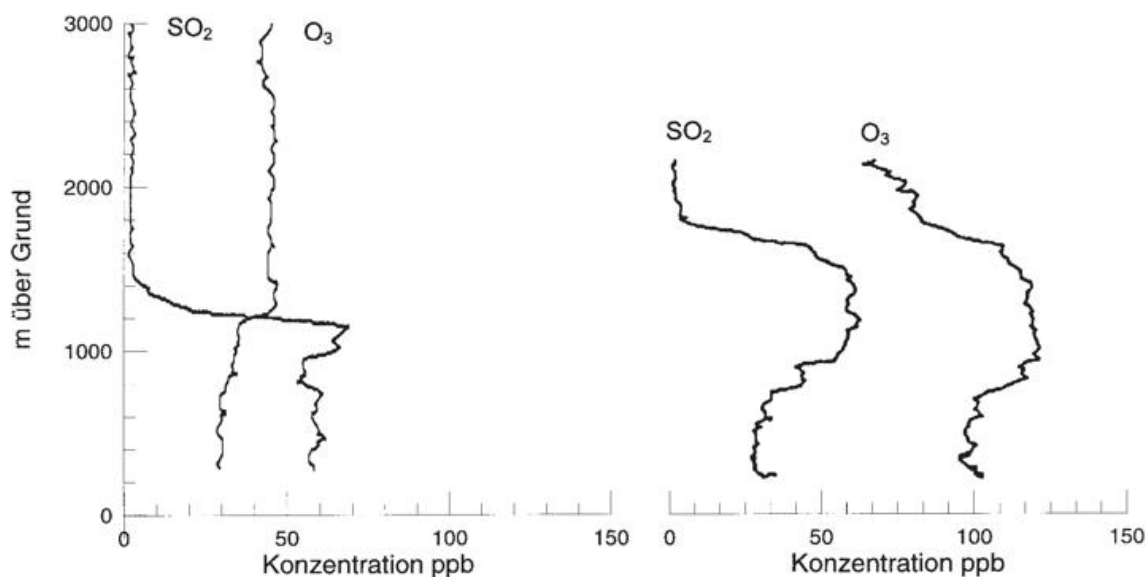


Abb. 6-6: Vertikalprofile von SO_2 und Ozon (nach de Boer und Lelieveld 1986).

links: Beispiel eines Ozonprofils ohne Photosmog (14.02.1986, Nähe Kiel): Unterhalb der Inversion ist SO_2 angereichert (Südostwind mit Transport aus der DDR) und Ozon wurde durch Reaktion mit NO_x abgebaut.

rechts: Ozonprofil mit Photosmog (04.07.85, Nähe Bayreuth): Unterhalb einer Inversion (SE Wind) ist sowohl SO_2 als auch Ozon erhöht, ein Hinweis auf anthropogene Quellen und Photosmogbildung.

portieren Tropopausenfaltungen auch weniger Ozon in die Troposphäre. Wenn auch der troposphärische Ozonhaushalt in Mitteleuropa nicht allein von der Häufigkeit der Faltungen in diesem Gebiet bestimmt wird, spricht doch eine generell positive Korrelation zwischen Ozon oberhalb der Tropopause mit Werten der oberen Troposphäre für diese Erklärung.

Auf dem troposphärischen Hintergrundozon baut sich der bodennahe photochemische Smog auf. Ein Beispiel dafür, wie Photosmog anhand von Flugzeugsondierungen nachzuweisen ist, zeigt Abb. 6-6. Im ersten Fall ist die Luft unterhalb einer Inversion stark mit SO_2 angereichert und zeigt so den ausgeprägten anthropogenen Einfluß. Im Februar, als diese Situation vermessen wurde, gibt es noch keinen Photosmog (linker Teil der Abb.). Daher ist Ozon in der verschmutzten Schicht unterhalb der Inversion niedriger als oberhalb. Ozon wird hier durch Reaktion mit ebenfalls anthropogen emittiertem NO_x abgebaut. Diese Situation ist auch typisch für verkehrsnah bzw. Stadtstationen, besonders am Morgen bei noch flach stehender Sonne. Im zweiten Fall (rechter Teil der Abb.), der im Juni vermessen wurde, ist SO_2 unterhalb der Inversion ebenfalls erhöht, aber ebenso das Ozon. Infolge starker Sonnenstrahlung wurde Ozon photochemisch gebildet.

Als ein grobes Maß für die lokale photochemische Ozonbildung kann die Überschreitung bestimmter Schwellenwerte angesehen werden. In Abb. 6-5 sind für die beiden Stationen Hohenpeißenberg und Hamburg die jährlichen Überschreitungshäufigkeiten einer Konzentration von $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ($\approx 60 \text{ ppb}$) gezeigt. Man erkennt die häufigere Photosmogbildung im Süden gegenüber dem Norden Deutschlands. In manchen Jahren wie 1976, 1982 oder 1989 treten Photosmog-situationen häufig auf, in anderen Jahren selten. Dabei sind wegen der regionalen Wetterunterschiede in den einzelnen Jahren die photosmog-günstigen Situationen in Nord- und Süddeutschland nicht gleich häufig.

Eine wichtige Fragestellung ist, ob Luftreinhalungsmaßnahmen in Deutschland bereits greifen. Zu diesem Zweck sind bei der Untersuchung von Trends die unterschiedliche Wetterlagenhäufigkeit in den einzelnen Jahren und deren mehr oder weniger günstigen Bedingungen für die Photosmogbildung zu berücksichtigen. Dies wird im Folgenden exemplarisch dargestellt.

5 Ozonbildung und Meteorologie

Die photochemische Bildung von bodennahem Ozon ist vielfältig mit dem Wettergeschehen, also den atmosphärischen Zustandsparametern, in Raum und Zeit vernetzt (s. auch Beiträge Fiedler, Kapitel 1 bzw. Poppe et al., Kapitel 2 in diesem Heft). Die Ozonbildung ist eine Funktion insbesondere des Strahlungsangebotes und der Temperatur.

In den untersten etwa 500 m der Atmosphäre erfolgt der Abbau von Ozon über den Titrationseffekt ($\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$, siehe Gl. R3, Kap. 2) und die sogenannte Trockendeposition, also durch den direkten Kontakt mit Pflanzen und anderen Materialien der Erdoberfläche. Dieser Abbau durch Trockendeposition ist einerseits proportional zur Ozonkonzentration selbst, andererseits zur Transportgeschwindigkeit zu Pflanzen und zur Erdoberfläche (Senken). Dieser Transport hängt wesentlich von der vertikalen Temperaturschichtung ab, also von der Höhe und Intensität der vertikalen Durchmischung der Atmosphäre. Ozon selbst hat eine Lebensdauer von drei bis sechs Tagen, so daß in der Schicht zwischen 500 und 1500 m eher ein Langstreckentransport erfolgt, und somit weniger das lokale Wettergeschehen als das großräumige Wetter bedeutsam ist. Abgesehen von den anthropogenen Quellen der Vorläufersubstanzen zur Ozonbildung sind alle wesentlichen Prozesse wie:

- Ozonbildung
- horizontaler Ozontransport
- vertikale Durchmischung
- Trockendeposition

von den meteorologischen Bedingungen abhängig. Die Abbaureaktion von Ozon mit Stickstoffmonoxid, die im näheren Umfeld der Quellen zu einer Abnahme von Ozon führt (Titrationseffekt), ist hingegen kaum vom Wetter beeinflusst.

Da das Wettergeschehen von Jahr zu Jahr mehr oder weniger stark variiert, kann es andere Einflüsse maskieren, so daß Änderungen der raumzeitlichen Emissionsintensität erst bei sehr langen Beobachtungsreihen sichtbar werden. Eine Untersuchung zum Einfluß der Wettervariabilität auf Ozonbildung und Trends wurde an 8jährigen Zeitreihen (1990-1997) vorgenommen, um sozusagen die Wirkung einer Wetterbereinigung sichtbar zu machen (Enke 1999).

6 Fehlwertersetzung

In dem verfügbaren Datenmaterial traten mehr oder weniger große Datenlücken auf, so daß es sich bei der Trenduntersuchung relativ kurzer Zeitreihen als notwendig erwies, Verfahren zum Ersetzen fehlender Ozondaten zu entwickeln. Die nachfolgend dargestellte Wetterbereinigung erfolgt zudem unter Verwendung von drei meteorologischen Datenquellen, deren Zeitreihen gleichfalls unvollständig sind. In Kombination mit den Ausfällen in den Ozondatenreihen verkürzten sich die Zeitintervalle mit vollständigen Datensätzen auf ein nicht mehr vertretbares Maß, so daß vor einer Trendanalyse und Wetterbereinigung eine Fehlwertersetzung notwendig war (Enke 1986). Für die Untersuchung wurden 167 Ozonmeßstationen verwendet, die in die Klassen: verkehrsnah, Stadt, Land und Berge unterteilt wurden.

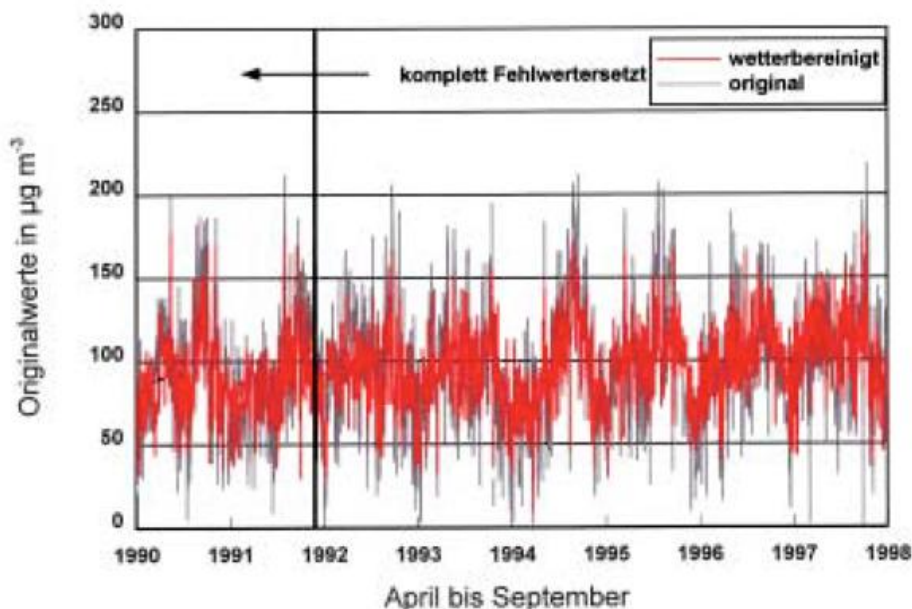


Abb. 6-7:

Charakteristischer Verlauf einer Meßreihe stündlicher Ozonwerte (15 UTC) am Beispiel der Station Ludwigshafen-Oppau. Grau: Ausgangsmeßreihe, rot: wetterbereinigte Meßreihe. Der Zeitraum 1990 – 1991 ist vollständig fehlwertersetzt.

Es ist gut sichtbar, daß der Zeitraum mit ersetzten Fehlwerten sich problemlos in die Gesamtstruktur der Reihe einfügt. Mit der Wetterbereinigung (s. Text) werden die Ozonkonzentrationen auf ein Einheitswetter umgerechnet, wodurch die maximalen und minimalen Konzentrationen deutlich gedämpft werden (rote Reihe).

Zur Fehlwertersetzung sind zwei grundsätzliche Vorgehensweisen denkbar:

Es erfolgt eine räumliche Interpolation vorhandener Meßwerte auf die zu ersetzenden Stationen. Zum Einsatz kommen hier Verfahren, die in der Meteorologie zur Erzeugung äquidistanter Felder für numerische Prognosen aus Stationsmessungen Verwendung finden z.B. optimale Interpolation, inverse Abstands-Wichtungungsverfahren, Triangulation oder Trendflächenanalyse. Diese Verfahren sind recht aufwendig und berücksichtigen zudem nicht die statistischen Zusammenhänge zwischen den Meßstationen. Durch diese Methoden wird eine geometrische Interpolation in der Fläche durchgeführt, die für jeden Termin neu berechnet werden muß.

Die Anwendung statistischer Modelle zur Fehlwertersetzung (multiple Regression, Clusteranalysen, autoregressive Modelle usw.) beschreiben die statistischen Zusammenhänge der Meßstationen untereinander sowie zwischen den Meßstationen und den meteorologischen Bedingungen. Der zweite Ansatz (multiple Regression) wurde gewählt, weil er nicht nur die Bedingungen des aktuellen Tages zur räumlichen Interpolation verwendet, sondern die Gesamtheit der statistischen Abhängigkeiten berücksichtigt.

Die Fehlwertersetzung wird in zwei Stufen vorgenommen:

1. Eine zeitliche Interpolation von Datenlücken, die drei Stunden nicht überschreiten. Diese pragmatische Herangehensweise ist aufgrund des weitgehend ‚ruhigen‘ Tagesganges der Ozonkonzentration gerechtfertigt, birgt jedoch die Gefahr in sich, maximale Ozonwerte zu glätten, wenn die Ausfälle gerade dieses Zeitintervall betreffen (hohe Ozonkonzentrationen treten vorzugsweise nachmittags auf).

2. Die räumliche Interpolation verwendet die stündlichen jahresgangbereinigten Datenreihen. Mittels eines multiplen screening Regressionsverfahrens wird für jede Station und für jede Stunde eine Regressionsbeziehung entwickelt, die maximal 4 andere Stationen einbezieht. Das Selektionskriterium für die zu verwendenden Meßreihen ist dabei nicht die räumliche Nähe zu der Station, sondern die Minimierung der Reststreuung nach Fehlwertersetzung. Es werden also durchaus räumlich weiter entfernt liegende Stationen verwendet, die jedoch dem Stationstyp (Land-, Stadt-, Verkehrs- oder Bergstation) besser entsprechen.

Für eine komplett fehlwertersetzte Reihe liegt die erklärte Varianz für die Tagesstunden im Mittel über alle Stationen bei 85%, für die Nachtstunden bei 65%. Berücksichtigt man die Tatsache, daß nur kurze Perioden ersetzt werden, so dürfte gesichert sein, daß die statistische Struktur der Meßreihen nicht verfälscht wird.

Abb. 6-7 zeigt am Beispiel der Station Ludwigshafen-Oppau (Station mit häufiger Photosmogbildung) eine komplette Fehlwertersetzung der Jahre 1990 und 1991. Schon der Augenschein bestätigt, daß sich der fehlwertersetzte Zeitraum gut in die gesamte Meßreihe einfügt.

7 Wetterbereinigung der täglichen Ozonmaxima

Aus den fehlwertersetzten Stundenwerten werden nun die Tagesmaxima der Ozonkonzentration bestimmt und diese Reihen vom stationsspezifischen Jahresgang bereinigt, so daß zur nun anstehenden Wetterbereinigung die Abweichungen der täglichen Ozonmaxima von der Stationsklimatologie verwendet werden. Für die statistische Modellierung der meteorologischen

Abhängigkeiten der Ozonbildungs- und Ozonauflösungsprozesse wurden drei Datentypen verwendet:

- Klimabeobachtungen von 49 deutschen Klimastationen,
- Radiosondenaufstiege von 12 deutschen Stationen,
- Objektiv bestimmte Ozonwetterlagen.

Folgende wesentliche meteorologische Einflüsse auf die Bildung, den Transport und auf den Abbau bodennahen Ozons werden bei der Wetterbereinigung berücksichtigt:

- Der Auf- und Abbau troposphärischen Ozons ist im wesentlichen eine Funktion von Strahlungsangebot (Sonnenscheindauer, Bewölkung, Feuchte) und Temperatur (Regulativ der Geschwindigkeit chemischer Prozesse und von VOC-Emissionen). Mangels spektraler Meßreihen über das zur Ozonbildung wichtige UV-B kann nur auf die Sonnenscheindauer als grobes Maß zurückgegriffen werden.
- Horizontaler Transport von Ozon und Vorläufersubstanzen sind eine Funktion großräumiger Windfelder (Wetterlagen) und lokal (Orographie) beeinflusster Windsysteme.
- Beim vertikalen Transport von Ozon und Vorläufersubstanzen sind zwei Prozesse wichtig:
 1. Die konvektive Durchmischung der Troposphäre ist eine Funktion des vertikalen Temperaturprofils und der Temperatur am Erdboden (sowohl vertikale Verdünnung bodennahen Ozons als auch Einmischen von höheren Ozonkonzentrationen aus der Reservoirschicht treten auf).
 2. Die dynamische Durchmischung der Troposphäre ist eine Funktion der großräumigen Zirkulation (Wetterlage, Frontensysteme). Sowohl Luftmassenaustausch als auch plötzliches Einmischen von Ozon aus der Reservoirschicht vor einer Frontpassage werden hierdurch gesteuert.

Schon diese kompakte Darstellung der durch meteorologische Bedingungen geprägten Prozesse zeigt die Abhängigkeit der kausalen Zusammenhänge zwischen der Emission der Vorläufersubstanzen und der Bildung bzw. Konzentration des Ozons von der zeitlichen und räumlichen Variabilität der Wetterbedingungen. Vier Datentypen und daraus abgeleitete Größen werden zur Wetterbereinigung verwendet, die die wesentlichen Einflüsse auf die Bildung und den Transport von Ozon beschreiben sollen:

- Auf- und Abbau troposphärischen Ozons, wozu Beobachtungen der nächstliegenden Klimastation verwendet werden,
- horizontaler Transport von Ozon und Vorläufersubstanzen unter Berücksichtigung von Wetterlagen und lokalem Wind (Enke und Spekat 1997),
- vertikaler Transport von Ozon und Vorläufersubstanzen,
- zur Beschreibung der konvektiven Durchmischung wurden aus Radiosondenaufstiegen abgeleitete Parameter verwendet, die die vertikale Stabilität der Atmosphäre beschreiben (Inversionshöhe, Energie zur Inversionsauflösung, Höhe der Durchmischungsschicht, Auslösetemperatur, Kondensationsniveau, Wolkenobergrenze bei Erreichen der Auslösetemperatur, Wolkenobergrenze bei Erreichen des Tagesmaximums der Temperatur),
- zur Beschreibung der dynamischen Durchmischung wurden Wetterlagen herangezogen,
- die Trägheit des Systems wird durch die Andauer der Wetterlagen und durch die Persistenz beschrieben.

Zur Wetterbereinigung der täglichen Ozonmaxima wird unter Einsatz eines stationsspezifischen Datensatzes potentieller Prediktoren ein erwartungstreu, multiples Regressionsverfahren zur Selektion stationsspezifischer Regressionsgleichungen angewandt, wie oben beschrieben (Enke 1988).

Es zeigt sich das bekannte Phänomen, daß das Temperaturregime die höchste Korrelation aufweist, aber auch die aus Radiosondenaufstiegen abgeleiteten Stabilitätsparameter einen nicht unerheblichen Beitrag zur Wetterbereinigung leisten. Nicht überraschend ist auch der inverse Zusammenhang zwischen Sonnenscheindauer, Niederschlag, Bewölkung und Windgeschwindigkeit. Es fällt auf, daß die verkehrsnahen Stationen eine stärkere Sensibilität gegenüber der Windrichtung haben als die übrigen Stationskategorien.

In Tab. 6-1 sind die über alle Stationen gemittelten Ergebnisse sowie untergliedert nach Stationskategorien wiedergegeben. Die über alle Stationen gemittelte Wetterbereinigung führt zu einer Varianzreduktion bzw. zu einem auf meteorologische Einflüsse zurückzuführenden Erklärungsanteil von fast 50% gegenüber der mittleren Varianz der täglichen Ozonmaxima. Sie ist etwas höher bei verkehrsnahen Stationen und vergleichsweise niedrig bei Bergstationen.

	Stationstypen				
	alle (167)	verkehrsnah	Stadt	Land	Berge
Mittlere Streuung der Meßreihen	32 µg/m³	33 µg/m³	31 µg/m³	30 µg/m³	28 µg/m³
Streuung nach Wetterbereinigung	22 µg/m³	23 µg/m³	22 µg/m³	22 µg/m³	23 µg/m³
Varianzreduktion	49,5 %	50,4 %	49,0 %	47,6 %	42,3 %
Anzahl der Stationen	167	40	94	28	5

Tab. 6-1: Stationstypenspezifische Ergebnisse der Wetterbereinigung

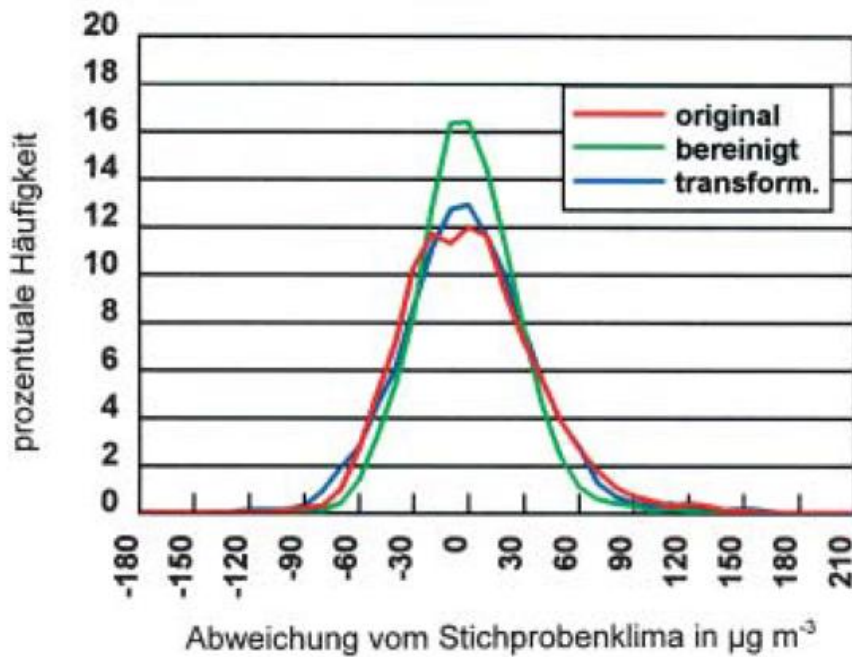


Abb. 6-8:

Häufigkeitsverteilung der beobachteten Tagesmaxima (original), der wetterbereinigten Reihe (bereinigt) und der rückwärtstransformierten Reihe (transform) am Beispiel der Station Rastatt.

Will man Trendaussagen bezüglich unterschiedlicher Schwellenwerte erhalten, so wird eine Angleichung der wetterbereinigten Häufigkeitsverteilung (grün) an die Verteilung der Ausgangsreihe (rot) erforderlich. Die Häufigkeitsverteilung der angeglichenen Reihe ist blau dargestellt.

Auf den ersten Blick erscheint eine Varianzreduktion von etwa 50% (bzw. 60% bei Einbeziehung der Wetterlagen) relativ gering. Stellt man jedoch in Rechnung, daß Meßungenauigkeiten mit etwa 6% für das Zeitintervall 1990/97 zu Buche schlagen und die Variabilität der Vorläufersubstanzen zur Ozonbildung bzw. -auflösung schätzungsweise einen Beitrag von etwa 25% leisten, so erscheint die verbleibende Unbestimmtheit durchaus vertretbar. Die Restvarianz kann mit dieser Methodik nicht vollständig beschrieben und interpretiert werden.

8 Ableitung von Trends der täglichen Ozonmaxima

Aus den wetterbereinigten Datenreihen lassen sich die gewünschten Trendaussagen nur teilweise gewinnen. Während Aussagen über den mittleren Trend problemlos möglich sind, lassen sich wichtige Aussagen über Trends für Überschreitungshäufigkeiten unterschiedlicher Schwellenwerte so nicht gewinnen. Denn mit der Wetterbereinigung sind die täglichen Ozonwerte infolge der Vereinheitlichung der meteorologischen Bedingungen verändert worden. Dies wird anhand der Gegenüberstellung der originären und wetterbereinigten Daten am Beispiel von Rastatt in Abb. 6-8 deutlich.

Prinzipiell wäre es möglich, die Trenduntersuchungen an das Spektrum der wetterbereinigten Ozonschwellenwerte anzupassen. Da dies jedoch erhebliche Schwierigkeiten bei der Interpretation der Ergebnisse nach sich zieht, wird die wetterbereinigte Häufigkeitsverteilung an die ursprüngliche Häufigkeitsverteilung angepaßt. Abb. 6-8 zeigt für Rastatt die Originalhäufigkeitsverteilung der Abweichungen der täglichen Ozonmaxima vom mittleren (klimatischen) Ozonmaximum Klimawert (rot), die auf einheitliche meteorologische

Bedingungen umgerechnete Häufigkeitsverteilung (grün) und die transformierte Reihe (blau). Für den letzteren Schritt wurde aus dem Verhältnis der Originalstreuung zur wetterbereinigten Streuung ein Quotient berechnet und die wetterbereinigte Meßreihe damit multipliziert. Zum exakten Vergleich der Trends für unterschiedliche Schwellenwerte wurde dieser Faktorschwellenwertspezifisch berechnet. Nach der Normierung stimmen die Verteilungen zwischen Originalreihe und wetterbereinigter Reihe auch in den Flanken der Häufigkeitsverteilungen nahezu überein. Erst durch die Übereinstimmung der Häufigkeitsverteilungen wird ein Vergleich mit nicht wetterbereinigten Reihen möglich. Im Ergebnis der Normierung verzeichnet man als Mittel über den gesamten Untersuchungszeitraum zwar eine vergleichbare Häufigkeitsverteilung, wie die der Originalreihe, die zeitliche Abfolge der Extremwerte hat sich jedoch geändert. Dies liegt natürlich in voller Absicht: Die extremen Ozonmaxima werden mit diesem Verfahren über das Zeitintervall 1990 bis 1997 so verteilt, als hätte in all den Jahren ein ‚Einheitswetter‘ geherrscht, wodurch sich Auswirkungen zeitlicher Veränderungen bei den Emissionen (sog. Vorläufersubstanzen) nun erkennen lassen.

Nach der Renormierung der Reihen und Aufprägung des stationsspezifischen Jahresganges auf die täglichen Ozonmaxima werden nun für 25 Schwellenwerte von $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beginnend bis $280 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in Schritten von $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ für alle 167 Stationen die linearen Trends berechnet. Die Signifikanz der erhaltenen Trends wird mittels F-Test unter Berücksichtigung der Autokorrelation der Zeitreihen für 5% und 1% Irrtumswahrscheinlichkeit bestimmt.

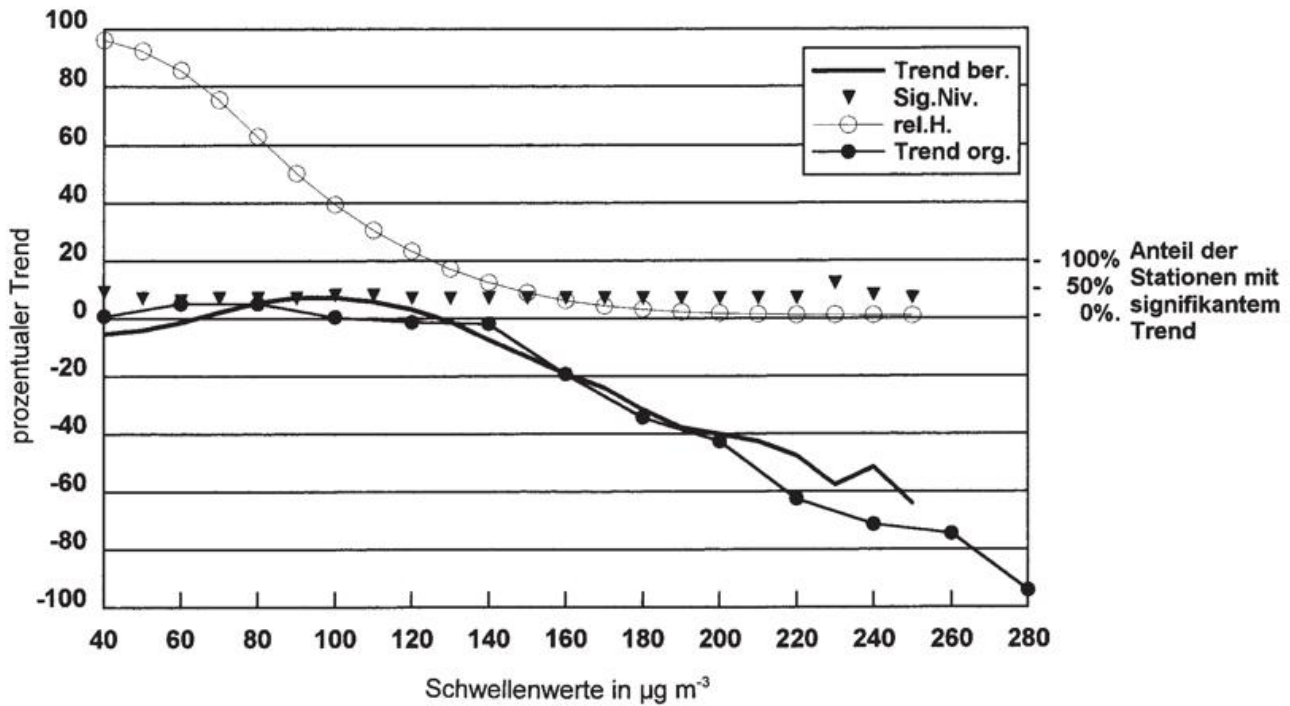


Abb. 6-9: Prozentualer Trend der Überschreitungshäufigkeit bei vorgegebenen Schwellenwerten zwischen 40 und 280 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ im Zeitraum zwischen 1990 und 1997 als Mittel über 167 Meßreihen. Die mit ‚Trend org.‘ bezeichnete Kurve zeigt die prozentuale Änderung der Überschreitungshäufigkeit der Ausgangsreihen im betrachteten Zeitraum und die mit ‚Trend ber.‘ bezeichnete Reihe den der wetterbereinigten Reihe. Die mit ‚rel.H.‘ bezeichnete Kurve gibt die relative Häufigkeit der Überschreitung vorgegebener Schwellenwerte an. ‚Sig. Niv.‘ zeigt den prozentualen Anteil der Stationen, die einen signifikanten Trend mit mindestens 5% Irrtumswahrscheinlichkeit aufweisen. Es zeigt sich, daß bei mittleren Ozonkonzentrationen ein leichter Anstieg zu verzeichnen ist. Die hohen Ozonkonzentrationen haben hingegen im Zeitraum 1990/97 deutlich abgenommen, dies gilt sowohl für die wetterbereinigten als auch für die nicht wetterbereinigten Daten. Die Wetterbereinigung kommt erst bei relativ hohen Schwellenwerten stärker zur Geltung.

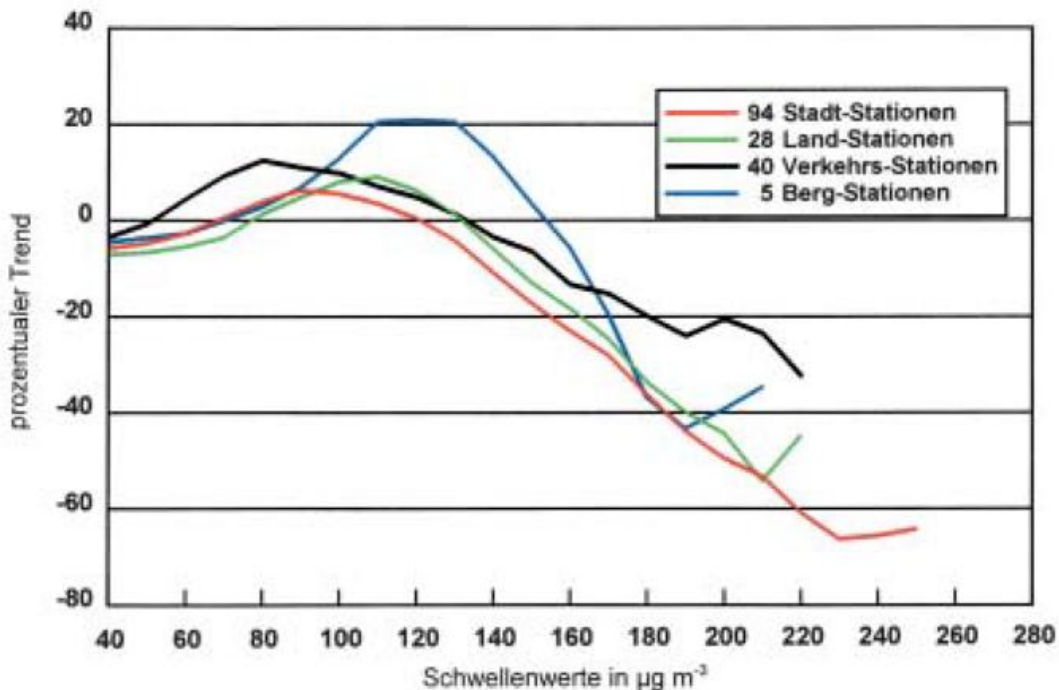


Abb. 6-10: Trends der Überschreitungshäufigkeiten bei vorgegebenen Schwellenwerten für 4 Stationskategorien. Über alle Stationstypen hinweg ist eine Abnahme der Überschreitungshäufigkeit bei hohen Schwellenwerten deutlich sichtbar. Diese ist am stärksten bei der Kategorie Stadt-Stationen. In den Bereichen mittlerer Konzentration ist besonders bei Bergstationen eine deutliche Zunahme zu beobachten. Dies veranschaulicht, daß die maximale Ozonbildung bei Photo Smog erst in einiger Entfernung von den Quellen der Vorläufergase erreicht wird.

9 Ergebnisse zur Trenduntersuchung infolge von Emissionsänderungen

Untersucht man im ersten Schritt den linearen Trend der Überschreitungen der täglichen Maxima eines Schwellenwertes von $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$, kann dies in guter Näherung mit dem Trend der mittleren täglichen Ozonmaxima gleichgesetzt werden (Überschreitungshäufigkeit als Mittel über alle 167 Stationen beträgt 51%), so ergibt sich im Mittel eine Zunahme um 5% im Zeitraum von 1990 bis 1997, wobei 48% der Stationen einen signifikanten Trend mit mindestens 5% Irrtumswahrscheinlichkeit aufweisen. Betrachtet man die Ergebnisse aufgeschlüsselt nach Stationstypen, so fallen die Ergebnisse differenzierter aus. Den stärksten Anstieg verzeichnen die verkehrsnahen Stationen mit 9%, hingegen wird bei den Stadt- und Landstationen nur ein Anstieg um 4% beobachtet. Ungefähr die Hälfte der Stationen weisen einen signifikanten Trend auf. Bei den Bergstationen hingegen ergibt sich nur bei einer Station ein signifikanter Trend. Eine allmähliche Zunahme der mittleren Ozonkonzentration aufgrund anthropogener Tätigkeit ist also nach der Wetterbereinigung unverkennbar. Bei dieser Betrachtung bleibt offen, welche Quellen dafür verantwortlich und wie sie räumlich verteilt sind. Wegen der Zunahme des Kfz-Verkehrs ist es naheliegend, hierin eine Ursache zu vermuten.

In der Abb. 6-9 sind die prozentualen Änderungen der Überschreitungshäufigkeiten zwischen den Jahren 1990 und 1997, bezeichnet als ‚Trend‘, für Schwellenwerte zwischen 40 und $280 \mu\text{g}/\text{m}^3$ als fette ausgezogene Linie dargestellt.

Die als ‚rel.H.‘ bezeichnete Kurve gibt die Überschreitungshäufigkeit in Prozent für einen gegebenen Schwellenwert an, d.h. in wieviel Prozent der Tage dieser Schwellenwert überschritten wird.

Die Symbole (▼) weisen den prozentualen Anteil der Stationen mit signifikantem Trend (Irrtumswahrscheinlichkeit 5%) aus. Wie ersichtlich ist, nehmen die Überschreitungshäufigkeiten mit zunehmenden Schwellenwerten rasch ab. Daraus folgt unmittelbar, daß Trendaussagen bezüglich höherer Schwellenwerte zunehmend unsicherer werden.

Man erkennt, daß im Untersuchungszeitraum Konzentrationen im Bereich $60 - 120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (30-60 ppb) häufiger geworden sind, Konzentrationen $< 60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $> 130 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wurden seltener. Es ist bemerkenswert, daß die wetterbereinigte Trendkurve nur für hohe Konzentrationen zur Originalkurve parallel geht, nicht aber im Bereich $< 150 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Eine noch etwas differenziertere Aussage ergibt eine gleichartige Analyse für die verschiedenen Stationstypen: verkehrsnah, Stadt, Land, Berge (Abb. 6-10). Es ist weiterhin bemerkenswert, daß die quellfernen Gebiete Land und Berge die stärksten Trends im mittleren Konzentrationsbereich aufweisen. Dies ist insofern plausibel, als die photosmogträchtigen Vorläufergase einige Stunden zum Abreagieren benötigen und die höch-

sten Ozonmaxima daher in einiger Entfernung im Lee von den Quellgebieten angetroffen werden.

Insgesamt lassen sich folgende Aussagen gewinnen:

- Für den vorgegebenen Schwellenwert von $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ergibt sich nach der Wetterbereinigung für den Zeitraum 1990 bis 1997 eine Abnahme von:
 - ▶ 28% über alle 167 in die Untersuchungen einbezogenen Stationen gemittelt,
 - ▶ 18% über 40 Verkehrs-Stationen gemittelt,
 - ▶ 35% über 94 Stadt-Stationen gemittelt,
 - ▶ 32% über 28 Land-Stationen gemittelt und
 - ▶ 28% über 5 Berg-Stationen gemittelt.
- Mit steigenden Schwellenwerten ist eine stärker werdende Abnahme der Überschreitungshäufigkeit der Ozonmaxima zu verzeichnen. Dies bedeutet, daß sowohl im Mittel über alle Stationen als auch bei der Mittelbildung über die einzelnen Stationskategorien die Häufigkeit hoher Ozonwerte deutlich abgenommen hat. Diese Aussage gilt für wetterbereinigte und nicht wetterbereinigte Meßreihen.
- Bei Bergstationen treten Ozonmaxima $> 220 \mu\text{g}/\text{m}^3$ praktisch nicht auf, die Zunahme der Überschreitungshäufigkeit von Schwellenwerten zwischen $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und $140 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ist hier am größten.
- Bei verkehrsnahen Stationen ist die Abnahme der Überschreitungshäufigkeit zu höheren Schwellenwerten hin deutlich geringer als bei den übrigen Stationstypen.
- Die mittlere Ozonbelastung, hier repräsentiert durch Schwellenwerte zwischen 80 und $120 \mu\text{g}/\text{m}^3$, nimmt bei allen Stationstypen leicht zu, am stärksten bei Berg-Stationen, am geringsten bei Stadt-Stationen.
- Der Vergleich mit der nicht wetterbereinigten Trendkurve zeigt, daß die Wetterbereinigung erst bei höheren Schwellenwerten eine größere Wirkung hat. Dies steht in guter Übereinstimmung mit der Erfahrung, daß Episoden mit extremer Ozonbelastung durch das Wetter besonders stark geprägt sind

Insgesamt hat das Verfahren gezeigt, daß eine näherungsweise Trennung von meteorologischen und anthropogenen Einflüssen beim Photosmog möglich und notwendig ist, um die in vorhandenen Meßreihen des Ozons sich überlagernden Trends sichtbar zu machen und zu bewerten. So hat z.B. eine anthropogen bedingte Zunahme von Ozonkonzentrationen im Bereich $60 - 120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ stattgefunden, aber gleichzeitig sind für Photosmog günstige Wetterlagen im Zeitraum 1990-1997 seltener geworden.

Literatur

- DE BOER, R.J., J. LELIEVELD, 1986: Aircraft measurements in ozone research. Poster Ozone Conf. Vereniging Lucht.
- FEISTER, U., W. WARMBT, 1987: Long-term measurements of surface ozone in the German Democratic Republic. *J. Atmos. Chem.* 5: 1-21.
- EHHALT, D., 1999: Gas phase chemistry of the troposphere. In: R. Zellner, *Global aspects of atmospheric chemistry*, Springer, Steinkopf, S. 94 ff.
- EHMERT, A., 1952: Gleichzeitige Messungen des Ozongehaltes erdnaheer Luft an mehreren Stationen mit einem einfachen Verfahren. *J. Atmos. Terrest. Phys.* 2: 189-195.
- ENKE, W., 1986: Ein Verfahren zur Aufstellung statistischer Prognose-Algorithmien als Einheit von Cluster-, Diskriminanz- und Regressionsanalyse. *Z. f. Meteorologie*, 36, 117-122.
- ENKE, W., 1988: Ein erwartungstreues lineares Selbstorganisationsmodell. *Z. f. Meteorol.*, 38, 308-314.
- ENKE, W., A. SPEKAT, 1997: Downscaling climate model outputs into local and regional weather elements by classification and regression. *Climate Research*, 8, 195-207.
- ENKE, W., 1999: Analyse historischer Datenreihen und Entwicklung einer Methode zur quasi-wetterbereinigten Trendanalyse von bodennahem Ozon; 1. Etappe: Trendanalyse der täglichen Ozonmaxima der Jahre 1990 bis 1997. Zwischenbericht zum Forschungsvorhaben 297 42 848 des Umweltbundesamtes Berlin. 31 S.
- KLEY, D., 1997: Tropospheric Chemistry and Transport. *Science*, 276, 1043-1044.
- LAUSCHER, F., 1984: Ozonbeobachtungen in Wien von 1853-1981. Zusammenhänge zwischen Ozon und Wetterlagen. *Arb. der Zentralanstalt für Meteorologie und Geodynamik*, 60, Publ. 284.
- OBERMEIER, A., R. FRIEDRICH, C. JOHN, J. SEIER, H. VOGEL, F. FIEDLER, B. VOGEL, 1995: Photosmog: Möglichkeiten und Strategien zur Verminderung des bodennahen Ozons. Ecomed-Verlag, Landsberg, 184 S.
- PERLWITZ, J., H.-F. GRAF, 1995: The statistical connection between tropospheric and stratospheric circulation of the Northern hemisphere in winter. *J. Clim.* 8: 2281-2295.
- REITER, E.R., 1975: Stratospheric-tropospheric exchange processes. *Rev. Geophys. Space Phys.* 13: 459-474.
- STOHL, A., T. TRICKL, 1999: A textbook example of long-range transport: Simultaneous observation of ozone maxima of stratospheric and North American origin in the free troposphere over Europe. *J. Geophys. Res.* 104: 30,445-30,452.
- VOLZ, A., D. KLEY, 1988: Evaluation of the Montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century. *Nature* 332: 240-242.
- WMO, 1991: Scientific assessment of ozone depletion: 1991. Report No. 25, Genf.

7 Feldexperimente zur Untersuchung von Photosmog-episoden (z.B. TRACT, BERLIOZ, POPCORN)

1 Allgemeine Vorbemerkung

Wissenschaftliche Ergebnisse erfordern in der Regel die Bestätigung durch experimentelle Nachprüfungen. Dies wird umso wichtiger, wenn es sich wie beim Problem des Photosmogs um Vorgänge mit zahlreichen Wechselwirkungen zwischen einzelnen Prozessen handelt. Die Nachbildung der Natur in Modellen beinhaltet zahlreiche Vereinfachungen. Schwierige Abläufe werden in stark reduzierter Komplexität in Form von Parametrisierungen in die Gesamtschau eingebracht. In diesem Zusammenhang ist zu beobachten, daß viele Messungen zwar durchgeführt werden, die für einen mehr qualitativen Anwendungsbereich ausreichend und genau genug erscheinen mögen, für den weitergehenden Bereich einer quantitativen Bereitstellung von Vorgängen, insbesondere zur Überprüfung der Güte eines Modells, jedoch nicht als adäquat angesehen werden können.

Bevor auf einige Feldexperimente zur Untersuchung des Photosmogs, die in den letzten Jahren durchgeführt worden sind, eingegangen wird, sollen zunächst einige Ausgangssituationen für Messungen angeführt werden, die helfen, die verschiedenen Typen von Meßprogrammen leichter einordnen zu können.

2 Konzeptionelle Ansätze bei Messungen

2.1 Messungen zur Ermittlung der Phänomenologie

Sofern noch fast nichts über eine physikalische oder chemische Größe bekannt ist, wählt man in der Regel ein geeignet erscheinendes Meßgerät, um damit eine erste Übersicht über die Größenordnung der Werte, mit denen die Größe auftritt, zu erhalten. Darüber hinaus bestimmt man ihr zeitliches und räumliches Verhalten. Hierzu zählen beispielsweise die Messungen der Temperatur, die zur Entdeckung der Tropopause am Beginn des 20. Jahrhunderts oder die zur Ermittlung der vertikalen Verteilung von Ozon geführt haben. Auch heute ist es noch erforderlich, besonders für einzelne chemische Substanzen, die nur in geringen Spuren in der Atmosphäre auftreten, solche grundlegenden Messungen durchzuführen.

2.2 Langzeitmessungen für einzelne Größen

Eng verwandt mit der Bestimmung der Phänomenologie einzelner Größen sind die Langzeitmessungen, die insbesondere langfristige Trends offen legen sollen. Hierbei besteht vor allem das Problem, stets einen ho-

hen Standard der Meßgenauigkeit einzuhalten, so daß nicht die Meßfehler einen zu erwartenden geringen Trend im Laufe der Zeit vollkommen überdecken. Die vorhandenen Klimadaten machen insbesondere deutlich, wie wenig Verständnis oft der Forderung auf Langzeitkontinuität des Meßstandorts oder des Meßgeräteeinsatzes entgegengebracht wird. Die gegenwärtige Reduzierung von Forschungsobservatorien, zu deren ureigentlichen Aufgaben die Messung der langzeitigen Veränderungen der Atmosphäre gehört, ist hierfür ein deutlicher Hinweis. Dabei sind gerade auch zukünftige Generationen auf sorgfältige und möglichst vielfältige Messungen zur Beurteilung des atmosphärischen Zustands und dessen Änderungen angewiesen.

2.3 Messungen zum Nachweis der Brauchbarkeit einer Meßmethode

Bevor ein Meßgerät für eine breitere Verwendung eingeführt werden kann, muß in der Regel zunächst nachgewiesen werden, daß die verwendete Meßmethode für den vorgesehenen Zweck geeignet ist. Vor allem moderne Fernerkundungsverfahren, die mit dem Einsatz von Lasern und anderen Signalgebern für ein breiteres Spektrum von Variablen eine gleichzeitige Erfassung anstreben, erfordern häufig eine lange und aufwendige Entwicklungsphase.

2.4 Messungen zur Untersuchung von einzelnen Prozessen

Bei der sinnvollen experimentellen Bestimmung eines Prozesses, seiner Entstehung, seines Lebenszyklusses und seiner räumlichen Ausdehnung ist bereits einiges an phänomenologischem Wissen vonnöten, um die Meßstrategie geeignet festzulegen. Bei vielen atmosphärischen Prozessen, wie der Entstehung einer einzelnen Konvektionszelle oder eines mächtigen Gewitters, der Umwandlung von Wolkentropfen zu Niederschlagstropfen innerhalb der Wolken oder der Umwandlung von einigen ausgewählten Ausgangssubstanzen in beobachtbare Folgeprodukte erfordern eine meßtechnische Abdeckung eines Gebietes, das beträchtliche Dimensionen aufweist. Ähnliches gilt für die zeitliche Entwicklung. Entscheidend ist jedoch immer, die Meßgeräte so einzusetzen, daß damit der Prozeß in seiner räumlichen Struktur und in seinem zeitlichen Verhalten hinreichend gut aufgedeckt werden kann. Dazu gehört bereits ein gutes phänomenologisches Wissen, um den Ablauf des Prozesses durch Messungen dann in einer geeigneten Meßstrategie quantitativ und mit hinreichender Genauigkeit belegen zu können.

2.5 Messungen zur Erarbeitung einer Parametrisierung

Das am häufigsten genannte Ziel von Messungen ist gegenwärtig die Verbesserung oder die Erarbeitung einer neuen Parametrisierung für einen Vorgang. Bei einer Parametrisierung handelt es sich in der Regel um die Beschreibung eines komplexen Vorgangs, wie beispielsweise turbulente Flüsse von Größen, die durch leichter meßbare Größen ausgedrückt werden.

Die Beziehung zwischen den turbulenten Flüssen und den Gradienten der gemittelten Größen erfordert zusätzliche Koeffizienten (phänomenologische Koeffizienten), wie beispielsweise den Diffusionskoeffizienten, die nur durch das Experiment quantifiziert werden können. In die Formulierung eines Parametrisierungsansatzes gehen stets zahlreiche Größen ein, die häufig zu dimensionslosen Gruppen zusammengefaßt werden. Entscheidend für die Meßaufgabe zur „Verbesserung“ oder „Erarbeitung einer Parametrisierung“ ist immer, daß der Parametrisierungsansatz bereits formuliert sein muß; denn nur so kann erkannt und sichergestellt werden, daß während der Messung alle wichtigen Größen auch tatsächlich gemessen werden. Ansonsten kommt es vor – wie viele Messungen der Vergangenheit belegen –, daß die nachträgliche Formulierung des Parametrisierungsansatzes den vorher gemessenen Datensatz unbrauchbar werden läßt, weil entscheidende Größen nicht mitgemessen worden sind. Insofern bleiben viele experimentelle Untersuchungen im Vorfeld der reinen Phänomenologie (entsprechend dem Abschnitt 2.1) hängen und verfehlen das Ziel, für eine neue oder verbesserte Parametrisierung dienlich zu sein.

2.6 Messungen zur Bestimmung eines Budgets (Massenhaushalt)

Diese Aufgabe erfordert stets einen hohen Aufwand an personellen und technischen Ressourcen, die meist nur schwer zu erreichen sind. Andererseits wird die Aufgabe dadurch erleichtert, als die bekannten Gleichungen für den Impuls-, Energie-, Feuchtehaushalt und die Haushalte der Partialmassen geeignete Vorschriften liefern, was alles gemessen werden muß. Betrachtet man den Massenhaushalt von Ozon z.B. während einer Photosmogsituation in einem endlichen Gebiet, so legen die Transporte durch die Berandungsflächen und die Änderungen im Inneren des Gebiets den Massenhaushalt fest. Das Erfassen des Ein- und Ausströmens der Substanz bedingt eine hinreichend große Dichte der Meßpunkte, damit bei der in der Atmosphäre gegebenen Variabilität aller Größen eine hinreichende Genauigkeit erreicht werden kann. Ebenso aufwendig ist die Bestimmung der Akkumulation oder Abnahme einer Substanz im Inneren des Gebiets. Bei gegebener Variabilität der Substanz ist ein geeignetes Stichprobenverfahren für die Schätzung (im statistischen Sinne) festzulegen, das eine hinreichende Genauigkeit sicherstellt. Bei weit ausgedehnten Gebieten in der Größenord-

nung von einigen hundert Kilometern in der Horizontalen und von wenigen Kilometern in der Vertikalen ist dies eine Forderung, die bei bisherigen Feldexperimenten fast immer aufgrund fehlender Ressourcen am unteren Ende des gerade noch erträglichen Vereinfachungsgrades gehandhabt worden ist. Noch schwieriger, als es für die physikalischen Zustandsvariablen wie Wind, Temperatur und Druck der Fall ist, gestaltet sich die Kontrolle der chemischen Variablen, das heißt der Konzentrationen einzelner Substanzen. Diese bestimmen den Beitrag der chemischen Reaktionen zum Massenhaushalt. Es ist jedoch einsichtig, daß die Meßaufgabe zur Bestimmung des Massenhaushalts eine vollkommen andere Meßstrategie erforderlich macht als diejenige, die man bei einer Prozeßstudie vorgeben muß.

2.7 Messungen zur Ermittlung eines Datensatzes zur Verifizierung eines Modells

Modellrechnungen werden häufig so lange mit gewissen kritischen Anmerkungen versehen, bis anhand von einer genügenden Zahl von Vergleichsstudien nachgewiesen worden ist, daß Modellrechnung und Beobachtung eine befriedigende Übereinstimmung aufweisen. Dabei ist, wie im Kapitel 9 noch dargelegt wird, auch deutlich zwischen der Güte des Modells selbst und der Genauigkeit oder sogar der Verfügbarkeit von Rand- und Anfangsbedingungen zu unterscheiden.

Da für die Vergleiche der Modellrechnungen mit den Messungen in erster Linie vertikale Profile an einzelnen Punkten sowie Horizontalschnitte oder Vertikalschnitte in verschiedenen Ebenen herangezogen werden, ist durch die Messungen zu garantieren, daß eine genügend dichte Belegung mit Meßpunkten vorhanden ist. Dabei ist die Konsistenz eines Modellergebnisses am besten zu veranschaulichen, wenn möglichst viele Größen an den gleichen Punkten ermittelt werden können.

2.8 Auslegung gegenwärtiger Feldmessungen

Betrachtet man viele Feldexperimente im Lichte dieser Unterscheidung von typischen Meßaufgaben, so wird sichtbar, daß in den meisten Fällen eine Mischung von diesen unterschiedlichen Vorgaben gewählt wird. Die Meßaufgaben erfordern jeweils weit unterschiedliche Meßstrategien. So wird beispielsweise der Einsatz von Meßflugzeugen bei einer Prozeßstudie ganz auf einen einzelnen Prozeß (z.B. eine Konvektionszelle) fixiert werden müssen, während er bei einer Budgetstudie losgelöst vom Einzelvorgang auf die Größen (vor allem Flüsse) am Rand des Gebietes und auf die Verteilung der zu budgetierenden Variablen im Innern des Gebietes ausgerichtet werden muß.

Im folgenden werden drei größere Feldexperimente aus der jüngsten Vergangenheit kurz beschrieben, nämlich das TRACT-Experiment (TRACT = **T**ransport of **A**ir **P**ollutants over **C**omplex **T**errain), das BERLIOZ-

Experiment (BERLIOZ = **B**erliner **O**zon-Experiment) und das Experiment POPCORN (POPCORN = **P**hoto-**O**xidant **F**ormation by **P**lant Emitted **C**ompounds and **O**H Radicals in **N**orth-**E**astern Germany). Alle drei Experimente wurden unter Beteiligung einer größeren Zahl von Arbeitsgruppen durchgeführt.

Bei dem Experiment TRACT (Fiedler 1989, Fiedler 1992, Fiedler und Borrell 2000, Zimmermann 1995) handelt es sich um ein Meßprogramm, bei dem die Untersuchung von Transport- und Vermischungsvorgängen über bergigem Gelände im Vordergrund des Interesses standen. Bei dem BERLIOZ-Experiment (Becker 1999, 2000) lag das Schwergewicht auf den in der Abluftfahne von Berlin ablaufenden chemischen Prozessen. Beim Experiment POPCORN (Plaß-Dülmer et al. 1998) galt das Hauptinteresse den biogenen Emissionen einerseits und den OH-Radikalen als einem der Hauptmotoren der photochemischen Prozesse in der Atmosphäre andererseits.

3 Das Feldexperiment TRACT

Die Substanzen, die aus den Quellen der Industrie, dem Verkehr, dem Hausbrand oder aus anderen weit verbreiteten Einzelquellen, wie bei der Verarbeitung von Lacken und anderen derartigen Stoffen, stammen, werden zunächst innerhalb der atmosphärischen Grenzschicht transportiert und durch Turbulenz intensiv vermischt. Das gleiche gilt auch für die Substanzen, die aus den biogenen Quellen, aus den Pflanzen und dem Boden, freigesetzt werden. Da nicht alle Stoffe in homogener Verteilung in die Atmosphäre eingebracht werden, müssen sie zuerst hinreichend vermischt werden, bevor chemische Reaktionen zwischen den Substanzen einsetzen können.

Der überwiegende Anteil der Kontinente ist stark durch ein Geländere relief strukturiert. Dementsprechend ist auch die bodennahe Strömung und die für die Vermischung verantwortliche Turbulenz sehr vom Charakter des Geländes beeinflusst. Der Wind wird in Tälern und zum Teil bis in eine Höhe, die sogar über seitlichen Berandungen hinausreicht, kanalisiert, einzelne Berge bzw. Bergrücken werden teils über- und teils umströmt.

3.1 Ziele des TRACT – Experiments

Um den Aufbau und die räumliche Verteilung von Photosmogsituationen, wie sie beispielsweise im Gebiet des Oberrheingrabens relativ häufig auftreten, zu verstehen und schließlich auch mit Modellrechnungen nachzuvollziehen, ist das Experiment TRACT unter Beteiligung von zahlreichen Gruppen durchgeführt worden.

Als Ziele, die im Vordergrund standen, wurden die folgenden Punkte besonders in Angriff genommen:

- Die Erfassung der Grenzschichtstruktur über hügeligem Gelände im tageszeitlichen Zyklus.
- Die Beeinflussung der Strömung durch das vorgegebene Geländere relief in Form von Kanalisierung, Ausbildung von Nachlaufzonen im Lee der Berge und der Ausbildung von Sekundärzirkulationen (Berg-Talwinde, Wirbelbildung).
- Die Übergabe der chemischen Substanzen aus der Grenzschicht in die darüberliegende freie Atmosphäre.
- Die Erstellung eines möglichst vollständigen Datensatzes zur Überprüfung der Güte von Modellrechnungen.

Für das Feldexperiment TRACT wurde der südwestdeutsche Raum mit Teilen von Ostfrankreich und der Nordschweiz gewählt, als ein Gebiet, das hinsichtlich der auftretenden Geländehöhen als charakteristisch für Mitteleuropa angesehen werden kann. In der Abb. 7-1 wird die Orographie des Untersuchungsgebietes dargestellt. Er hat im wesentlichen eine Ausdehnung in West-Ost-Richtung von nahezu 300 km und in der Süd-Nordrichtung von etwa 375 km. Insgesamt gesehen entspricht die Gebietsgröße etwa dem Bereich, den die Luft während eines Tages durchströmt, so daß der Tagesgang der einzelnen Prozesse nachvollzogen werden kann. In das Gesamtgebiet wurde im Umfeld von Straßburg ein kleineres Gebiet eingelagert, in dem mit höherer Meßstationsdichte in einem Querschnitt durch den Oberrheingraben bis über den höchsten Berg des Nordschwarzwalds, der Hornisgrinde mit 1135 m, hinaus die

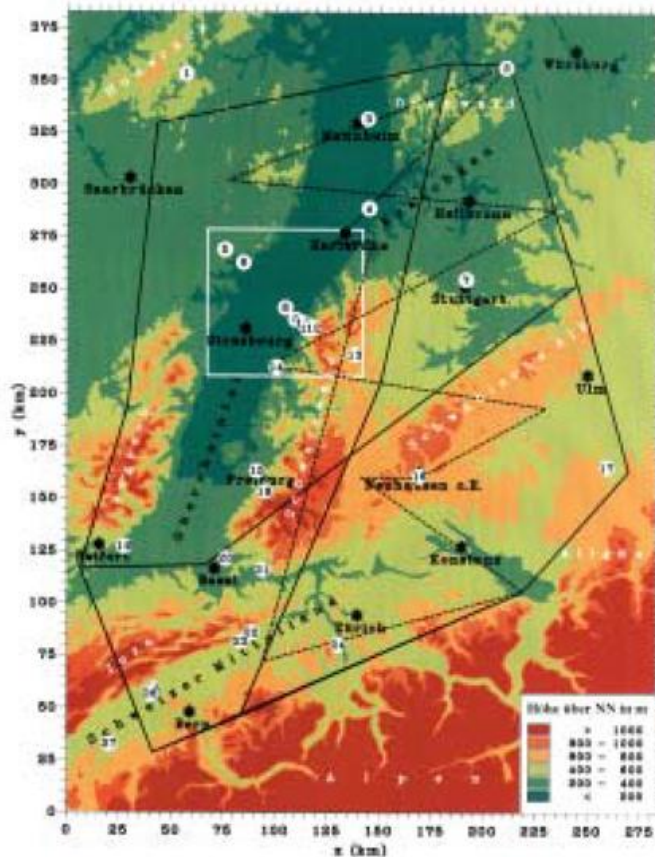


Abb. 7-1: Das Untersuchungsgebiet des Experiments TRACT.

Grenzschichtentwicklung und die damit zusammenhängende Verteilung der meteorologischen und von einigen luftchemischen Variablen erfaßt worden sind.

Bei diesem Experiment wurde besonders auch darauf hingearbeitet, daß die für Modellrechnungen notwendigen Daten beginnend mit den den Transport bestimmenden meteorologischen Größen, die räumliche und zeitliche Verteilung der bodennahen Konzentrationen der Stickoxide, von Ozon und einiger anderer Substanzen bis hin zu den Emissionen mit einer möglichst hohen Dichte ermittelt werden.

3.2 Durchführung des TRACT - Experiments

Das Experiment wurde in der Zeit vom 07.09.1992 bis zum 23.09.1992 durchgeführt (siehe Abb. 7-2).

Die ersten drei Tage waren auf die Überprüfung der Meßgenauigkeit der von verschiedenen beteiligten Gruppen eingesetzten Geräte ausgerichtet. Das TRACT-Experiment war eines der ersten Projekte, bei dem die beteiligten Meßsysteme einer Qualitätskontrolle nach fest vorgegebenen Regeln unterzogen worden sind (siehe dazu auch Kapitel 15). In dem gesamten Meßzeitraum, in dem etwa 400 Wissenschaftler im Gesamtgebiet versammelt waren, waren drei Intensivmeßphasen von 24 bzw. 36 Stunden Länge eingebettet. In diesen Intensivmeßphasen wurden in dreistündlichem Abstand (an einigen Stationen 6-stündlich) an 14 Radiosondenstationen Aufstiege durchgeführt. In noch kürzeren Zeitbereichen waren Flugzeugmessungen integriert. Beteiligt waren insgesamt zehn mit Meßinstrumenten bestückte Flugzeuge.

Das Experimentiergebiet wurde vor allem auch deshalb ausgewählt, da in ihm bereits durch operationelle

Meßnetze der Landesanstalten eine sehr gute Überdeckung mit Bodenstationen vorhanden ist. Aus diesen kontinuierlichen Messungen von einigen Größen, die über einen längeren Zeitraum vorliegen, wird eine Einordnung der Situation ermöglicht, die während des relativ kurzen Zeitraum des Experiments angetroffen wurde. Ergänzt wurden diese Messungen durch einige temporäre Bodenmeßstationen.

Das gesamte Meßprogramm wurde durch drei Ebenen aufgespannt (siehe Abb. 7-3):

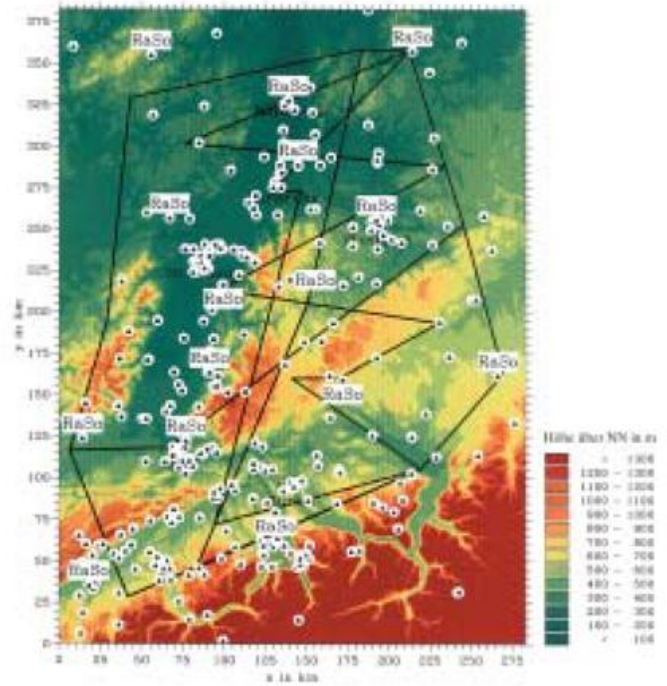


Abb. 7-3: Verteilung der Meßstationen und Angabe der Meßsysteme.

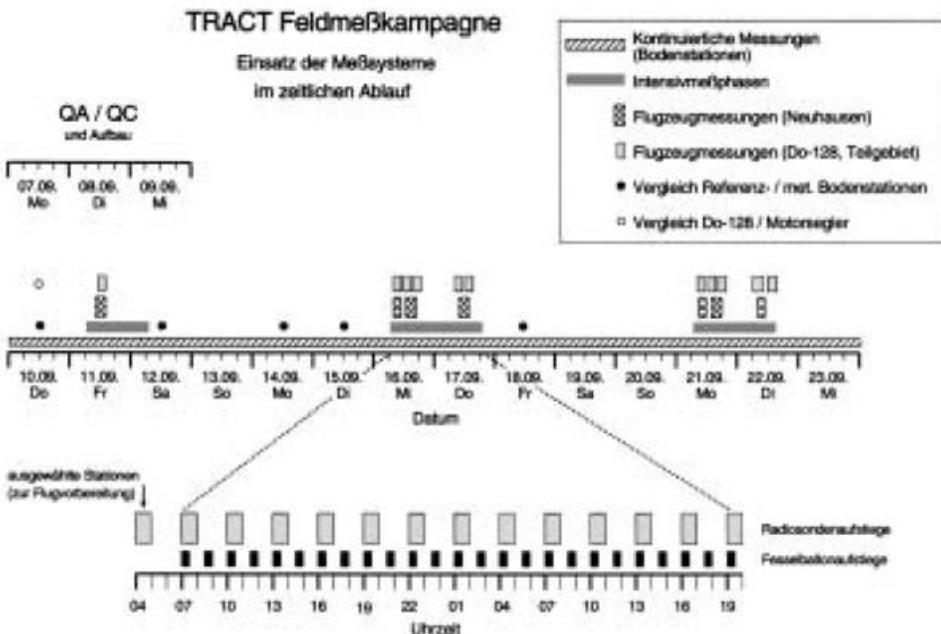


Abb. 7-2:

Zeitintervall für das TRACT-Experiment (07.-23.09.1992) und die in dieser Zeit eingesetzten Meßsysteme.

- durch kontinuierliche Messungen von meteorologischen und luftchemischen Größen, gespeist aus den operationellen meteorologischen und luftchemischen Meßnetzen sowie aus temporär eingerichteten Stationen,
- durch eine relativ dichte Verteilung von Vertikalsondierungen für die meteorologischen Variablen Wind, Temperatur, Feuchte und Druck (Radiosondennetz),
- durch Flugzeugmessungen vor allem für die Erfassung von luftchemischen Variablen teils in kontinuierlichen Registrierungen und teils durch häufige punktuelle Luftprobenahmen, wie z.B. für die Kohlenwasserstoffbestimmungen entlang der Flugtrassen innerhalb und oberhalb der Grenzschicht.

3.3 Ergebnisse

Am gemessenen Windfeld kann man zunächst am eindruckvollsten die Wirkung der Orographie erkennen. In Abb. 7-4 ist in Form von Windrosen die Strömungsstatistik für den gesamten Meßzeitraum dargestellt. Man erkennt besonders deutlich die Kanalisierung der Strömung entlang der Rheintalachse, aber auch entlang des Donautals und entlang des Südrandes der Schwäbischen Alb bis nach Ulm. Besonders eindrucksvoll kommt die Fernwirkung des nördlichen Schwarzwaldes und des Kraichgaus zutage. Die Umströmungseinflüsse des nördlichen Schwarzwaldkammes machen sich bis nach Stuttgart hin und sogar darüber hinaus bemerkbar.

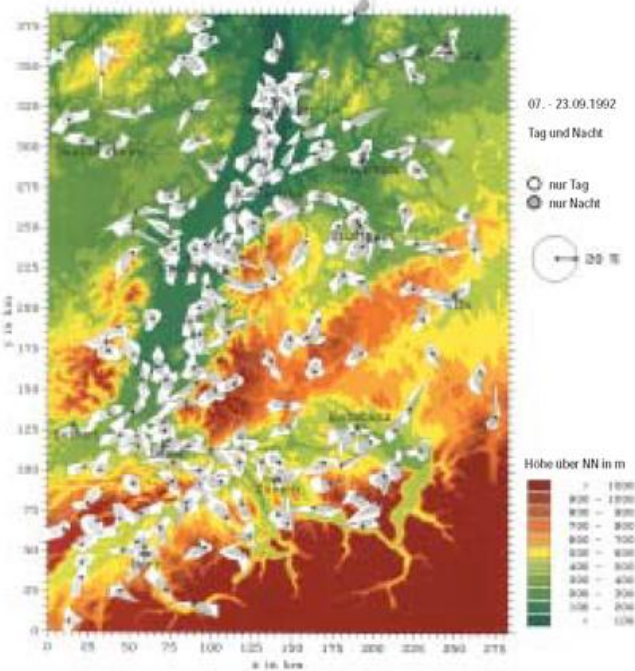


Abb. 7-4: Mittlere Strömungsbedingungen während TRACT anhand der Windrichtungshäufigkeiten (Windrosen).

Von besonderem Interesse für die Ausbildung des täglichen Ganges der Konzentration von verschiedenen Substanzen ist die Höhenentwicklung der Grenzschicht. Während die Grenzschichthöhe in den Morgenstunden relativ stark den Geländehöhen folgt, bildet sie sich in den Nachmittagstunden (siehe Abb. 7-5) mit ziemlich gleicher Höhenlage der Obergrenze aus, wobei der vertikale Abstand zum darunter liegenden Gelände von untergeordneter Bedeutung bleibt. Das bedeutet, der vertikale Vermischungsraum für chemische Substanzen ist starken horizontalen Variationen unterworfen, wodurch selbst bei gleicher horizontaler Quelldichte von Stoffen am Boden stärkere horizontale Gradienten der Konzentration in der Atmosphäre hervorgerufen werden.

Welche Dynamik in der Höhenverteilung durch die Grenzschichtstruktur der Vertikalverteilung der unterschiedlichen Variablen aufgeprägt wird, erkennt man anhand der gemessenen Profile in Abb. 7-6 in der die meteorologischen Variablen (links) Wind, potentielle

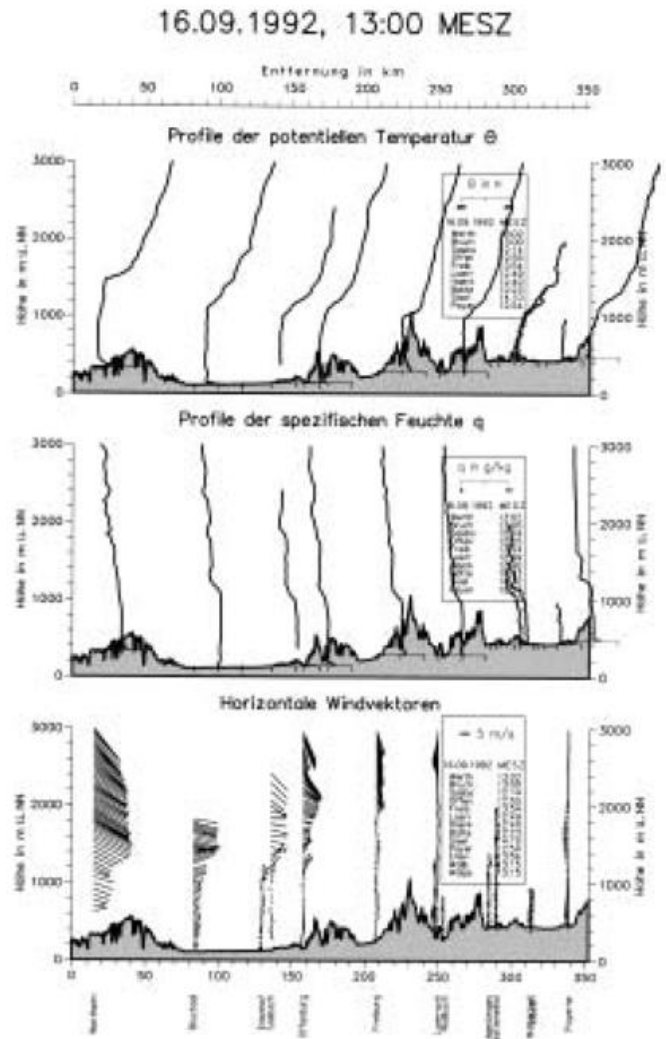


Abb. 7-5: Grenzschichthöhe in einem Vertikalschnitt von Wertheim über den Rheingraben bis nach Payerne(Schweiz).

Temperatur und Feuchte (spezifische und relative Feuchte), die chemischen Variablen (Mitte) O_3 , NO , NO_2 und $NO_x (= NO + NO_2)$ und Wasserstoffperoxid H_2O_2 (rechts) als Funktion der Höhe aufgetragen sind.

Wie in Kap. 10 dargestellt wird, stellt der im Experiment TRACT erfaßte Datensatz eine sehr gute Grundlage dar, um für Modellsimulationen und für Vergleiche zur Güte einer Simulation Anfangsrandwerte bereitzustellen. Ein wichtiges Ergebnis von TRACT ist auch darin zu sehen, daß damit aufgezeigt wurde, wie wichtig die von der Topographie ausgelösten Sekundärzirkulationen für den Vermischungsprozeß sind. Da solche Prozesse in den üblichen Parametrisierungen für die turbulenten Diffusionsprozesse nicht enthalten sind, werden bei Verwendung der nur für horizontal homogene Bedingungen hergeleitete Parametrisierungen erhebliche Fehler in Kauf genommen. Dies gilt in ähnlicher Form auch für die Wettervorhersage und die Austauschvorgänge an der Erdoberfläche in Klimamodellen.

Das Projekt TRACT konnte nicht in einem Schritt bereits alle Kenntnislücken, die auf dem Gebiet der quantitativen Bestimmung des Stoffhaushalts im regionalen Bereich über bergigem Gelände vorhanden sind, schließen. Es ist jedoch gelungen, die räumlichen Strukturen der Konzentrationen in der Atmosphäre mit den Einflüssen der Topographie weitgehend zu erklären. Darüber hinaus sind damit quantitative Analysen zum Stoffhaushalt ermöglicht worden und es ist vor allem auch eine zwischen meteorologischen und chemischen Prozessen ausgewogene Vergleichsbasis für Modellrechnungen geschaffen worden.

4 Das Feldexperiment BERLIOZ (Berliner Ozon-Experiment)

Erhöhte troposphärische Konzentrationen an Photooxidantien, ab der Überschreitung gewisser Grenzen als Photosmog bezeichnet, treten auf (siehe Kapitel 2), wenn sich die Vorläufersubstanzen, leicht flüchtige organische Verbindungen (VOC einschließlich CO) und Stickoxide ($NO_x = NO_2 + NO$), bei geeigneten Wetterlagen in der bodennahen Luftschicht anreichern. Über photochemische Primärschritte bilden sich bei Sonneneinstrahlung in einem solchem Luftgemisch Radikalketten, die NO zu NO_2 oxidieren, was zur Bildung von Ozon als Hauptkomponente des Photosmogs führt. Je nach dem VOC/NO_x -Verhältnis und in Abhängigkeit der VOC -Zusammensetzung kann es zu einer beschleunigten Ozonbildung oder zu einer Verlangsamung bei NO_x - bzw. VOC -Überschuß kommen. Neben den chemischen Reaktionen spielen horizontale und vertikale Transportvorgänge bei der Photosmogausbildung eine entscheidende Rolle. Das bezieht sich sowohl auf Ozon selbst als auch auf seine Vorläufer.

4.1 Ziele des BERLIOZ-Experiments

Das Feldexperiment BERLIOZ wurde im Rahmen des Troposphärenschwerpunktes/Leitthema 3 „Prozeßstudien zur Oxidantienbildung und Oxidationskapazität“ (TFS/LT3) des BMBF (Bundesministerium für Bildung und Forschung) vorbereitet und durchgeführt. Ziel dieses Forschungsprogramms war die Verbesserung der modellmäßigen Beschreibung der Photo-

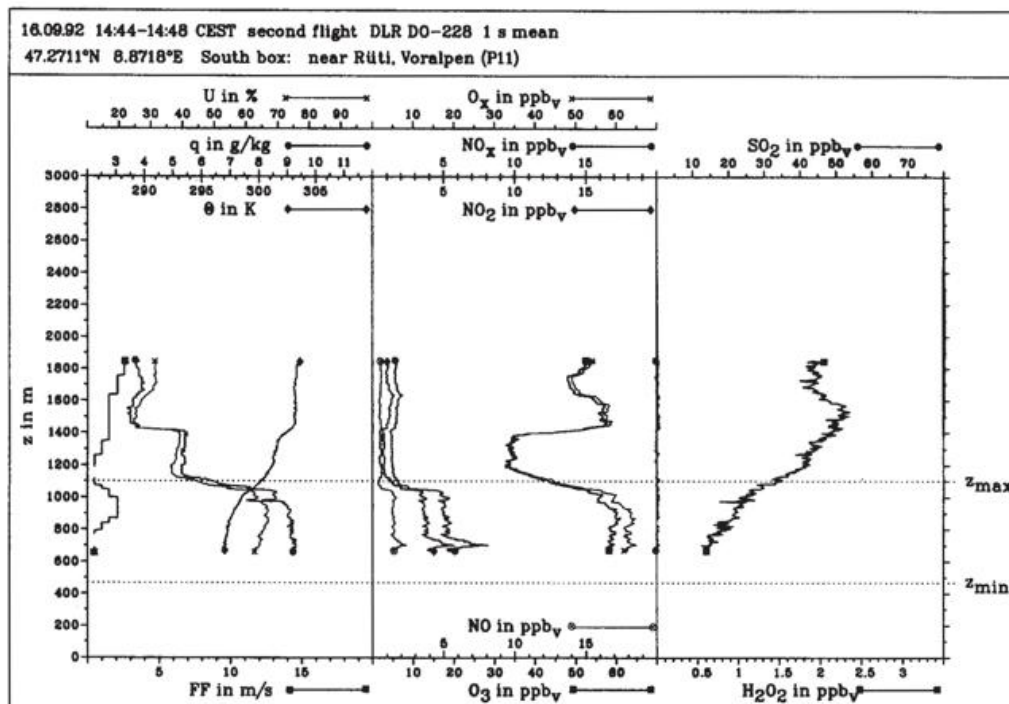


Abb. 7-6: Vertikale Verteilung von meteorologischen Variablen (Wind, potentielle Temperatur, spezifische und relative Feuchte) und von ausgesuchten chemischen Substanzen.

smogbildung auf der Basis eines erweiterten Verständnisses der Prozesse, die zur Ausbildung von Photooxidantien führen. Die Arbeiten zum Leitthema 3 begannen im August 1996 und endeten im April 2000.

Das Feldexperiment BERLIOZ setzte sich aus 28 Einzelprojekten zusammen, die in folgende Projektgruppen unterteilt werden können:

- Routinemessungen von VOC, NO_x, O₃, PAN, CO, Photolysefrequenzen sowie von meteorologischen Parametern an Bodenstationen und mit einer mobilen Station (4 Projekte),
- chemische Sondermessungen von Radikalen (OH, HO₂, RO₂, NO₃), Salpetersäure (HNO₃), salpetriger Säure (HNO₂), Hydroperoxiden und Carbonylverbindungen an Bodenstationen (5 Projekte),
- Profilmessungen meteorologischer Größen (3 Projekte),
- Messungen von VOC, NO_x, O₃, PAN und CO mit Flugzeugen und Ballonen (6 Projekte) und Ozonmessungen mit LIDAR (5 Projekte),
- Bestimmung von Massenflüssen aus Flugzeugmessungen (1 Projekt),
- Strahlungsflußbestimmung und Messung wichtiger Photolysefrequenzen in Abhängigkeit von der Bewölkung (4 Projekte).

Zusätzlich nahmen auch andere Arbeitsgruppen aus dem Leitthema 3 an der BERLIOZ-Kampagne teil. Weitere Verstärkung erfuhr das BERLIOZ-Experiment durch die Mitarbeit des Umweltbundesamtes und der Landesämter Berlin, Brandenburg und Sachsen-Anhalt sowie durch Gäste aus Deutschland und den europäischen Nachbarländern Frankreich, Italien, Polen und Spanien. Eine wesentliche Unterstützung bei der Dateninterpretation und bei der Aufbereitung von Emissionsdaten wurde durch enge Zusammenarbeit mit den Leitthemen 1 und 2 des TFS erreicht.

In Ergänzung zum BERLIOZ-Feldexperiment wurden Messungen von Spurengasen, wie VOC, Stickoxiden und salpetriger Säure, in einem Wuppertaler Straßentunnel und im Stadtgebiet von Wuppertal durchgeführt. Der Vergleich der Ergebnisse dieser Studien mit den Resultaten aus BERLIOZ ergab wertvolle Einblicke in die VOC-Zusammensetzung, das VOC/NO_x-Verhältnis und damit in die Prozesse, die zur Ausbildung von Photosmog führen.

Neben dem Feldexperiment BERLIOZ wurden im Rahmen des Leitthemas 3 auch Laborarbeiten zum Reaktionsverhalten atmosphärenrelevanter Spezies sowie begleitende Simulationsexperimente im europäischen Photoreaktor EUPHORE (Valencia, Spanien) durchgeführt. Diese Arbeiten befaßten sich schwerpunktmäßig mit dem atmosphärischen Abbau von sauerstoffhaltigen, aromatischen und biogenen Kohlenwasserstoffen sowie dem Reaktionsverhalten wichtiger Intermediate, wie Alkoxy- oder Alkylperoxyradikale (Geiger et al. 2001). Diese Studien haben wichtige Beiträge zu einem besseren Prozeßverständnis geliefert und zu einer Weiterentwicklung der chemischen Modelle geführt, welche teilweise bereits für die Analyse des BERLIOZ-Experiments genutzt wurden.

4.2 Durchführung des BERLIOZ-Feldexperiments

Die BERLIOZ-Kampagne fand vom 13. Juli bis 9. August 1998 im Großraum Berlin in einem Umkreis von etwa 100 km statt. Das Leitungszentrum war im Institut für Meteorologie der FU Berlin untergebracht. Dort konnten auch während der Kampagne entsprechend den veränderlichen meteorologischen Bedingungen schnelle Entscheidungen über z. B. den Einsatz der Flugzeuge getroffen werden. Vor der eigentlichen Feldmessung wurden alle Meßplattformen eine Woche lang auf einem Flugfeld zusammengebracht und einer Qualitätssicherung (siehe Kapitel 15) unterzogen. Auch während der Kampagne wurden regelmäßig Qualitätsüberprüfungen der Geräte durchgeführt (Kanter et al. 2001, Volz-Thomas et al. 2001). Tab. 7-1 gibt eine Zusammenfassung der während der Kampagne eingesetzten Meßplattformen.

Die Meßstandorte waren in Richtung Nordwest in Luv und Lee angeordnet (siehe Abb. 7-7). Am 20. Juli 1998 zog ein kleines Zwischenhoch vom Westen her über Berlin hinweg mit Wind aus Südost und geringen Geschwindigkeiten. In der Höhe oberhalb 600 m kam der Wind aus West und drehte über Tage auf Süd. Der 20. Juli 1998 wurde als erster Intensivmeßtag festgelegt. Die zweite Intensivmessung erfolgte am 21. Juli 1998. An diesem Tag herrschte vormittags Wind aus Südost vor. Gegen Nachmittag kam es jedoch bei hohen Temperaturen zu einem Frontdurchgang mit präfrontalen Wettererscheinungen. In der Folge drehte der Wind auf Südwest.

Im August wurden weitere Intensivmeßtage festgelegt. Die in diesem Beitrag vorgestellten Hauptergebnisse konzentrieren sich aber auf die beiden Tage 20. und 21. Juli 1998. Die Bodenmeßstationen wurden während der gesamten Kampagnenzeit betrieben, die Flugzeuge nur während der Intensivmeßtage.

Parameter	Meßmethode	Anzahl Stationen
O ₃	Ozonanalysator	15 Bodenstationen, 5 Flugzeuge, 1 Ballon, 5 LIDAR-Systeme
Stickoxide NO _x (NO, NO ₂) NO _x (NO _w) NO _y	Photolytischer Konverter, Luminox Chemilumineszenz/Molybdänkonverter Chemilumineszenz/Goldkonverter, Luminox/Konverter	4 Bodenstationen 12 Bodenstationen, 4 Flugzeuge 12 Bodenstationen, 3 Flugzeuge
PAN	GC/ECD	6 Bodenstationen
HNO ₃	Chemilumineszenz/Goldkonverter/ Denuder	3 Bodenstationen
HNO ₂	DOAS	4 Bodenstationen
CO	IR (in situ), Kanister/IR	8 Bodenstationen, 1 Flugzeug
Radikale OH HO ₂ ΣRO ₂ NO ₃	LIF LIF, ESR ESR, chemischer Verstärker DOAS, ESR	1 Bodenstation 1 Bodenstation 1 Bodenstation 4 Bodenstationen
Peroxide H ₂ O ₂ , MHP, HMHP	HPLC	4 Bodenstationen
Strahlungsparameter J(NO ₂) J(O ₃ D) Strahlung	Aktinometer, Filtradiometer Aktinometer, Filtradiometer Spektraldiometer, UV-B-Photometer	8 Bodenstationen 4 Bodenstationen 2 Bodenstationen, 2 Flugzeuge
Vertikalsondierung O ₃ NO _x , VOC Aerosole Meteorologische Daten	LIDAR, RaSo, Ozonanalysator Luminox, Kartuschen, Kanister LIDAR, Partikelzähler SODAR, RaSo, Windprofiler, luftgestützte Meßgeräte	5 LIDAR, 5 Ballons, 5 Flugzeuge, 1 Radiosonde 5 Flugzeuge, 2 Ballons 1 Bodenstation, 1 Flugzeug 5 SODAR, 2 Ballons, 5 Flugzeuge, 5 RaSo, 1 Windprofiler
Säulendichte O ₃ , NO ₂	Brewer MK IV	1 Bodenstation

Tab. 7-1: Gemessene Parameter, Meßmethoden und Anzahl der jeweiligen Meßstationen während der BERLIOZ-Feldmeßkampagne.



Abb. 7-7: Anordnung der Bodenmeßstationen, die während der BERLIOZ-Feldmeßkampagne betrieben wurden.

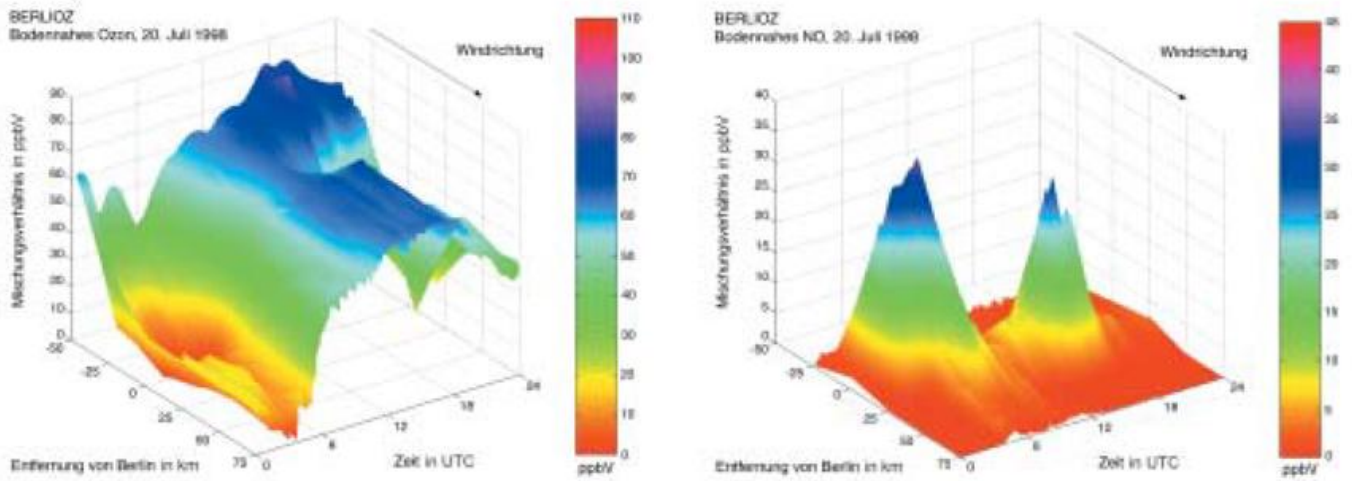


Abb. 7-8: Messung von bodennahem O₃ (linkes Bild) und NO (rechtes Bild) an den Meßstellen Lindenberg (nur O₃), Blossin, Frohnauer Turm (unten), Eichstädt, Pabstthum und Menz am 20.7.98.

4.3 Ergebnisse der ersten Intensivmeßphase (20./21. Juli 1999)

4.3.1 Ozonmessungen

Die Abb. 7-8 zeigt exemplarisch für den 20. Juli 1998 die Konturen der bodennahen Ozonkonzentration in Luv und Lee Berlins und die ausgeprägten Tagesspitzen von Stickstoffmonoxid über dem Berliner Stadtgebiet, die in die Hauptverkehrszeiten fallen. Am 20. und 21. Juli 1998 erreichten die maximalen Ozonwerte am Boden knapp 200 mg/m³, wovon am 20.7. etwa 20% höchstens 50% in der Abwindfahne gebildet wurden und über 50% aus dem Ferntransport stammten. Am 21. Juli 1998 wurde der Ozonanstieg weitgehend durch Transport bestimmt, mit deutlich unter 15% Anteil der Bildung in der Fahne. Ausführliche Informationen zur Ozonmessung und zum Transport während der BERLIOZ-Kampagne findet man bei Corsmeier et al. (2001).

4.3.2 VOC-Messungen und VOC/NO_x-Verhältnisse

Im Umland von Berlin, insbesondere im Luv, wurden erhebliche VOC-Anteile aus biogenen Quellen gemessen. Im Lee wurden auch Abbauprodukte gefunden, die eindeutig der Oxidation von Isopren und α -Pinen zuzuordnen sind. Abb. 7-9 zeigt die Gesamtreaktivität $\sum k_i^{OH} C_i^{VOC}$ sowie die relativen Anteile einzelner VOC-Gruppen für verschiedene Meßtage an der Station Blossin im Luv von Berlin. Bei hohen Tagestemperaturen erreichte dort Isopren einen Anteil an der OH-Gesamtreaktivität von nahezu 80% (siehe auch Winkler et al. 2001).

Abb. 7-10 zeigt die VOC-Zusammensetzung und das VOC/NO_x-Verhältnis für verschiedene Bodenmeßstationen. Die stadtnahe Station Eichstädt zeigte erwartungsgemäß den höchsten Anteil an reaktiven anthropo-

gen Komponenten, insbesondere für aromatische Kohlenwasserstoffe. Das VOC/NO_x-Verhältnis war hoch im Luv, erreichte in der Stadtmitte ein Minimum und nahm im Lee mit Entfernung von der Stadt wieder zu. In etwa 80 km Entfernung (Menz) war das Verhältnis in der Fahne allerdings immer noch relativ klein. Dieses kann eventuell darauf zurückgeführt werden, daß erhebliche VOC-Anteile nicht erfaßt wurden. Eine Abschätzung für die Meßstation Pabstthum geht allerdings davon aus, daß bis zu 80% aller VOC erfaßt wurden. Alternativ können NO_x-Quellen aus dem Boden dazu beigetragen haben. Für das ganze Meßgebiet wurden knapp 19% der Gesamt-NO_x-Emissionen als Quelle aus Böden abgeschätzt. Im Vergleich zu den BERLIOZ-Messungen zeigt Abb. 7-11 die VOC-Zusammensetzung in einem Verkehrstunnel und im Innenstadtbereich von Wuppertal. Hierbei wird deutlich, daß die VOC-Zusammensetzung der innerstädtischen Luft weitgehend durch den Verkehr bestimmt wurde und der im Tunnel gemessenen Zusammensetzung entsprach (37%ppbC Alkane, 16%ppbC Alkene, 47%ppbC Aromaten). Die gefundene Zusammensetzung steht nicht im Einklang mit UBA-Emissionsdaten, in denen die höchsten VOC-Emissionen dem Lösemittelbereich zugeordnet werden. Das VOC/NO_x-Verhältnis im Tunnel lag an Wochentagen infolge eines Lastkraftwagenanteils von 12% bei 0,6 und stieg für den Wochenendverkehr auf 3,0 an. In der Stadt wurde ein Verhältnis von 3,4 beobachtet, vermutlich bedingt durch einen höheren PKW-Anteil und Abbau von NO_x während des Transports. Der hohe Aromatenanteil sowohl im Tunnel als auch in der Innenstadt ist weitgehend auf den Aromatengehalt in Ottokraftstoffen zurückzuführen, wie Simulationsexperimente mit Abgasen von Motoren ergaben, die mit unterschiedlichen Kraftstoffen betrieben wurden. Im einzelnen wurden die Messungen im Wuppertaler Kiesbergtunnel sowie der Vergleich mit BERLIOZ-Daten von Kurtenbach et al. (2001) beschrieben.

4.3.3 Strahlungsmessungen

Im Rahmen der BERLIOZ-Kampagne, aber auch in zusätzlichen TFS/LT3-Arbeiten, wurden Photonenflüsse und Photolyseraten, $J(O^1D)$ für die Ozonphoto-lyse in Gegenwart von Wasser und $J(NO_2)$ für die NO_2 -Photo-lyse, in Abhängigkeit von der Bewölkung gemessen und mit einem Modell verglichen. Es zeigte sich, daß der Wert für $J(O^1D)$ unter einer Wolke ab einer Be-deckung von 4/8 deutlich abfällt, innerhalb der Wolke jedoch ansteigt. Der für die BERLIOZ-Kampagne wichtige Photonenfluß am 20. Juli 1998 wurde bei Berücksichtigung des Aerosols im Modell innerhalb einer Abweichung von $\pm 10\%$ zwischen Messung und Si-mulation bestimmt, mit einer Unterschätzung unterhalb und einer Überschätzung oberhalb von 400 nm (siehe auch Junkermann et al. 2001).

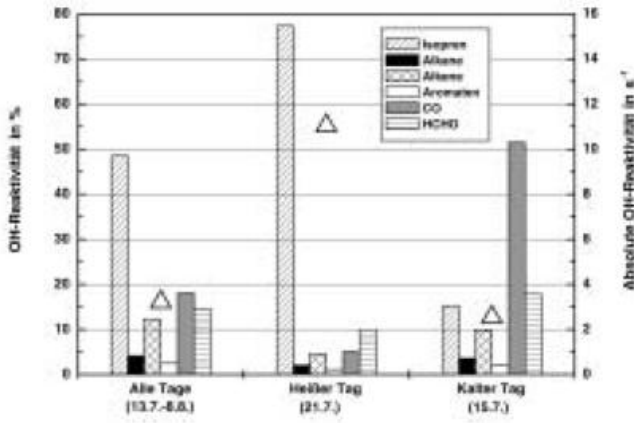


Abb. 7-9: Relative OH-Reaktivitäten für ausgesuchte Spezies und Verbindungsklassen in Blossin. Die Dreiecke zeigen die absolute OH-Reaktivität an (Winkler et al. 2001).

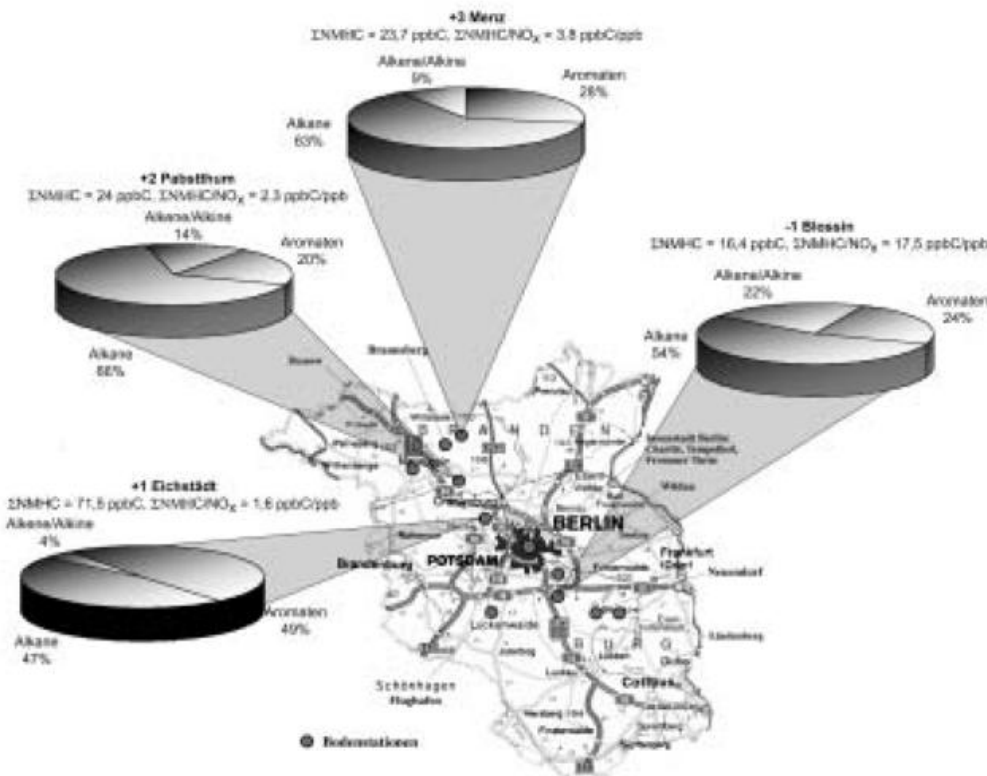


Abb. 7-10:

NMHC- und NO_x -Messungen am 20.7.98 im Luv (Blossin) von Berlin gegen 6.15 UTC und im Lee (Eichstädt, Pabstthum und Merz) vormittags in der Ab-gasfahne jeweils mit etwa 1/2 h Zeitauflösung.

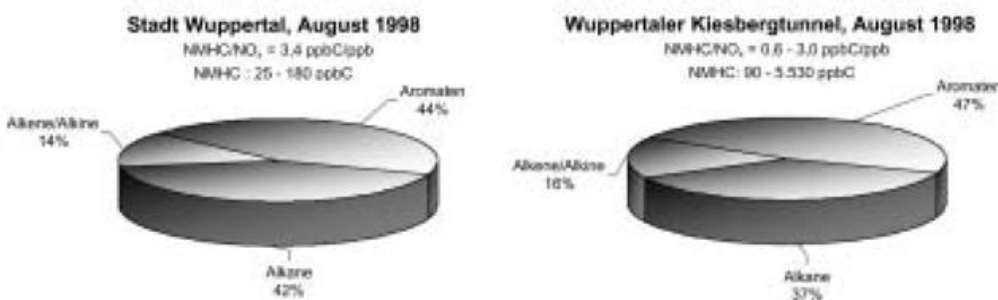


Abb. 7-11:

NMHC- und NO_x -Messungen im Stadtgebiet von Wuppertal und in einem Verkehrstunnel (Kurtenbach et al. 2001).

4.3.4 Messungen verschiedener Radikale

An der Bodenstation Pabstthum wurden ausführliche in situ Messungen der an der Photooxidantienbildung beteiligten Radikale durchgeführt. Im einzelnen wurden die Konzentrationen von Hydroxy- (OH), Hydroperoxy- (HO_2), organische Peroxy- (RO_2) sowie Nitratradikalen (NO_3) quantitativ und zeitaufgelöst bestimmt. Abb. 7-12 zeigt exemplarisch gemessene Radikalprofile für den 20. Juli 1998 im Vergleich mit Modellrechnungen. An diesem Tag wurden Radikalmaxima von etwa $7 \cdot 10^6$ Radikale/ cm^3 für OH und von $450 \cdot 10^6$ Radikale/ cm^3 für HO_2 erreicht. Die maxi-

male RO_2 -Konzentration erreichte eine ähnliche Größe wie für HO_2 . Nähere Informationen zu den Radikalmessungen in Pabstthum findet man bei Platt et al. (2001).

Aus den VOC-Konzentrationsgradienten in der Abluftfahne für die Meßwerte der Bodenstationen Pabstthum und Menz wie auch für die Flugzeugmessungen über Pabstthum und Menz ließen sich OH-Radikalkonzentrationen von $5,5 \cdot 10^6$ bzw. $4,9 \cdot 10^6$ Radikale/ cm^3 ableiten (Konrad 2000). Dies ist im Rahmen der Fehler in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten der Meßstation Pabstthum.

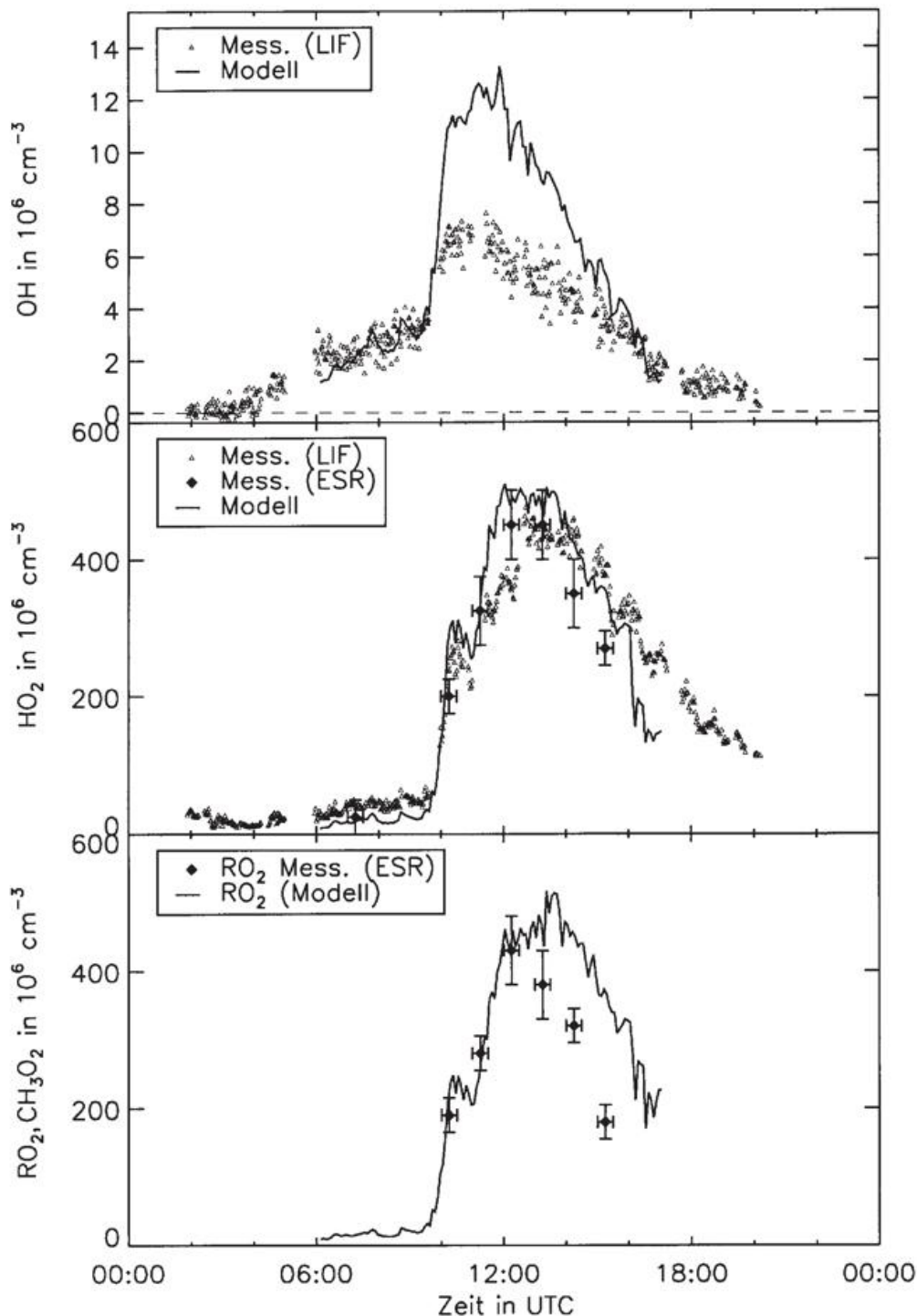


Abb. 7-12: Messung der Radikalkonzentrationen von OH, HO_2 , RO_2 am 20.7.98 in Pabstthum und Modellvergleich (Platt et al. 2001).

4.4 Die wichtigsten Schlussfolgerungen

Die während BERLIOZ bestimmte Ozonproduktionsrate ist kleiner als die aus dem photostationären Gleichgewicht abgeleitete.

Die frühmorgendliche OH-Radikalbildung kann nur erklärt werden, wenn auch die Photolyse von salpetriger Säure (HNO_2) als Quelle mit berücksichtigt wird. Tab. 7-2 zeigt den Anteil, den diese Quelle über 24 h gemittelt zur OH-Bildung beitragen kann, wie die großflächigen BERLIOZ-Messungen von HNO_2 gezeigt haben (Platt et al. 2001).

Tag	Photolyse der Spezies	Anteil an der OH-Produktion (%)
20.7.1998	O_3 (+ H_2O)	54 ± 7
	HNO_2	17 ± 5
	HCHO	29 ± 6
21.7.1998	O_3 (+ H_2O)	41 ± 7
	HNO_2	25 ± 7
	HCHO	34 ± 9

Tab. 7-2:

Vergleich der Anteile an der integrierten OH-Produktion aus der Photolyse von Ozon (O_3), salpetriger Säure (HNO_2) und Formaldehyd (HCHO) über 24 Stunden während BERLIOZ an der Meßstelle Pabstthum (Platt et al. 2001).

Neben dem Abbau von VOC über OH-Radikale müssen auch NO_3 - und O_3 -Reaktionen berücksichtigt werden, insbesondere für Alkene. Diese Reaktionen führen zu einer zusätzlichen Bildung von OH-Radikalen und sorgen dafür, daß, wie schon lange vermutet, aber in der BERLIOZ-Kampagne zum ersten Mal beobachtet, die OH- und HO_2 -Radikalkonzentrationen während der Nacht nicht auf Null abfallen, sondern mit etwa 10% der Tageswerte auch im Dunkeln die Oxidationsvorgänge aufrecht erhalten.

Bei hohen NO_x -Konzentrationen lassen sich die beobachteten OH- und HO_2 -Konzentrationen modellmäßig gut beschreiben. Sinkt jedoch die NO_x -Konzentration, überschätzt das Modell die OH-Radikale um das Doppelte; die HO_2 -Konzentrationen werden jedoch immer noch zufriedenstellend beschrieben (Platt et al. 2001). Zusammen mit dem gemessenen NO_2/NO -Verhältnis und der aus den Radikalmessungen abgeleiteten O_3 -Bildungsraten, die sich auch mittels Massenbilanzen aus Flugzeugmessungen bestimmen lassen, ergeben sich Widersprüche im angenommenen chemischen Mechanismus. Wichtige Lücken im Grundverständnis scheinen aufzutreten, wie noch nie vorher in einer Feldmessung so deutlich gezeigt worden ist. Es sollte allerdings beachtet werden, daß bei der Modellierung turbulente Prozesse, Deposition und Durchmischung unberücksichtigt blieben. Vieles deutet auf eine zusätzliche Radikalsenke hin. Die gemessenen Abbauprodukte aus anthropogenen und biogenen Kohlenwas-

serstoffen weisen in die Richtung einer unvollständigen VOC-Erfassung. Gegebenenfalls sollten allerdings elementare Prozesse der Radikalchemie nochmals im Labor untersucht werden.

4.5 Entwicklung analytischer Methoden

Die Arbeiten im TFS/LT3, insbesondere im Rahmen der BERLIOZ-Kampagne, haben deutliche Fortschritte bei der Entwicklung neuer Meßmethoden und deren Einsatz bei Feldmessungen gebracht. Ein Teil dieser Entwicklung erfolgte im Rahmen des Programms „Atmosphärische Diagnostik“ der Deutschen Bundesstiftung Umwelt (DBU). Folgende neue Verfahren wurden entwickelt bzw. verbessert:

- Die Echtzeit-VOC-Analyse mittels Gaschromatograph im ppt-Bereich von etwa 60 Komponenten gleichzeitig und der verlässliche Betrieb der Gaschromatographen mit vorgeschalteter Kryoanreicherung hat zu international anerkannten Erfolgen geführt.
- Neue Meßtechniken haben zu einer verbesserten Analytik für Hydroperoxide und organische Carbonylverbindungen geführt. Ein Prototyp des Meßgerätes wurde bereits im Feld erprobt.
- Ein neues Verfahren zur Messung salpetriger Säure konnte sowohl in Simulationsexperimenten als auch im Feld bereits erfolgreich eingesetzt werden.
- Die bereits seit einigen Jahren an deutschen Forschungsinstituten entwickelten Techniken zur *in situ* Radikalmessung durch DOAS („Differentielle Optische Absorptions-Spektroskopie“) und LIF („Laser-Induzierte Fluoreszenz“) sowie Kryoanreicherung als Probenahme wurden für die Anforderungen im TFS/LT3 weiter verbessert und haben mit den in BERLIOZ erzielten Ergebnissen eine internationale Spitzenstellung erreicht.

Darüber hinaus haben sich deutliche Beschränkungen bei dem Meßverfahren zur Bestimmung niedriger NO_2 -Konzentrationen mittels Molybdänkonverter ergeben. Weiterhin wurden im Feld Mängel bei der O_3 -Fernerkundung mittels LIDAR („Light Direction And Ranging“) festgestellt. Wesentliche Verbesserungen der Betriebssicherheit der Geräte und vor allem der Algorithmen zur Auswertung der Meßsignale wurden in einem Vergleichsexperiment erprobt und werden die Einsatzmöglichkeiten der LIDAR-Systeme in Zukunft deutlich verbessern (Weitkamp et al. 2000).

4.6 Zusammenfassung der Ergebnisse von BERLIOZ

Die Arbeiten im Rahmen der BERLIOZ-Feldmeßkampagne haben große Fortschritte bei der experimentellen Untersuchung und der modellmäßigen Be-

schreibung komplexer chemischer Prozesse gebracht. Neueste Meßtechniken ermöglichten die Erfassung einer Vielzahl von Spurengasen im sub-ppb-Bereich. Wichtige Radikalquellen wurden aufgedeckt. Der Einfluß der Bewölkung auf den aktinischen Fluß kann dank dieser Arbeiten jetzt besser beschrieben werden. Die *in situ* Radikalmessungen haben einige grundlegende Fragen hinsichtlich der Ausbildung troposphärischer Radikalketten und deren Auswirkung auf die Ozonbildung aufgeworfen.

Für den Raum Berlin konnte gezeigt werden, daß bei Tagestemperaturen über 30 °C biogene VOC-Emissionen einen erheblichen Anteil an der Photooxidantienbildung haben. Hinweise auf den Einfluß natürlicher NO_x-Quellen wurden gefunden. Aus der Analyse der lokal ablaufenden chemischen Prozesse und der überlagerten Transportvorgänge konnte gefolgert werden, daß bis zu 50% der Vorläuferemissionen für Ozon aus dem Berliner Raum stammen können. Bei geeigneten Wetterlagen tragen diese Emissionen mit 20% bis maximal 50% zur regionalen Ozonbelastung bei. Der größere Anteil muß auf Ferntransport zurückgeführt werden. Bei Luftreinhaltemaßnahmen für Berlin und dessen Umland müssen bei der Bildung von Sommersmog sowohl weiträumige Transportvorgänge als auch die großen Anteile biogener Kohlenwasserstoffe berücksichtigt werden.

In den Stadtzentren wird die Zusammensetzung der VOC-Emissionen immer noch eindeutig durch den Verkehr und nicht durch den Lösemittelgebrauch geprägt. In der innerstädtischen Luft fällt vor allem der hohe Anteil aromatischer Kohlenwasserstoffe auf, der auf den hohen Gehalt an Aromaten in Ottokraftstoffen zurückzuführen ist. Simulationsexperimente mit Abgasen von Ottomotoren haben gezeigt, daß eine Reduzierung des Aromatenanteils im Treibstoff zu einer deutlichen Reduzierung des Ozonbildungspotentials der Abgase in der Atmosphäre führt. Seit 1.1.2000 wird bereits durch eine EU-Richtlinie der Gesamtgehalt an aromatischen Komponenten im Ottokraftstoff auf 42 Gew% begrenzt. Carbonylverbindungen stellen einen hohen Anteil an reaktivem Kohlenstoff. Hier sind für die Zukunft bessere und umfangreichere Messungen erforderlich, um die Summe an reaktivem Kohlenstoff mit großer Genauigkeit abschätzen zu können.

Insgesamt hat die BERLIOZ-Kampagne gezeigt, daß eine Reihe von Maßnahmen notwendig ist, um in Zukunft effektive Kontrollstrategien hinsichtlich der Photo-smogbildung zu entwickeln. So sind umfassende Qualitätssicherungsmaßnahmen absolut erforderlich, um eine erfolgreiche Durchführung von Feldexperimenten zu gewährleisten. Weitreichende Transportprozesse innerhalb Europas müssen detaillierter untersucht und Emissionsszenarien für Europa unbedingt experimentell überprüft werden. In zukünftigen Feldmeßkampagnen sollten mehr VOC-Messungen (auch Carbonyle) durchgeführt werden. Eine grundlegende Überprüfung der Elementarschritte der Radikalchemie im Labor ist angebracht.

5 Das Feldexperiment POPCORN (Photochemie in der kontinentalen Hintergrundatmosphäre)

Die Bildung von Ozon in der Troposphäre wird im wesentlichen beeinflusst von den Mischungsverhältnissen der Stickoxide und der flüchtigen organischen Verbindungen, VOC. Stickoxide werden bei allen Verbrennungsprozessen freigesetzt, VOC sowohl vom Menschen als auch aus biogenen Quellen wie z.B. der Vegetation in die Troposphäre abgegeben.

Der Kenntnisstand über die Emission von anthropogenen VOC und deren Verteilung in der Troposphäre hat in den letzten Jahren erheblich zugenommen. Dagegen ist das Wissen über den Beitrag biogener VOC zum Spurengashaushalt der Troposphäre und ihr Einfluß auf die Ozonbildung noch weitgehend ungeklärt (siehe Kapitel 4). Die Entscheidung über die Verminderung anthropogener Ozonvorläufersubstanzen hängt in erheblichem Maße vom Vorkommen biogen emittierter VOC ab. Daher ist ein besseres Verständnis der Rolle biogener VOC bei der Ozonbildung von zunehmender Bedeutung. Änderungen in der Landnutzung, aber auch klimatische Veränderungen können, wegen der Temperaturabhängigkeit biogener Emissionen, in Zukunft zu einer Änderung der Emissionsraten biogener VOC und damit auch zu einer Änderung der Menge und Zusammensetzung von Ozonvorläufersubstanzen führen, die aus natürlichen Quellen in die Troposphäre gelangen.

5.1 Ziele des POPCORN-Experiments

Weitgehend ungeklärt sind bis heute Art und Menge von biogenen Emissionen, Zusammensetzung der Ozonvorläufersubstanzen in der unteren Atmosphäre, die darin ablaufenden chemischen Prozesse und die Auswirkungen anthropogener Einflüsse auf die Photochemie. Darüber hinaus erfordert ein Verständnis der komplexen Zusammenhänge der Ozonbildung detaillierte Kenntnisse über Konzentration und Verteilung von OH-Radikalen, der Schlüsselkomponente im troposphärischen Spurengasabbau. OH-Radikale werden in der Atmosphäre durch die Photolyse von Ozon und die anschließende Reaktion des angeregten Sauerstoffatoms mit Wasser gebildet. Die Reaktion mit OH-Radikalen leitet den Abbau der meisten Spurengase in der Troposphäre ein. OH-Radikale bestimmen damit den Umsatz dieser Spurengase, ihre atmosphärische Lebensdauer und die Bildung von möglicherweise schädlichen Sekundärprodukten.

Um zumindest einige der oben aufgeworfenen offenen Fragen zu beantworten, wurde im August 1994 die Feldkampagne POPCORN durchgeführt. Diese Kampagne bot eine gute Gelegenheit, verschiedene Ziele miteinander zu verbinden. Die Zusammensetzung und die Menge der Emissionen flüchtiger organischer Verbindungen aus landwirtschaftlichen Nutzpflanzen sollte untersucht werden. Durch die Messung eines möglichst kompletten Satzes an Spurengasen und Radikalen

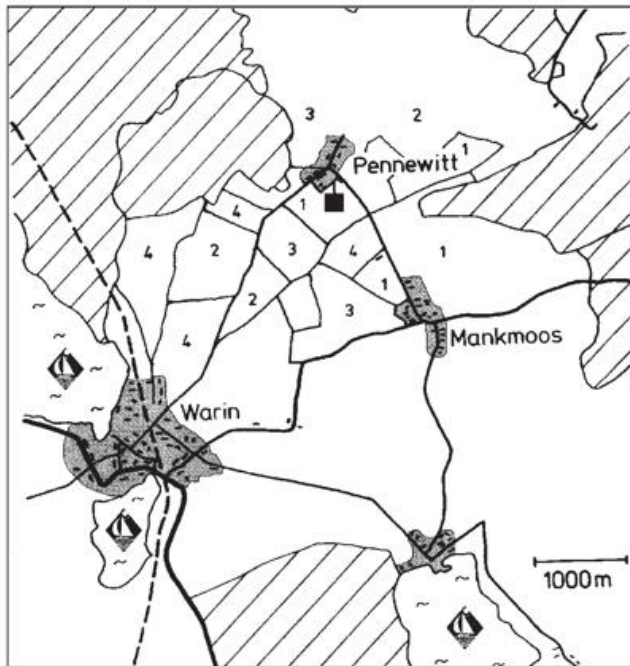


Abb. 7-13: Die nähere Umgebung des Meßortes der POPCORN-Feldkampagne (schwarzes Quadrat) südlich von Pennewitt. Die Orte (grau markiert) Pennewitt (50 Einwohner) und Mankmoos (200 Einwohner) und die Stadt Warin (2000 Einwohner) sind mit Straßen verbunden (dicke durchgezogene Linien: Straßen, gestrichelte Linie: Bahnlinie). Die schraffierten Flächen sind Waldgebiete, die mit Tilde markierten Flächen Seen. Ebenfalls eingezeichnet sind die landwirtschaftlichen Nutzflächen: 1: Mais, 2: Getreide, 3: Weideland, 4: Brachland. Aus: Plaß-Dülmer et al. (1998).

sollte ein Einblick in die Photochemie und die Bildung von Photooxidantien gewonnen werden. Gleichzeitig sollte eine möglichst geschlossene Bilanzierung verschiedener Spurengase erfolgen. Für die Messung der OH-Radikalkonzentration kamen zwei neu entwickelte Meßinstrumente zum Einsatz, die während dieser Kampagne erstmals bei einem Feldeinsatz miteinander verglichen werden sollten.

5.2 Durchführung des POPCORN-Experiments

Um diese Ziele zu erreichen, mußten einige Bedingungen bei der Wahl des Meßortes erfüllt sein: Geringer Einfluß nahegelegener anthropogener Quellen, keine Störungen der Strömungen in der planetarischen Grenzschicht z.B. durch ungünstige Orographie, möglichst große Flächen mit homogener Vegetation und schließlich logistische Voraussetzungen wie die Zugänglichkeit des Meßortes und die Verfügbarkeit von Strom- und Wasseranschlüssen. Neben der Untersuchung der Photochemie war auch die Messung biogener Emissionen aus landwirtschaftlich genutzten Pflanzen ein Ziel des Projektes. In der Literatur war Mais als Quelle biogener VOC mit Emissionsraten von einigen $\mu\text{g VOC pro Gramm Trockengewicht und Stunde}$ beschrieben. Daher wurde für die Durchführung der Kampagne ein 35 ha großes Maisfeld südlich von Pennewitt, Mecklen-

burg-Vorpommern, ($53,8^\circ \text{ N}, 11,7^\circ \text{ E}$) ausgewählt. Pennewitt liegt etwa 100 km östlich von Hamburg. Größere Städte in der Umgebung sind Schwerin (30 km, SW), Wismar (20 km, NW) und Rostock (40 km, NE). Die Umgebung ist nur schwach besiedelt und von landwirtschaftlichen Nutzflächen (Weideland und Getreideanbau), kleineren Waldstücken und Seen geprägt. Die mittlere Höhe über NN ist 54 m, die Höhenvariationen im Umkreis von 2 km liegen bei $\pm 10 \text{ m}$. Nordöstlich und nordwestlich des Maisfeldes verlaufen zwei kleinere Straßen mit einer geringen Verkehrsdichte von etwa 50 Fahrzeugen pro Tag. In der Umgebung des Meßortes gibt es weder Industriegebiete noch Autobahnen, so daß die Atmosphäre nur wenig durch Emissionen aus lokalen anthropogenen Quellen belastet ist. Die biogenen Emissionen am Meßort stammten im wesentlichen aus den umliegenden Maisfeldern und den häufigsten Baumarten in der näheren Umgebung (Eichen, Pappeln, Birken, Buchen und Kiefern). Abbildung 7-13 zeigt die nähere Umgebung des Meßortes. Das Maisfeld selber hatte eine nahezu quadratische Grundfläche von $600 \text{ m} \times 600 \text{ m}$. Zum Zeitpunkt der Meßkampagne im August 1994 war der Mais bedingt durch den ungewöhnlich trockenen und heißen Sommer nur etwa 1,50 m hoch.

Alle analytischen Instrumente waren in Laborcontainern in der Mitte des Maisfeldes installiert. Ansaugleitungen, Probenahmeeinrichtungen und meteorologische Instrumente waren auf Masten bzw. Gerüsten südlich und westlich der Container aufgebaut. Dieser Aufbau wurde gewählt, um mögliche Kontaminationen durch die Container bzw. die Aktivitäten auf dem Feld bei dem vorherrschenden Wind aus westlichen Richtungen zu vermeiden. Elektrische Energie wurde von einer nahegelegenen Transformatorstation geliefert. Alle zu Emissionen von Spurengasen führenden Aktivitäten wie Autoverkehr oder Rauchen waren während der Messungen auf dem Maisfeld untersagt. Abbildung 7-14 gibt die Lage des Maisfeldes und die Position der Meßcontainer wieder, Abbildung 7-15 zeigt eine Luftaufnahme des Meßortes.

Zur Untersuchung der Photochemie wurden die Mischungsverhältnisse eines großen Satzes von Spurengasen gemessen. Dazu gehörten flüchtige organische Verbindungen, Stickoxide, Ozon, Kohlenmonoxid, Wasserstoffperoxid und Salpetersäure. Auch die Konzentration von Peroxiacetylnitrat (PAN), einer Verbindung, die nicht unmittelbar in die Atmosphäre emittiert, sondern erst durch photochemische Prozesse gebildet wird, wurde gemessen. Diese Verbindung kann als ‚Meßplatte‘ für die photochemische Aktivität in einer Luftmasse herangezogen werden. Gemessen wurden darüber hinaus alle wichtigen Parameter, die die Photochemie wesentlich beeinflussen wie Photolysefrequenzen und meteorologische Daten. Eine vollständige Übersicht über die gemessenen Komponenten und die dazu eingesetzten Meßtechniken findet man bei Plaß-Dülmer et al. (1998). Die Konzentration der OH-Radikale wurde erstmalig mit zwei unabhängigen Techniken gleichzeitig gemessen, mit Laser-induzierter Fluoreszenz (LIF) und differentiell-

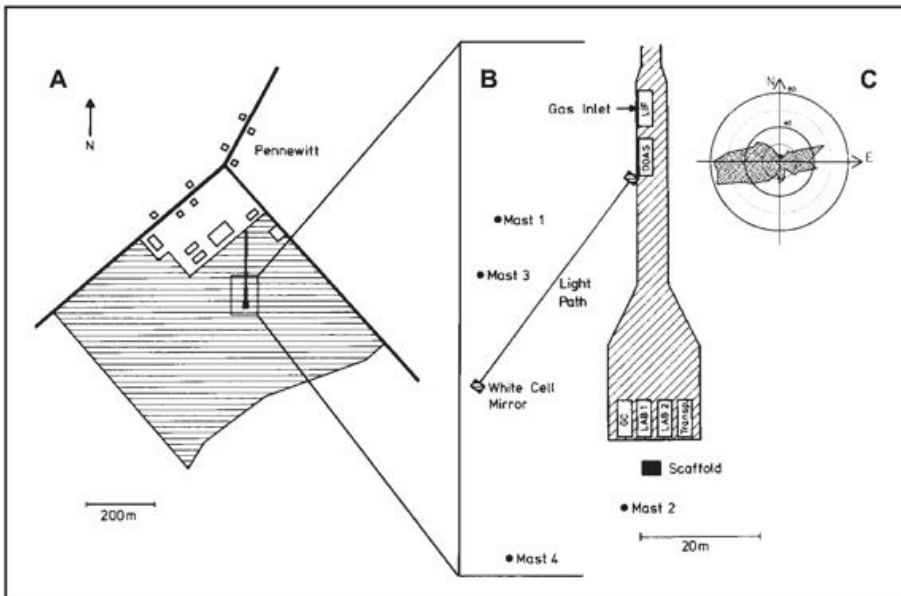


Abb. 7-14: Das Maisfeld und die Lage des Meßortes (A). Die offenen Rechtecke sind Gebäude, die z.T. nicht benutzt werden. Die Position der Meßcontainer und Masten ist in der Ausschnittvergrößerung dargestellt (B). Die schraffierte Fläche ist der in das Maisfeld freigelegte Zugang zu den Containern. Die Masten und das Gerüst dienten zur Montage von Ansaugleitungen, Probenahmeeinrichtungen und meteorologischen Instrumenten. (C) zeigt die Verteilung der Windrichtung während der Kampagne. Aus: Plaß-Dülmer et al. (1998).



Abb. 7-15: Luftaufnahme des Meßortes (Foto: R. Koppmann).

ler optischer Absorptionsspektroskopie (DOAS). Wegen der extrem niedrigen Konzentrationen von OH-Radikalen (tagsüber typischerweise einige 10^6 Moleküle/cm³) handelte es sich dabei keineswegs um Routinemessungen. Diese Kampagne bot eine gute Gelegenheit, einen in-situ Vergleich der beiden Instrumente durchzuführen (Brandenburger et al. 1998, Holland et al. 1998). Für einige Komponenten (Stickoxide, Kohlendioxid, Ozon und Peroxiacetylnitrat) wurden auch vertikale Gradienten zwischen 2 und 6 m Höhe über dem Boden gemessen, um zum einen die Flüsse dieser Spurengase zwischen Boden bzw. Pflanze und Atmosphäre, zum anderen die physikalische Deposition einiger Substanzen zu untersuchen (Schrimpf et al. 1998).

Die generelle meteorologische Situation änderte sich während der Meßkampagne von hochsommerlichen zu eher herbstlichen Bedingungen. Die Zeit vor dem 5. August 1994 war geprägt durch hohe Tagestemperaturen von bis zu 35 °C

und intensive Sonneneinstrahlung. Die typischen Windgeschwindigkeiten lagen unter 5 m/s. Die Luftmassen waren maritimen Ursprungs und zeigten nur eine geringe Belastung durch kontinentale Emissionen. Bis zum 11. August 1994 änderte sich die meteorologische Situation mehrfach, es war des öfteren bewölkt und die maximalen Tagestemperaturen sanken auf Werte um 25 °C. Danach lagen die Tagestemperaturen unter 24 °C mit Minima um 10 °C. Zwischen dem 13. und 16. August 1994 wurden Luftmassen polaren Ursprungs herantransportiert, die sich durch extrem niedrige Mischungsverhältnisse aller Spurengase auszeichneten. Bis zum Ende der Kampagne am 23. August 1994 war das Wetter eher wechselhaft, die untersuchten Luftmassen wurden über Frankreich und den Süden Deutschlands herantransportiert und zeigten einen deutlichen, kontinentalen Einfluß. Details zur meteorologischen Situation während der Kampagne und zu Rückwärtstrajektorien während der verschiedenen Episoden sind bei Plaß-Dülmer et al. (1998) und Koppmann et al. (1998) beschrieben.

5.3 Ergebnisse

Die wichtigsten Ergebnisse seien im folgenden kurz zusammengefaßt. Die VOC-Emissionen aus dem Mais waren gering, meist weniger als 10 ng pro Gramm Trockengewicht und Stunde. Das Muster biogener VOC in der Luft spiegelte daher im wesentlichen das Emissionsmuster der umliegenden Bäume wider, deren Emissionsraten um zwei Größenordnungen höher waren. Die Mischungsverhältnisse der häufigsten Verbindungen (α -Pinen, β -Pinen und 3-Caren) lagen meist bei einigen 10 pptv („parts per trillion per volume“, 10^{-12}). Die Mischungsverhältnisse anthropogener VOC waren ebenfalls niedrig. Der einzige Kohlenwasserstoff mit Mischungsverhältnissen über einem ppbv („parts per billion per volume“, 10^{-9}) war Ethan, die Mischungsverhältnisse aller anderen Verbindungen lag zwischen einigen 10 und einigen 100 pptv (Koppmann et al. 1998, Wedel et al. 1998). Trotz der im Vergleich zu den anthropogenen VOC niedrigen Mischungsverhältnisse der biogenen VOC trugen diese auf Grund ihrer hohen Reaktivität erheblich zum photochemischen Umsatz aller organischen Verbindungen bei. Etwa 50 % des photochemisch gebildeten Ozons waren auf Reaktionen mit biogenen VOC zurückzuführen.

Verglichen mit den niedrigen Mischungsverhältnissen der VOC war das mittlere Mischungsverhältnis von Formaldehyd mit 2 ppbv erstaunlich hoch. Auch Acetaldehyd zeigte mit einem mittleren Mischungsverhältnis von 1,4 ppbv überraschend hohe Werte (Benning und Wahner 1998). Als Quelle für die Aldehyde wurde der Mais identifiziert. Die Emissionen lagen teilweise bei 2 μg pro Gramm Trockengewicht und Stunde (Hewitt, private Mitteilung).

Für die Stickoxide wurden tagsüber Mischungsverhältnisse von einigen ppbv beobachtet. Nachts stiegen die Werte auf bis zu 10 ppbv an. Die Messungen zeigten, daß die hohen nächtlichen Mischungsverhältnisse auf eine erhebliche Emission von NO aus dem Boden zurückzuführen waren (Rohrer et al. 1998).

Die Messungen der OH-Radikalkonzentrationen mit LIF und DOAS verliefen sehr erfolgreich. Beide Instrumente zeigten im Rahmen der Meßfehler die selben Ergebnisse (Hofzumahaus et al. 1998). Die OH-Konzentrationen erreichten bei klarem Himmel zum Sonnenhöchststand Maximalwerte von 10^7 cm^{-3} . Nachts sanken die Konzentrationen auf Werte unterhalb der Nachweisgrenze von $4 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$. Abbildung 7-16 zeigt beispielhaft den Tagesgang der OH-Radikalkonzentration vom 17. August 1994, dargestellt sind die Daten beider Meßtechniken. Die gemessenen Tagesgänge waren korreliert mit der Primärproduktionsrate von OH-Radikalen aus der Ozonphotolyse. Abweichungen von diesem Verhalten gab es jedoch in den frühen Morgenstunden und am Nachmittag. Hier scheint die Photolyse von Formaldehyd einen nennenswerten Beitrag zur OH-Radikalkonzentration zu liefern (Brandenburger et al. 1998).

Peroxiacetylnitrat (PAN) zeigte auf Grund seiner photochemischen Bildung einen stark ausgeprägten Tagesgang mit Maxima am späten Nachmittag und Minima in der Nacht. Für PAN wurden auch erstmalig die Depositionsgeschwindigkeit bestimmt. Eine Bilanzierung der lokalen PAN-Konzentrationen zeigte, daß der berechnete Anstieg während des Tages den tatsächlich beobachteten überstieg. Als Grund für die erhöhte PAN-Produktion wird der Abbau der oben erwähnten hohen

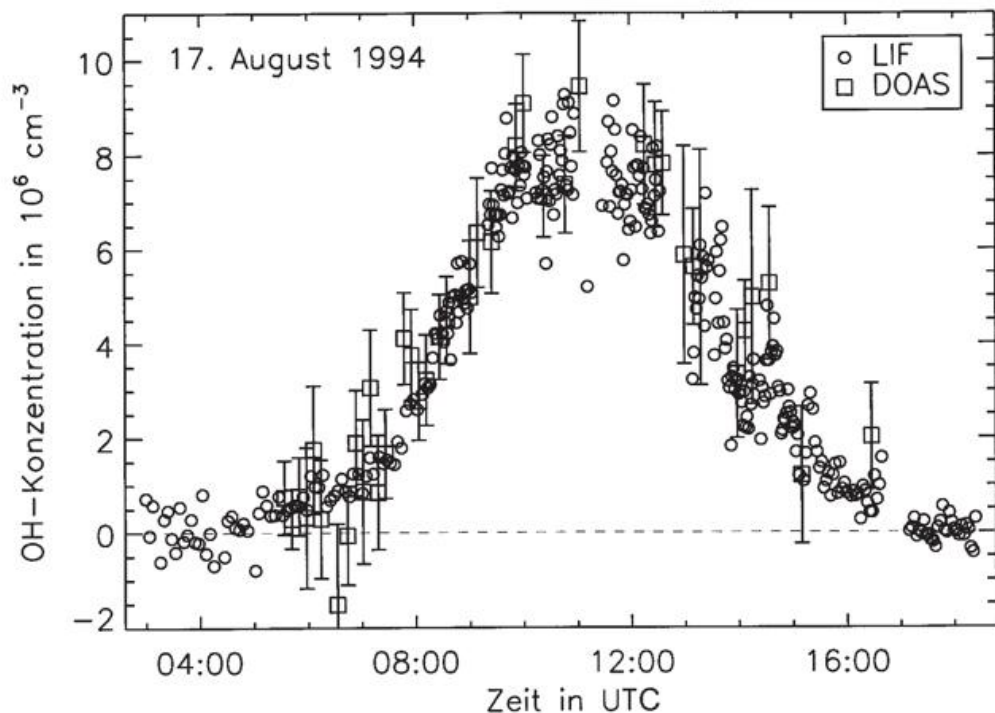


Abb. 7-16.

Tagesgang der OH-Konzentration am 17. August 1994 gemessen mit LIF (offene Kreise) und DOAS (offene Quadrate). Die Zeit ist in UTC angegeben, Sonnenaufgang und -untergang waren um 4:00 UTC bzw. um 18:40 UTC. Aus: Hofzumahaus et al. (1998).

Acetaldehyd-Emissionen vermutet. Die Berechnungen zeigen, daß aus den beobachteten Luftmassen PAN in erheblichen Mengen heraustransportiert wurde. Da PAN eine Reservoir-Substanz für NO_x und HO_x -Radikale darstellt, ergibt sich hier eine Senke für diese Verbindungen (Schrimpf et al. 1998).

Ozon zeigte während der gesamten Kampagne einen ausgeprägten Tagesgang mit Maxima am Nachmittag und Minima in der Nacht. Die Ozonkonzentrationen korrelierten stark mit der Höhe der Inversionsschicht. Bei geringen Inversionshöhen während der Nacht sank die Ozonkonzentration drastisch, vornehmlich infolge der trockenen Deposition. Die aus dem Boden emittierten NO -Mengen führten ebenfalls zu einem Ozonabbau. Bei einer angenommenen Höhe der Inversionsschicht von 100 m wurde ein Ozonabbau von 2,5 ppb/h berechnet. Häufig wurde am Morgen ein starker Ozonanstieg von bis zu 10 ppb/h beobachtet. Die Bildung von Ozon aus der Oxidation flüchtiger organischer Verbindungen, die zu 3 - 4 ppb/h berechnet wurde, reichte nicht aus, um diesen Anstieg zu erklären. Es wird angenommen, daß durch das Aufbrechen der Inversionsschicht ozonreiche Luft aus höheren Schichten zugeführt wurde, was zu dem beobachteten Anstieg führte (Brauers et al. 1998).

Darüber hinaus wurden während der Kampagne Photolysefrequenzen von NO_2 , O_3 , salpetriger Säure und Formaldehyd über Messungen mit UV-Spektralradiometrie bestimmt. Photolyseraten von NO_2 und O_3 wurden zusätzlich noch mit Hilfe von Filtradiometern gemessen (Kraus et al. 1998).

5.4 Zusammenfassung

Mit der POPCORN-Kampagne wurde ein einmaliger Datensatz an Spurengaskonzentrationen, meteorologischen und physikalischen Parametern gewonnen.

Es zeigte sich, daß Mais nur eine geringe Quelle für „typische“ biogene VOC darstellt. Völlig unerwartet war die Beobachtung, daß Mais nach längerer Trockenheit eine erhebliche Quelle für Formaldehyd und Acetaldehyd darstellt. Die Photolyse von Formaldehyd erwies sich als nicht unerhebliche zusätzliche Quelle für OH-Radikale, der photochemische Abbau von Acetaldehyd führte zu einer vermehrten Bildung von Peroxyacetylnitrat, einer Reservoirsubstanz für HO_x - und NO_x -Radikale.

Zum ersten Mal wurden zwei Meßtechniken gleichzeitig zur Messung von OH-Radikalkonzentrationen erfolgreich eingesetzt und miteinander verglichen.

Eine intensive Analyse der Ergebnisse ergab, daß die Spurengasbilanzen nicht geschlossen werden konnten, da die Flüsse von Spurengasen in und aus dem Meßgebiet nicht gemessen wurden. Die Ergebnisse erlaubten aber, unter Berücksichtigung des Kenntnisstandes über die chemischen Prozesse in der Atmosphäre, den Nettoein- bzw. -austrag von Spurengasen aus dem Meßgebiet abzuschätzen.

Die Ergebnisse dieser Studie erlauben einen quantitativen Vergleich der Einflüsse unterschiedlicher Spurengase auf die troposphärische Photochemie unter realistischen Bedingungen. Erstmals konnten grundlegende Abhängigkeiten der OH-Radikalkonzentration von der UV-Strahlung und der NO_x -Konzentration aufgeklärt werden.

Überraschenderweise zeigte es sich, daß die Ozonbildung während POPCORN VOC- und nicht NO_x -limitiert war. Sollte diese Beobachtung repräsentativ sein, hätte dies u.U. erhebliche Konsequenzen für zukünftige Reduktionsstrategien. In diesem Fall müßten, um die lokalen Ozonspitzenwerte zu verringern, die VOC-Emissionen großräumig reduziert werden. Dies ist natürlich nur für die Emissionen anthropogener VOC möglich.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß sich mit gut angelegten Meßkampagnen, wie der oben beschriebenen, viele Fragestellungen zur Chemie der Troposphäre erfolgreich bearbeiten lassen.

6 Schlußfolgerungen

Anhand der hier aufgeführten Beispiele von Feldexperimenten wird deutlich, welcher Aufwand notwendig ist, um zu einem quantitativ belegten Verständnis der Vorgänge in der Atmosphäre zu gelangen. Wenn man einen sehr strengen Maßstab anlegt, so muß man sogar feststellen, daß die Anstrengungen, die für eine belastbare Quantifizierung der beteiligten Prozesse unternommen werden, im Vergleich zur Komplexität der Natur noch bei weitem nicht ausreichen. Hier ist zu häufig ein der Problemstellung nicht entsprechender Kompromiß zwischen Notwendigkeit und Machbarkeit in Bezug auf die eingesetzten finanziellen und gerätespezifischen Ressourcen die Ursache für den relativ langsamen Fortschritt der quantitativ belastbaren Ergebnisse.

Trotzdem ist festzuhalten, daß in relativ kurzer Zeit das Wissen über viele Einzelaspekte, die zum Gesamtbild der physikalischen und chemischen Einflüsse auf die Zusammensetzung und die Belastung der Luft mit Fremdstoffen beitragen, enorm zugenommen hat. Ähnlich wie beim Verständnis der Wettervorgänge ist es noch ein weiter Weg von einem prinzipiellen Verständnis der Abläufe, z.B. zum generellen Lebenszyklus und zum Grundmuster eines Vorgangs, zu einer operationellen Vorhersage zu gelangen.

Ähnliches war auch im rein dynamischen Bereich der Atmosphäre zu beobachten. Bis von einem prinzipiellen Verständnis über den Lebenszyklus eines Tiefdruckgebiets eine quantitativ belastbare Beschreibung im Rahmen der Wettervorhersage erreicht werden konnte, mußte ein mühevoller Weg zurückgelegt werden. Die Feldexperimente haben einen entscheidenden Anteil daran, daß wir uns gegenwärtig an der Schwelle befinden, an der der operationelle Einsatz der Modelle für eine Prognose des Photosmogs möglich wird.

Literatur

- BECKER, K.H., 2000: BMBF-Verbundvorhaben Troposphärenforschung, Leitthema 3: Prozeßstudien zur Oxidantienbildung und Oxidationskapazität, Zwischenbericht 1999/Endbericht, Band 2: Feldexperiment BERLIOZ; Bergische Universität – GH Wuppertal.
- BECKER, K.H., B. DONNER, S. GÄB, 1999: BERLIOZ: A Field Experiment within the German Tropospheric Research Program (TFS), in Proceedings of EUROTRAC Symposium 98 Band 2, 669-672, WIT Press, Southampton.
- BENNING, L., A. WAHNER, 1998: Measurements of Atmospheric Formaldehyde (HCHO) and Acetaldehyde (CH₃CHO) during POPCORN 1994 using 2,4-DNPH coated silica Cartridges, *J. Atmos. Chem.*, 31, 105-117.
- BRANDENBURGER, U., T. BRAUERS, H.-P. DORN, M. HAUSMANN, D. H. EHHALT, 1998: In-situ Measurement of tropospheric hydroxyl Radicals by folded long-path laser absorption during the Field Campaign POPCORN in 1994, *J. Atmos. Chem.*, 31, 181-204.
- BRAUERS, T., H.-P. DORN, H. KOCH, A. B. KRAUS, C. PLAB-DÜLMER, 1998: Meteorological Aspects, Ozone, and solar Radiation Measurements during POPCORN 1994, *J. Atmos. Chem.*, 31, 33-52.
- CORSMEIER, U., N. KALTHOFF, B. VOGEL, M. U. HAMMER, F. FIEDLER, CH. KOTTMEIER, A. VOLZ-THOMAS, S. KONRAD, K. GLASER, B. NEININGER, M. LEHNING, W. JAESCHKE, M. MEMMESHEIMER, B. RAPPENGLÜCK, G. JAKOBI, 2001: Ozone Budget and PAN Formation Inside and Outside of the Berlin Plume – Process Analysis and Numerical Process Simulation, *J. Atmos. Chem.* (eingereicht).
- FIEDLER, F., 1989: TRACT Project Description, EUROTRAC ISS, Garmisch-Partenkirchen.
- FIEDLER, F., 1992: TRACT Operational Plan, Inst. Meteorol. Klimaforsch., Universität Karlsruhe/Forschungszentrum Karlsruhe, 66 Seiten.
- FIEDLER, F., P. BORRELL, 2000: TRACT - Transport of Air Pollutants over Complex Terrain, in Exchange and Transport of Air Pollutants over Complex Terrain and the Sea, (Hrsg. S. Larsen, F. Fiedler, P. Borrell), 223-268, Springer Verlag Berlin · Heidelberg.
- GEIGER, H., I. BARNES, K. H. BECKER, B. BOHN, T. BRAUERS, B. DONNER, H.-P. DORN, M. ELEN, C. M. FREITAS DINIS, D. GROSSMANN, H. HASS, H. HEIN, A. HOFFMANN, L. HOPPE, F. HÜLSEMANN, D. KLEY, B. KLOTZ, H. G. LIBUDA, T. MAURER, D. MIHELICIC, G. K. MOORTGAT, R. OLARIU, P. NEEB, D. POPPE, L. RUPPERT, C. G. SAUER, O. SHESTAKOV, H. SOMNITZ, W. R. STOCKWELL, L. P. THÜNER, A. WAHNER, P. WIESEN, F. ZABEL, R. ZELLNER, C. ZETZSCH, 2001: Chemical Mechanism Development: Laboratory Studies and Model Applications, *J. Atmos. Chem.* (angenommen).
- HOFZUMAHAUS, A., U. ASCHMUTAT, U. BRANDENBURGER, T. BRAUERS, H.-P. DORN, M. HAUSMANN, M. HEBLING, F. HOLLAND, C.-. PLAB-DÜLMER, D. H. EHHALT, 1998: Intercomparison of tropospheric OH Measurements by different Laser techniques during the POPCORN Campaign 1994, *J. Atmos. Chem.*, 31, 227-246.
- HOLLAND, F., U. ASCHMUTAT, M. HEBLING, A. HOFZUMAHAUS, D. H. EHHALT, 1998: Highly time resolved Measurements of OH during POPCORN using laser-induced fluorescence Spectroscopy, *J. Atmos. Chem.*, 31, 205-225.
- JUNKERMANN, W., C. BRÜHL, D. PERNER, E. ECKSTEIN, T. TRAUTMANN, B. FRÜH, R. DLUGI, T. GORI, A. RUGGABER, J. REUDER, M. ZELGER, A. HOFZUMAHAUS, B. BOHN, A. KRAUS, S. MÖLDERS, F. ROHRER, D. BRÜNING, G. K. MOORTGAT, A. HOROWITZ, J. TADI, 2001: Actinic Radiation and Photolysis Processes in the Lower Troposphere: Effect of Clouds and Aerosols, *J. Atmos. Chem.* (eingereicht).
- KANTER, H., V. A. MOHNEN, A. VOLZ-THOMAS, K. GLASER, H. WEITKAMP, F. SLEMR, 2001: Integrated Quality Assurance in TFS for Inorganic Compounds, *J. Atmos. Chem.* (eingereicht).
- KONRAD, S., 2000: Untersuchungen zur Radikalchemie in der Abluftfahne von Berlin - ein Beitrag zum Feldexperiment BERLIOZ, Dissertation, Bergische Universität GH Wuppertal.
- KOPPMANN, R., C. PLAB-DÜLMER, B. RAMACHER, J. RUDOLPH, H. KUNZ, D. MELZER, P. SPETH, 1998: Measurements of Carbon monoxide and nonmethane Hydrocarbons during POPCORN, *J. Atmos. Chem.*, 31, 53-72.
- KRAUS, A., A. HOFZUMAHAUS, 1998: Field Measurements of atmospheric photolysis Frequencies for O₃, NO₂, HCHO, CH₃CHO, H₂O₂ and HONO by UV Spectroscopy, *J. Atmos. Chem.*, 31, 161-180.
- KURTENBACH, R., R. ACKERMANN, K. H. BECKER, A. GEYER, A. GOMES, J. C. LÖRZER, U. PLATT, P. WIESEN, 2001: NMVOC and NO_x Measurement in a Road Traffic Tunnel and in a City Center, *J. Atmos. Chem.* (eingereicht).
- PLAB-DÜLMER, C., T. BRAUERS, J. RUDOLPH, 1998: POPCORN: A field Study of Photochemistry in North-Eastern Germany, *J. Atmos. Chem.*, 31, 5-31.
- PLATT, U., B. ALICKE, R. DUBOIS, A. GEYER, A. HOFZUMAHAUS, F. HOLLAND, D. MIHELICIC, T. KLÜPFEL, B. LOHRMANN, H. W. PÄTZ, D. PERNER, F. ROHRER, J. SCHÄFER, S. SCHLOMSKI, J. STUTZ, 2001: Free Radicals and Fast Photochemistry during BERLIOZ, *J. Atmos. Chem.* (eingereicht).
- ROHRER, F., D. BRÜNING, E. S. GROBLER, M. WEBER, D. H. EHHALT, R. NEUBERT, W. SCHÜSSLER, I. LEVINE, 1998: Mixing Ratios and photostationary State of NO and NO₂ observed during the POPCORN Field Campaign at a rural site in Germany, *J. Atmos. Chem.*, 31, 119-137.
- SCHRIMPF, W., K. LIENAERTS, K. P. MÜLLER, R. KOPPMANN, J. RUDOLPH, 1998: Peroxyacetyl Nitrate (PAN)

- measurements during the POPCORN Campaign. *J. Atmos. Chem.*, 31, 139-159.
- VOLZ-THOMAS, A., J. SLEMR, S. KONRAD, T. SCHMITZ, E. APEL, V. A. MOHNEN, 2001: Quality Assurance of Hydrocarbon Measurements for the German Tropospheric Research Focus (TFS), *J. Atmos. Chem.* (eingereicht).
- WEDEL, A., K. P. MÜLLER, M. RATTE, J. RUDOLPH, 1998: Measurements of volatile organic Compounds (VOC) during POPCORN 1994 applying a new on-line GC-MS-technique, *J. Atmos. Chem.*, 31, 73-103.
- WEITKAMP, C., G. BAUMBACH, K. H. BECKER, S. BRAUNSCHOEN, H. BURGER, S. DINEV, R. FABIAN, S. FREY, K. FRITZSCHE, K. GLASER, J. GLAUER, F. HERB, F. IMMELER, W. JUNKERMANN, H. J. KANTER, C. LINDEMANN, A. LOESCHER, V. A. MOHNEN, D. MÖLLER, B. NEIDHART, R. OLARIU, E. REIMER, V. SCHMIDT, G. SCHUBERT, M. SPITTLER, U. VOGT, D. WEIDAUER, L. WINDHOLZ, L. WÖSTE, 2000: Wie richtig sind Lidarmessungen der Ozonverteilung?, *Gefahrenstoffe – Reinhalt. Luft.*, 60, 279-284.
- WINKLER, J., R. P. BLANK, K. GLASER, M. HABRAM, C. JAMBERT, W. JAESCHKE, S. KONRAD, R. KURTENBACH, P. LENSCHOW, P. PERROS, M. PESCH, H.-J. PRÜMKE, B. RAPPENGLÜCK, T. SCHMITZ, F. SLEMR, A. VOLZ-THOMAS, B. WICKERT, 2001: Nonmethane Hydrocarbon Measurements in BERLIOZ: Characterization of the Ground-based Measurement Sites and Emission Ratios Derived from Airborne Measurements, *J. Atmos. Chem.* (eingereicht).
- ZIMMERMANN, H., 1995: Field Phase Report of the TRACT field Measurement Campaign, EUROTRAC ISS, Garmisch-Partenkirchen, 196 Seiten.

1 Einleitung

Ozon ist ein Gas, das für biologische Strukturen sowohl der Pflanzen als auch der Tiere und des Menschen eine außergewöhnliche Aggressivität besitzt. Die mittlere Ozonkonzentration in unserer erdnahen Umgebungsluft hat in den letzten 20 Jahren bis etwa 1995 mit einigen Schwankungen jährlich etwa um 1 % zugenommen. Es ist deswegen sehr verständlich, daß sich die Öffentlichkeit dieses Themas annimmt.

Der Bürger kann die unterschiedlichen, auf den ersten Blick widersprüchlich erscheinenden Aspekte des Ozons jedoch nur schwer in Einklang bringen: In der Stratosphäre schützt Ozon unsere Erde, in der Troposphäre ist es schädlich; bis vor wenigen Jahrzehnten wurde Ozon als etwas Gesundes angesehen und Ozon wird auch heute noch als Heilmittel angeboten, jetzt soll es gesundheitsschädlich sein.

Zum Verständnis der verschiedenen Ozonwirkungen sind eingehende Vorkenntnisse erforderlich, die ihrerseits jedoch eine intensive Beschäftigung mit diesem Thema erfordern; ohne solche Vorkenntnisse ist eine sachliche Diskussion kaum möglich. Die Unsicherheit bei diesem Thema führt in der Bevölkerung schnell zu dem Gefühl einer unausweichlichen Bedrohung.

2 Besonderheiten des Ozons in der Troposphäre

Ein Teil des Ozons entsteht auf natürlich Weise, ohne daß der Mensch etwas dazutut; bei vertikaler Luftströmung können auch vorübergehend große Mengen von Ozon aus der Stratosphäre in bodennahe Schichten gelangen (siehe Kapitel 6). Die Hälfte des erdnahen Ozons entsteht derzeit aber in Verbindung mit der Verbrennung fossiler Energieträger und wird täglich neu aus Stickstoffdioxid und Kohlenwasserstoffen gebildet, Einzelheiten dazu siehe Kapitel 2. Voraussetzung für die Neubildung von Ozon sind hohe solare Bestrahlungsstärken. Ozon ist ein recht instabiles Molekül. Es zerfällt leicht, wenn es mit irgendwelchen Oberflächenstrukturen in Berührung kommt. Das bedeutet, daß es sich z.B. in geschlossenen Räumen nicht lange hält; die Ozonkonzentrationen innerhalb von Büro- oder Wohnräumen betragen deswegen üblicherweise nur etwa 20% derjenigen Konzentration, die in der freien Luft außerhalb herrschen.

3 Wirkungen des Ozons auf den Menschen

Bei dem Zerfall des Ozons wird vorübergehend ein einzelnes Sauerstoffatom freigesetzt. Wenn dieses freie Sauerstoffatom mit biologischen Strukturen in Berührung

kommt, führt dies zu einer intensiven molekularen Reaktion, die auch eine Zellschädigung zur Folge haben kann.

3.1 Theoretische Betrachtungen

Ozon ist ein instabiles Molekül, das besonders bei Temperaturen von über 37 °C relativ leicht zerfällt, und dabei ein aggressives Sauerstoffatom freisetzt. Einen solchen Zerfall kann auch eine Berührung des Ozonmoleküls mit der Körperoberfläche auslösen. Die Haut des Menschen ist allerdings gut geschützt, so daß hier keine Schäden zu erwarten sind. Die Schleimhäute sind jedoch empfindlicher: Die Oxygenierung durch das freiwerdende Sauerstoffatom führt hier zu Reizungen besonders in der Nase und dem Rachen.

Nur ein kleiner Teil des Ozons gelangt bei der Einatmung in die tieferen Atemwege. Auch hier zerfällt das Molekül und entfaltet seine Wirkung an der Oberfläche der Bronchien; diese sind jedoch durch mehrere Schleimschichten bedeckt und somit für das freie Sauerstoffatom nicht direkt zugänglich. Es ist allerdings möglich, daß in der oberflächlichen Schleimschicht durch die starke Oxygenierung Moleküle entstehen, die dann ihrerseits eine Entzündungsreaktion in der Wand der Bronchien verursachen.

Ozon ist nur sehr wenig wasserlöslich. Es kann deswegen nicht in relevanter Menge in den Körper aufgenommen werden (Crapo et al. 1992) und somit auch nicht auf dem Blutwege zu anderen Organen transportiert werden. Ozon kann also nur an den Oberflächen des Körpers, und hier besonders an den Schleimhäuten, Veränderungen hervorrufen.

3.2 Wissenschaftliche Untersuchungsergebnisse

3.2.1 Beschwerden

Reizungen der Nasenschleimhaut und des Rachens können bei einzelnen Personen bereits bei niedrigen Ozonkonzentrationen auftreten. An Beschwerden werden von einigen Personen Husten und eventuell auch ein Engegefühl in der Brust angegeben.

Die Empfindlichkeit gegenüber Ozon ist beim Menschen sehr unterschiedlich ausgeprägt. Es gibt Menschen, die bereits auf sehr geringe natürlich vorkommende Ozonkonzentrationen reagieren, und andere, die sehr hohe Konzentrationen ohne Beschwerden tolerieren. Eine unterste Konzentration, die mit Sicherheit bei niemandem zu einer solchen Reizung führt, ist nicht bekannt.

3.2.2 Lungenfunktion

Bereits vor über 25 Jahren sind Untersuchungen der Lungenfunktion bei verschiedenen Ozonbelastungen erfolgt. Bei vielen Personen haben sich Änderungen der Lungenfunktion erst bei Konzentrationen von etwa $1000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon (Hazucha et al. 1989) gezeigt. Man fand dann bei weiteren Untersuchungen heraus, daß die Reaktionen bereits bei deutlich geringeren Konzentrationen auftraten, wenn die Personen zusätzlich körperlich belastet wurden (Kulle et al. 1985; Folinsbee et al. 1988; Lippmann 1989). Bei leichter Belastung war die Lungenfunktion allerdings in einigen Studien selbst bei einer Ozonbelastung von $1000 \mu\text{g}/\text{m}^3$ nicht eingeschränkt (Kerr et al. 1975) teils jedoch um 10% verringert (Hackney et al. 1975; Folinsbee et al. 1977)

In einer Metaanalyse¹ hat Hazucha(1987) die wichtigsten Studien zusammengefaßt (Abb. 8-1). Man sieht, daß bei zunehmender Belastung (Ozonkonzentration oder körperliche Belastung) eine größere Einschränkung der Lungenfunktion feststellbar ist. Signifikant wird eine solche Einschränkung unter leichter körperlicher Belastung bei etwa $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und unter starker körperlicher Belastung bei etwa $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Unter Bedingungen, wie sie auch in Deutschland gelegentlich auftreten können, haben Folinsbee et al. 1994 funktionsanalytische Messungen durchgeführt. Die untersuchten Personen wurden 6 Stunden lang mit $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon exponiert und dabei jede Stunde körperlich stark belastet. Es fand sich eine am ersten Tag der Belastung mit der Zeit zunehmende Einschränkung der FEV1² bis zu 10%. Bei nur 1-stündiger Belastung findet sich keine Änderung der FEV1 bei dieser Konzentration bzw. sogar bei viel höheren Konzentration ($600 \mu\text{g}/\text{m}^3$)

(Koenig et al. 1985; McDonnell et al. 1985a; Reisenauer et al. 1988; Weymer et al. 1994; Koenig et al. 1990).

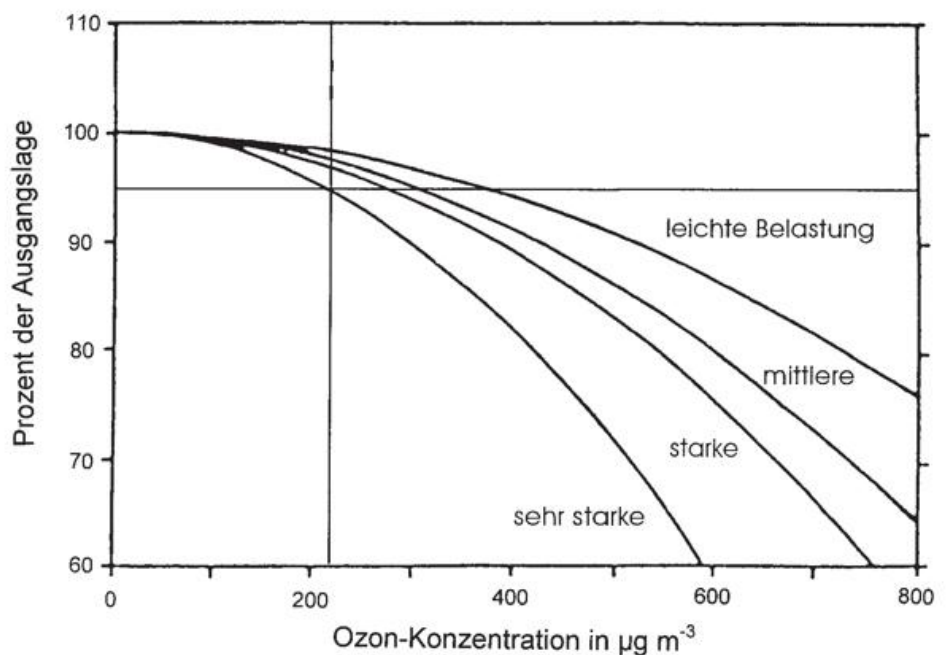
Die Einschränkung der Lungenfunktion läßt sich mit einem lokalen Betäubungsmittel weitgehend verhindern (Hazucha et al. 1989). Bemerkenswert ist weiterhin, daß diese sofort auftretende Einschränkung der Lungenfunktion nicht mit einer Änderung der Lungenmechanik einhergeht (Hazucha et al. 1989); die Dehnbarkeit der Lunge ändert sich nicht signifikant. Man muß also annehmen, daß diese Einschränkung nicht durch eine direkte Einwirkung des Ozons in der Lunge zustande kommt, sondern eher durch eine reflektorisch behinderte tiefe Einatmung (Hazucha et al. 1989; Beckett et al. 1985; Gong et al. 1988).

3.2.3 Reagibilität

Mehrere Untersucher fanden heraus, daß die Atemwege empfindlicher reagieren, wenn sie eine längere Zeit mit Ozon belastet worden sind (Holtzman et al. 1979; Folinsbee et al. 1994; Horstman et al. 1990). Unter starker körperlicher Belastung ist eine Zunahme der bronchialen Empfindlichkeit bei Konzentrationen von $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ gefunden worden (Folinsbee et al. 1994). Auffällig ist, daß es anscheinend bei dieser vermehrten Reagibilität keinen Gewöhnungsprozeß wie z.B. bei den o. g. Funktionsparametern gibt. Die vermehrte Empfindlichkeit geht jedoch nach längerer ozonfreier Zeit wieder auf das vorherige Maß zurück (Folinsbee et al. 1986). Es entstehen also keine Dauerschäden.

Auf diese vermehrte Empfindlichkeit ist es wohl auch zurückzuführen, daß Asthmatiker nach Ozonbelastung stärker (jedoch nicht häufiger) auf Allergene reagieren (Molfino et al. 1991). Es genügt bereits eine geringere

Abb. 8-1: FEV1 bei verschiedenen Ozon-Konzentrationen und bei verschiedenen körperlichen Belastungen (zweistündige Exposition), nach Hazucha (1987), Auswertung von 24 Studien. Bei etwa $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ etwa 5% Funktionsminderung unter sehr starker körperlicher Belastung.



1 Zusammenfassende Auswertung mehrerer ähnlicher wissenschaftlichen Studien.

2 Meßwert aus der Lungenfunktion: Dasjenige Volumen, das nach tiefer Einatmung maximal in 1 s ausgeatmet werden kann. (FEV1 = Forciertes expiratorisches 1 s-Volumen)

Menge eines Allergens, um die gleiche Störung der Lungenfunktion auszulösen, für die vor der Ozonbelastung mehr Allergen erforderlich war. Allerdings findet sich in der Nase keine vermehrte Empfindlichkeit gegenüber einer allergieauslösenden Substanz, wenn vorher mit Ozon belastet wurde (Bascom et al. 1990). Da Asthmatiker jedoch nicht häufiger auf Ozon mit Beschwerden bzw. mit Funktionseinschränkung reagieren, ist unklar, welche Bedeutung diese vermehrte Reagibilität der Atemwege hat. Bei der sehr weit verbreiteten chronisch obstruktiven Bronchitis fand sich auch unter körperlicher Belastung selbst bei 400 bzw. 600 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ keine eindeutige Störung der Lungenfunktion (Kehrl et al. 1985; Solic et al. 1982).

Die vermehrte Empfindlichkeit der tieferen Atemwege bildet sich besonders deutlich erst am 2. Tag der Ozonbelastung heraus. Sie unterscheidet sich deutlich von der oben beschriebenen, sofort auftretenden Änderung der Lungenfunktion. Man muß also eine duale Reaktion auf Ozon annehmen:

1. die sofortige Reaktion, die wahrscheinlich keine direkte Veränderung in der Lunge verursacht, und bei der sich nach 3 Tagen eine Gewöhnung einstellt (siehe 3.2.5).
2. entzündliche Reaktionen in der Lunge, besonders ab dem 2. Tag nach der Ozonbelastung, für die es keine solche Gewöhnung gibt.

Beide Reaktionen sind jedoch rückbildungsfähig (siehe 3.2.7), so daß bei den in Deutschland auftretenden Ozonkonzentrationen nicht mit relevanten Dauerschäden zu rechnen ist.

3.2.4 Variabilität

Im Gegensatz zu den meisten anderen Schadstoffen in der Luft ist anscheinend für Ozon typisch, daß es große Unterschiede im Ausmaß der Reaktion gibt (McDonnell et al. 1985b; Horstman et al. 1990). Dies ist besonders für die sofortige Reaktion nachgewiesen. Da die sofortige Reaktion jedoch wahrscheinlich nicht durch direkte Einwirkung des Ozons auf die Lunge bedingt ist, ist die Relevanz dieser Variabilität unklar. Auffällig ist auch, daß die Beschwerden deutlich geringer sind, als man bei solchen z.T. doch deutlichen Veränderungen der Lungenfunktion erwarten würde.

3.2.5 Gewöhnung bei wiederholten Ozonexpositionen

Bei mehrfacher Exposition gegenüber Ozon zeigt sich vorübergehend eine Gewöhnung (Folinsbee et al. 1980;

Folinsbee et al. 1986; Hackney et al. 1977; Linn et al. 1982; Farrell et al. 1979). Nach 3 Tagen einer täglich 6-stündigen Exposition mit 240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ und jeweils mehrfacher körperlicher Belastung werden die Symptome durch nochmalige Exposition nicht mehr ausgelöst (Folinsbee et al. 1994). Ähnlich verhält es sich mit den akut auftretenden Reaktionen der Lungenfunktion.

Auf welche Weise es bei wiederholter Exposition gegenüber Ozon zu dieser Gewöhnung kommt, ist unbekannt. Einerseits wird argumentiert, daß zumindest die Sofortwirkung des Ozons eher über einen Reflexmechanismus zu der meßbaren Änderung der Lungenfunktion führt, ohne daß relevante Änderungen in der Lunge selber auftreten (Hazucha et al. 1989); andererseits gibt es aus Tierversuchen Hinweise darauf, daß es zu einer geringeren Differenzierung von Pneumozysten³ II in Pneumozysten I kommt, und dadurch die Oberfläche der Lungenbläschen geschützt würde. Eine Verschlechterung des Gasaustauschs in den Lungenbläschen ist nicht zu messen gewesen (Linn et al. 1979). Im Unterschied zu den akut auftretenden Reaktionen bleibt die vermehrte Reagibilität nach Ozonexposition anscheinend für längere Zeit bestehen; nach wiederholter Exposition verringert sich die vermehrte Reagibilität nicht (Folinsbee et al. 1994). Der vermehrten Reagibilität des Bronchialsystems scheint also ein anderer Mechanismus zugrunde zu liegen als bei der akut auftretenden Lungenfunktionsänderung. In einer Langzeitstudie konnte nachgewiesen werden, daß diese vermehrte Reagibilität eine jahreszeitliche Änderung durchmacht: Bei denjenigen Personen, die auf Ozon reagierten, fand sich im Frühjahr auf eine zweistündige Ozonexposition von 360 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit intermittierender Belastung eine deutliche Reaktion, im Sommer und im Herbst war diese Reaktion jedoch weitgehend verschwunden (Hackney et al. 1994).

Zusammenfassend sprechen die zitierten Untersuchungen dafür, daß sich der Mensch an die in der Umgebungsluft auftretenden Ozonbelastungen gewöhnt; die Reaktion auf Ozon ist vorübergehender Natur und bildet sich nach ozonfreier Zeit wieder zurück. Die Untersuchungen sprechen gegen einen Dauerschaden.

3.2.6 Zellbiologische Veränderungen

Es finden sich zahlreiche Untersuchungen, bei denen zellbiologische Veränderungen nach einer Ozonbelastung gefunden wurden. Bei Spülungen der Lunge sieht man z.B. bei 6-stündiger Exposition gegenüber 120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon und leichter körperlicher Belastung entzündliche Reaktionen (Devlin et al. 1991). Nach allerdings recht hoher Exposition (800 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon) fanden sich auch Hinweise auf Vorläufer von Narbenbildungen (Koren et al. 1989). Bei 1200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon sah man bei

3 Pneumozysten sind Zellen, die sich an der Oberfläche der Lungenbläschen aufhalten. Pneumozysten I kleiden die Oberfläche aus, während Pneumozysten II mehr eine lokalisierte Bedeutung haben.

Ratten nach 12-stündiger Exposition Funktionsstörungen der Makrophagen⁴ in der Lunge (Donaldson et al. 1991). Auch in der Nase sind nach Ozonexposition deutliche entzündliche Veränderungen gefunden worden (Frischer et al. 1993; McBride et al. 1994; Graham et al. 1988); die Reaktion auf eine anschließende Antigenbelastung änderte sich jedoch nicht (Bascom et al. 1990).

Es lassen sich also auch bei relativ niedrigen Ozonbelastungen entzündliche Veränderungen nachweisen. Welche Bedeutung diese Veränderungen haben, ist jedoch noch unklar. Sie sind offensichtlich bei unseren Ozonkonzentrationen weitgehend rückbildungsfähig (siehe 3.2.7).

3.2.7 Rückbildungsfähigkeit der ozonbedingte Veränderungen

In Tierversuchen sind unterschiedliche Ergebnisse gefunden worden. Nach einjähriger Dauerexposition mit relativ hohen Ozonkonzentrationen (1000 µg/m³) fanden sich bei mehreren Parametern deutliche Veränderungen. Eine darauffolgende ozonfreie Zeit von 3 Monaten führte zu einer vollständigen Rückbildung dieser Veränderungen (Gross et al. 1987).

Beim Menschen konnte ebenfalls eine Normalisierung der Lungenfunktion bereits 1 Tag nach Beendigung einer Exposition festgestellt werden (Horstman et al. 1990). Auch die vermehrte Reagibilität bildet sich nach 3 Tagen (Folinsbee et al. 1986) bzw. spätestens nach 1 Woche zurück (Linn et al. 1982). Die Tatsache, daß man bei Verlaufsstudien z.B. bei Kindern in Ferienlagern (siehe 3.2.8) eine Korrelation zwischen Ozonwerten und der Lungenfunktion findet, beweist ebenfalls eine Rückbildungsfähigkeit der fraglichen Veränderungen.

Der unter 3.2.5. beschriebene Gewöhnungseffekt könnte auch Ausdruck einer Schädigung der Lunge sein. Deshalb ist die Frage wichtig, ob dieser Effekt rückbildungsfähig ist. Für die akut auftretende Änderung der Lungenfunktion ist eine solche Rückbildung nachgewiesen: Nach etwa 2 Wochen ohne Ozonexposition findet sich wieder die gleiche Reaktion wie bei der ersten Exposition (Horvath et al. 1981).

3.2.8 Untersuchungen an größeren Bevölkerungsgruppen (Epidemiologie)

Es gibt zwei grundsätzliche Ansatzpunkte für solche epidemiologischen Untersuchungen:

- Kurzeiteffekte: Es werden z.B. Kinder in Ferienlagern untersucht, wobei jeweils die Beschwerden bzw. die Lungenfunktionswerte gegenüber den jeweiligen Ozonwerten korreliert werden.

- Langzeiteffekte: Es werden mindestens 2 verschiedene Bevölkerungsgruppen untersucht, die in unterschiedlich belasteten Gebieten wohnen und dort aufgewachsen sind.

3.2.8.1 Kurzeiteffekte

In den Ferienlagern findet man in den meisten Studien bei höheren Ozonwerten auch vermehrte Beschwerden und verschiedentlich auch eine leichte Einschränkung von Parametern der Lungenfunktion (Berry et al. 1991, Higgins et al. 1990; Kinney et al. 1989; Spektor et al. 1988). Erste Effekte sind dabei bereits bei Konzentrationen von 120 µg/m³ gesehen worden (Spektor et al. 1988). Bei 300 µg/m³ fand sich bei Kindern eine deutliche Verminderung des „Peak flow“⁵ (Spektor et al. 1991). Bei Kindern aus der Schweiz konnte eine Verschlechterung der maximalen Ausatemgeschwindigkeit bereits bei weniger als 160 µg/m³ und nur 10 Minuten körperlicher Belastung festgestellt werden (Braun-Fahrlaender et al. 1994). Dieser Meßwert ist allerdings wenig zuverlässig und wird deswegen von den meisten Studien nicht durchgeführt.

Da die Schwankungsbreite der Meßmethode deutlich größer ist, bleiben die Funktionswerte absolut betrachtet im Normbereich; die Änderungen lassen sich also anhand einer großen Anzahl von Kindern zwar nachweisen, die Relevanz dieser Änderung ist jedoch gering. Aus der Tatsache, daß sich bei wechselnden Ozonkonzentrationen eine Korrelation fand, belegt auch die Reversibilität der Veränderungen; eine solche Korrelation setzt voraus, daß sich der jeweilige Parameter auch wieder bessert, wenn die Konzentration geringer wird.

3.2.8.2 Langzeiteffekte

Die Untersuchungen mit verschiedenen Bevölkerungsgruppen sind deswegen so schwierig, weil es zahlreiche andere Risikofaktoren (insbesondere das Zigarettenrauchen) gibt, die so geringe Unterschiede, wie sie bei Ozonbelastungen zu erwarten sind, nicht zu Tage treten lassen. Am besten eignen sich deswegen solche Bevölkerungsgruppen, deren Lebenseinstellung bestimmte Risiken ausschließen; eine solche Gruppe sind z.B. „7. Tag Adventisten“, die aus Überzeugung nicht rauchen. Es liegt eine große Kohortenstudie⁶ (Abbey et al. 1993) mit 3914 von diesen Religionsangehörigen vor, die in unterschiedlich belasteten Gegenden wohnen. Es fand sich keine signifikante Zunahme von Atemwegssymptomen bei den verschiedenen Schwellenkonzentrationen von Ozon (200, 240, 300, 400 oder 500 µg/m³). Für Asthma fand sich bei 200 µg/m³ eine etwas erhöhte Häufigkeit allerdings nur bei den Männern; das Asth-

4 Makrophagen sind Zellen an der Oberfläche der Lungenbläschen, die u.a. verschiedene Mikroorganismen aufnehmen und eventuell entsorgen können.

5 Meßwert aus der Lungenfunktion: Maximal erreichbarer Luftstrom bei einer Ausatmung.

6 Studie, bei der eine definierte Bevölkerungsgruppe über einen längeren Zeitraum wissenschaftlich untersucht wird.

ma ist insgesamt etwas stärker ausgeprägt. Die jährliche mittlere Ozonkonzentrationen betrug in den am stärksten belasteten Gebieten $135 \mu\text{g}/\text{m}^3$ und war damit weit über den bei uns üblichen Werten von etwa $25 - 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Umweltbundesamt 1994). Bei dieser Untersuchung gelang es nicht, den Einfluß des Ozons von dem Einfluß der inhalativen Staubbelastung zu trennen, da beide einen parallelen Konzentrationsverlauf hatten. Die Staubbelastung zeigte jedoch praktisch bei allen Parametern eine deutliche Korrelation, was die These unterstützt, daß die Staubbelastung einen stärkeren Einfluß hat als die Ozonbelastung (Beckett 1991).

Cohen et al. 1972 untersuchten Personen in zwei stark unterschiedlich mit Ozon belasteten Gebieten der USA: Es fand sich kein Unterschied hinsichtlich der Lungenfunktion oder der Häufigkeit von Atemwegssymptomen.

Linn et al. (1976) fanden in den beiden Städten Los Angeles und San Francisco keinen Unterschied für Husten oder Auswurf, obwohl die mittleren maximalen 1-Stunden-Konzentrationen in Los Angeles etwa 3,5 mal so hoch waren als in San Francisco. Selbst in dem am meisten belasteten Gebiet der USA an der Küste von Kalifornien waren chronische Atemwegssymptome nicht häufiger als in weniger belasteten Gebieten (Rokaw et al. 1980). Ein anderer Vergleich zwischen zwei unterschiedlich belasteten Gebieten in dieser Gegend ergab zwar einen etwas schnelleren altersbedingten Abfall der FEV₁; die klinischen Zeichen einer Atemwegskrankheit waren jedoch nicht unterschiedlich (Detels et al. 1987).

Eine Studie über die Mortalität bei verschiedenen Ozonkonzentrationen in New York und Los Angeles fand eine um 0,019% erhöhte Mortalität bei $224 \mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon (Kinney et al. 1991). Es war allerdings nicht möglich, die anderen Einflußfaktoren auszuschalten. Den größten Einfluß auf die Mortalität hatte die Temperatur. Lediglich Schwerstkranke können eventuell bei Wetterlagen mit erhöhter Ozonkonzentration vorzeitig sterben; da sich Schwerstkranke jedoch innerhalb von Räumen aufhalten, ist ein direkter Zusammenhang mit Ozon unwahrscheinlich, da es in Innenräumen kaum eine Ozonbelastung gibt (siehe Abschnitt 2)

3.2.9 Risikogruppen

Ältere Menschen scheinen weniger empfindlich auf Ozon zu reagieren (Reisenauer et al. 1988; Bedi et al. 1989; Drechsler-Parks et al. 1987). Selbst bei $600 \mu\text{g}/\text{m}^3$ fanden sich nur bei Frauen ein Anstieg des Atemwiderstandes, wobei die übrigen Werte unverändert blieben (Reisenauer et al. 1988). In einer anderen Studie wurden Personen im Alter von 60 - 89 Jahren mit einer sehr hohen Konzentration ($900 \mu\text{g}/\text{m}^3$) für 2 Stunden exponiert und gleichzeitig 20 Minuten lang körperlich belastet (Steven et al. 1989); die FVC⁷ und die FEV₁ fielen gering um weniger

als 5% (die FVC um 110 ml und die FEV₁ um 170 ml) ab. Kinder scheinen nicht empfindlicher zu sein als Erwachsene (Avol et al. 1985). Subjektiv treten sogar bei Kindern erst bei höheren Ozonbelastungen Beschwerden auf. Das Passivrauchen spielt eine wesentlich größere Rolle: in einer Längsschnittuntersuchung fand sich eine Verschlechterung der Lungenfunktion nur, wenn die Mutter Raucherin war (Castillejos et al. 1992); die Änderungen waren bei $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ allerdings weniger als 1%. Die meisten Untersuchungen belegen, daß Asthmatiker nicht häufiger auf Ozon reagieren als Gesunde; Asthmatiker zeigten selbst bei einer Ozonkonzentration von 400 bzw. $500 \mu\text{g}/\text{m}^3$ keine Verschlechterung der Lungenfunktion (Linn et al. 1978; Silverman 1979). Nur eine kürzlich veröffentlichte Studie hat eine etwas vermehrte Empfindlichkeit gefunden (Linn et al. 1994). Eine andere Untersuchung fand selbst bei $480 \mu\text{g}/\text{m}^3$ bei Asthmatikern noch keine Verschlechterung der Lungenfunktion (McBride et al. 1994).

3.2.10 Wo atmet der Mensch in unserem Kulturraum wieviel Luft ?

Da die Ozonkonzentrationen innerhalb von Räumen wesentlich geringer sind als außerhalb, spielt es bei der Einschätzung der Bedeutung einer Ozonbelastung eine große Rolle, wie lange sich der Mensch innerhalb bzw. außerhalb von Räumen aufhält. Da sich die meisten Bundesbürger im Urlaub nicht in der heimatlichen Gegend aufhalten, kommt es hinsichtlich der Bedeutung einer regionalen Ozonbelastung besonders auf diejenige Zeit an, die der Bürger nicht im Urlaub ist. Schätzungen über den Anteil, die der Bürger im Freien verbringt, liegen bei etwa 10 - 30%. Das bedeutet, daß sich der durchschnittliche Bürger etwa 70% innerhalb von Räumen aufhält, und damit in dieser Zeit wesentlich geringeren Ozonkonzentrationen ausgesetzt ist, als sie bei uns im Freien gemessen werden.

3.2.11 Ozon und Krebsentstehung

Grundsätzlich ist es vorstellbar, daß Ozon zur Krebsentstehung beitragen kann. Ozon bewirkt bei Freisetzung des 3. Sauerstoffatoms eine „Verbrennung“ auf molekularer Ebene. Bei solchen Verbrennungen von organischem Material können grundsätzlich auch krebsfördernde Substanzen entstehen. Bisher konnte der Verdacht auf eine solche Krebsförderung beim Menschen nicht ausreichend wahrscheinlich gemacht werden. Im Tierversuch gibt es jedoch einige Hinweise auf eine solche krebsfördernde Wirkung, die jedoch nur fraglich auf den Menschen übertragbar ist. Dennoch hat sich die Senatskommission der Deutschen Forschungsgemeinschaft 1995 dazu entschlossen, das Ozon vorläufig als möglich krebs erzeugende Substanz ein-

7 Meßwert aus der Lungenfunktion: Maximale Luftmenge, die nach einer tiefen Ausatmung wieder eingeatmet werden kann. (Forcierte Vitalkapazität)

zustufen, wobei eine endgültige Beurteilung aufgrund unzureichender Informationen nicht möglich ist. Eine schwerwiegende Krebsgefährdung kann jedoch mit ausreichender Sicherheit ausgeschlossen werden.

4 Zusammenfassung und Wertung der Forschungsergebnisse über Wirkungen von Ozon auf den Menschen

In Ruhe werden hohe Ozonkonzentrationen bis zu 1000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ toleriert. Bei gleichzeitiger starker körperlicher Belastung genügen jedoch bereits Konzentrationen von 180 bis 240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, um bei unausgewählten Personen im Mittel eine meßbare Veränderung hervorzurufen. Die körperlichen Reaktionen auf Ozon sind allerdings individuell recht unterschiedlich. Es gibt Personen, die auf Ozon bereits bei geringen Konzentrationen mit Beschwerden und eventuell auch mit einer meßbaren Funktionseinschränkung reagieren. Es existieren keine Tests, mit denen Risikogruppen herausgefunden werden könnten. Asthmatiker reagieren nicht häufiger auf Ozon als Personen ohne Asthma. Ältere Menschen scheinen gegenüber Ozon eher weniger empfindlich zu sein, ebenso wohl auch Kinder. Bei den zahlreichen Studien gibt es auch viele Personen, deren Lungenfunktion sich unter der Ozonexposition verbessert. Grundsätzlich darf man nicht von Einzelbeobachtungen auf die Grundgesamtheit schließen.

Die meßbaren Veränderungen der Lungenfunktion sind wahrscheinlich voll reversibel. Zumindest sind relevante Dauerschäden auch bei Langzeitexposition mit deutlich höheren Ozonkonzentrationen (Los Angeles, Mexico City) nicht gefunden worden. Ohne körperliche Belastung werden selbst Konzentrationen von 1000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ohne gefährliche Reaktionen vertragen.

Es gibt nach Ozonbelastung vorübergehend eine vermehrte Empfindlichkeit der Atemwege, auf allgemeine Reizstoffe zu reagieren. Auch ist eine vermehrte Empfindlichkeit allergisch reagierender Personen festzustellen. Die gesundheitliche Bedeutung dieser vermehrten Empfindlichkeit ist offensichtlich gering.

Im Abstand von 1 Tag wiederholte Expositionen führen zu einer Gewöhnung, deren Mechanismus allerdings noch nicht genau bekannt ist. Dieser Gewöhnungseffekt geht nach längerer ozonfreier Zeit wieder zurück. Es gibt keine eindeutig definierbare Untergrenze, bei der mit Sicherheit beim Menschen keine Reaktionen auftreten. Die gefundenen Veränderungen sind nicht gefährlich und wahrscheinlich vollständig rückbildungsfähig. Relevante Dauerschäden sind nicht bekannt.

Bei den Untersuchungen größerer Bevölkerungsgruppen lassen sich Korrelationen zwischen Veränderungen der Lungenfunktion und einer Ozonbelastung nachweisen; die Veränderungen sind jedoch gering, so daß die Absolutwerte im Normbereich bleiben. Besonders schwierig ist eine Trennung des Einflusses von anderen inhalativen Belastungen, in einigen Untersuchungen ist eine solche Trennung von einer gleichzeitigen Staubbelastung nicht möglich. Eine erhöhte Mortalität bei den in unserem Land vorkommenden Ozonkonzentrationen ist nicht anzunehmen.

5 Wirkungen des Ozons auf die Pflanzen

5.1 Akute und chronische Effekte von Ozon

Die kurzzeitige Einwirkung sehr hoher Ozonkonzentrationen (über 2000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) führt zu akuten Schadsymptomen, die auf der direkten Zerstörung pflanzlicher Zellmembranen und Zellkompartimente beruhen. Man beobachtet Chlorosen, Nekrosen und das Abfallen von Blättern und Nadeln. Akute Ozoneffekte werden bei Pflanzen nicht einmal auf den klassischen, sehr hoch belasteten Standorten in der San Bernardino Mountains in der Nähe von Los Angeles beobachtet. Typisch für die Freilandsituation ist der Langzeiteinfluß relativ niedriger Ozonkonzentrationen um 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ mit Spitzen bis 300 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Ozon. Hemmungen der Photosynthese und Ertrags von Nutzpflanzen können bereits auftreten, ohne daß sichtbare Schäden zu beobachten sind. Bei empfindlichen Sorten können Ernteeinbußen von 10% bis 30% auftreten. Zeitabhängig, bei Nadelbäumen häufig erst im Folgejahr, treten unter chronischem Ozon sichtbare Schäden, wie Chlorosen, vorzeitige Seneszenz und Blatt- und Nadelverluste auf. Beispielsweise ist die Lebenszeit von Nadeln südkalifornischer Kiefernarten auf ein einziges Jahr gegenüber vier oder fünf Jahren unter Reineluft verkürzt. Ein vereinfachtes Schema der chronischen Wirkungsweise von Ozon ist in Abb. 8-2 wiedergegeben.

Das troposphärische Ozon wird durch die Spaltöffnungen von Blättern und Nadeln aufgenommen, zerfällt aber zu über 95% bereits im Geweberaum außerhalb der Plasmamembran, dem Apoplasten. Bei diesen Reaktionen entstehen reaktive Sauerstoffspezies. Diese greifen empfindliche Gruppen von Lipiden und Proteinen der Membran an. Bestimmte Pflanzenzellen werden dazu angeregt, selber reaktive Sauerstoffspezies in einem „oxidativen Burst“ freizusetzen. Ozon selbst, oder die reaktiven Spezies aus der „Burst“-Reaktion, führen dann zur Aktivierung von Signalketten und Botenstoffen mit zwei hauptsächlichen Zielorten in der Zelle. Im Chloroplasten wird eine Reduktion der Photosynthese und eine Bleichung der Pigmente beobachtet. Dieses geschieht durch sekundär entstehende reaktive Sauerstoffspezies. Es treten dann ökophysiologische Hemmeffekte und vermindertes Wachstum auf. Der Zellkern ist ein zweiter wichtiger Zielort. Hier wird die Expression einiger Gene reduziert, besonders der Gene für Proteine des Chloroplasten. Andererseits sind inzwischen etwa fünfzig Gene bekannt, die in dosisabhängiger Weise durch das externe Ozon induziert werden. Die betroffenen Gene lassen sich in dieselben fünf Gruppen einteilen, die auch für die Abwehr von Pflanzen gegenüber Viren, Bakterien und Pilzen bekannt sind (Tab. 8-1). Die Pflanze verwechselt sozusagen Ozon mit einem Pathogen. Als Folge davon wird das pflanzliche Abwehrsystem außerhalb der normalen Regulation angeregt, so daß in vielen Fällen der Angriff von Pathogenen erleichtert wird. Es sind daher zwei Hauptwege für Ozonschäden zu unterscheiden. Der eine Weg umfaßt Ozon in Kombination mit abiotischen Umweltstressoren wie Temperatur, Trockenheit oder

Schwermetall-Ionen. Der zweite Hauptweg resultiert aus der Wechselwirkung von Ozon mit biotischen Schaderegern, wie Borkenkäfern, Viren, Bakterien und Pilzen.

5.2 Ozon als Signalsubstanz

Wie in Abschnitt 5.1 geschildert, zerfallen über 95% des Ozons außerhalb der Plasmamembran im pflanzlichem Gewebe. Die streng dosisabhängigen Wirkungen werden daher von Ozon-Konzentrationen bewirkt, die für hormonelle Wirkstoffe in Pflanzen typisch sind. Inzwischen wurden für Ozon sekundäre Botenstoffe identifiziert, die zu Verstärkungsmechanismen zwischen Ozonaufnahme und Ozonantworten führen. Zwei der in den letzten Jahren erkannten sekundären

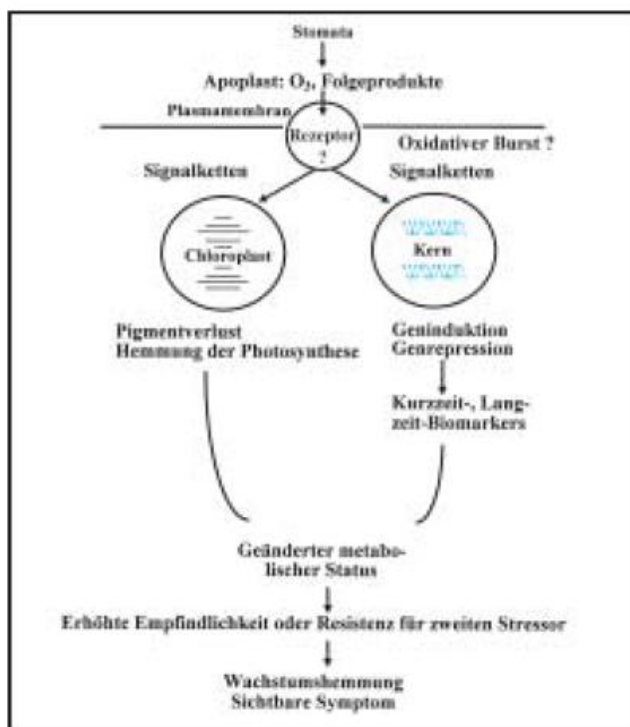


Abb. 8-2: Schematischer Überblick über zelluläre Ozoneffekte.

Botenstoffe des Ozons sind das Ethylen (das als Alterungshormon von Pflanzen schon gut bekannt war) und die Salicylsäure, die chemisch mit dem Arzneimittel Aspirin verwandt ist und die in den letzten Jahren als Induktor pflanzlicher Abwehrsysteme erkannt wurde. Die Argumente für eine Beteiligung von Ethylen und Salicylsäure an den in Tab. 8-1 zusammengestellten Abwehrreaktionen sind in Tab. 8-2 zusammengefasst. Mit Hilfe dieser Botenstoffe kann Ozon zwei normalerweise präzise regulierte Abwehrsysteme der Pflanze unreguliert induzieren, nämlich die hypersensitive Antwort (ein strikt lokaler und programmiert ablaufender Zelltod) und die systemisch induzierte Resistenz.

5.3 Ozon im Freiland

Wie in Kapitel 6, Abb. 6-3, dargestellt, ist Ozon in den letzten hundert Jahren durchschnittlich um das zweifache angestiegen. Das jährliche Ozonmaximum hat sich vom Frühjahr in den Sommer verschoben, das heißt, mehr in die Hauptwachstumsperiode landwirtschaftlicher Nutzpflanzen. Im Vergleich dazu ist das viel diskutierte Kohlenstoffdioxid in den letzten hundert Jahren lediglich um 25% angestiegen. Unter den bekannten Luftschadstoffen besitzt Ozon die höchste Giftwirkung für Pflanzen. Die heutzutage gemessenen Ozonkonzentrationen sind in Europa, in den USA und in vielen anderen Ländern der Welt deutlich oberhalb der international gültigen Grenzwerte (z.B. 60 µg/m³ als Mittelwert über die Vegetationsperiode (7 Monate) der WHO). Das Ausarbeiten vorsorglicher Kriterien wird dadurch erschwert, daß auch die natürliche Vegetation intensiv Kohlenwasserstoffe, die als Ozonvorstufen dienen können, abgibt. Auch bei der zweiten wichtigen Ozonvorstufe, nämlich den Stickoxiden, gibt es natürliche Quellen. Die dritte beteiligte Komponente ist das Sonnenlicht.

Die derzeitigen internationalen Grenzwerte beruhen auf direkten, abiotischen Effekten von Ozon und sind überwiegend aus Laborversuchen abgeleitet. Hier besteht stets die Unsicherheit, wie die Laborergebnisse auf das Freiland übertragen werden können. Die für diese Frage erforder-

Abwehrreaktionen	Beispiele (Pflanzenarten)
Phytoalexine	Isoflavonoide (Sojabohne), Furanocumarine (Petersilie), Stilbene (Kiefer, Weinrebe).
Zelluläre Barrieren	Lignin und fluoreszierende Zellwandkomponenten (Fichte, Kiefer, Petersilie, Tabak, Soja), Extensine (Fichte, Kiefer, Buche, Petersilie), Callose (Tabak).
Pathogenese-verwandte Proteine	Basische und saure PR-Proteine (Tabak, Petersilie, Arabidopsis thaliana, Fichte, Birke).
Signalsubstanz	Ethylen (Tabak, Tomate, Kartoffel, Fichte, viele andere Pflanzenspezies), Salicylsäure (Tabak, Arabidopsis thaliana).
Antioxidative Systeme	Superoxidismutasen, Catalasen, Glutathion S-Transferase, Glutathionperoxidase, Ascorbatperoxidase (Tabak, Arabidopsis thaliana, viele andere Pflanzenspezies).

Tab. 8-1: Ozon-induzierte pflanzliche Abwehrreaktionen. Die aufgeführten Reaktionen wurden in den meisten Fällen auf der Ebene von Boten-Ribonukleinsäuren, die durch die Aktivierung der Genexpression entstehen, nachgewiesen. In vielen Fällen wurde auch die Änderung der zugehörigen Enzymaktivitäten und Streßmetabolite nachgewiesen.

lichen ökologischen Versuche sind bisher in keinem Land der Welt ausreichend finanziert worden. Der oben genannte zweite Hauptschadweg des Ozons, nämlich die Förderung von Schadorganismen, war bis in jüngste Zeit umstritten. Es besteht nämlich eine zeitliche Diskrepanz zwischen den Wetterperioden, die zu hohem Ozon führen, und den Wetterperioden, die zu einem hohen Angriff durch Pilze auf Pflanzen führen. Ozon wird vorzugsweise an sonnenreichen und trockenen Tagen mit hoher Temperatur gebildet, bei denen z.B. auch der Angriff von Borkenkäfern auf Nadelbäume begünstigt ist. Für die viel allgemeinere vorkommenden pilzlichen Schaderreger ist jedoch bekannt, daß eine hohe Luftfeuchte und Temperaturen um 20 °C für die erfolgreiche Infektion nötig sind. Da solche Wetterperioden von denen für hohes Ozon zeitlich im Schnitt um 10 bis 15 Tage getrennt sind, haben viele Fachleute geschlossen, daß eine Wechselwirkung zwischen Ozon und biotischen Erkrankungen unwahrscheinlich ist. Erst das Studium biochemischer Indikatoren für die Ozonwirkung hat gezeigt, daß die in den Tabellen 8-1 und 8-2 sowie in der Abb. 8-2 zusammengefaßten biochemischen Antworten, sowie die Effekte auf Photosynthese und Wachstum, in Pflanzen langlebig sind, und über Tage oder Monate andauern. Durch den sogenannten „memory effect“, der in der Abb. 8-3 schematisch wiedergegeben ist, werden die in einer Ozonwetterperiode hervorgerufenen biochemischen Veränderungen in die für eine Infektion günstige Wetterperiode übertragen. Es ist nunmehr das im Gebiet der landwirtschaftlichen Phytopathologie seit langem übliche Gebiet der Epidemiologie gefragt, das heißt, die Beziehungen zwischen Wetterbedingungen, Ozongehalt der Luft und Vorkommen pflanzlicher Erkrankungen sind jetzt zusammen mit der Erfassung der molekularen Streßantworten zu erfassen. Das neue Gebiet der molekularen Epidemiologie wird zu einem neuen Verständnis von Mechanismen und zu einer neuen Begründung besser definierter Grenzwerte von Ozon führen. Zwei Übersichtsartikel, in denen der interessierte Leser die für den vorliegenden Artikel benutzte Primärliteratur und viele weitere Informationen über Ozon finden kann, sind Sandermann (1998) und Kley et al. (1999). Ferner wird auf die VDI-Richtlinie 2310, Blatt 15 (1987) hingewiesen

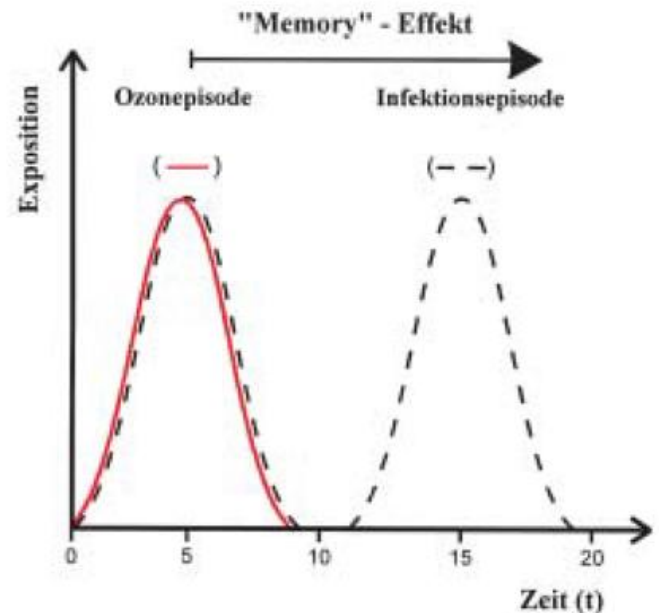


Abb. 8-3:

Epidemiologisches Modell für die Wechselwirkung zwischen Ozon und biotischen Erkrankungen. Eine sommerliche Periode für erhöhtes Ozon (—) kann mit erhöhtem Angriff durch Borkenkäfer zusammenfallen (—; linker Peak), wobei beide Streßarten an sonnigen Tagen bevorzugt sind. Andererseits sind die für eine Pilzinfektion günstigen Wetterbedingungen (---, rechter Peak) von einer sonnigen Periode um typischerweise zehn Tage getrennt. In der Literatur wurde bisher vorgeschlagen, daß daher eine Wechselwirkung zwischen Ozon und erhöhten biotischen Erkrankungen unwahrscheinlich sei. Der Fall „memory effect“ zeigt jedoch an, daß die in der Ozonepisode induzierten biochemischen Veränderungen langlebig genug sind, um in die Wetterperiode erhöhter Pilzinfektion hinüberzutreten.

Ethylen	<ul style="list-style-type: none"> • Wird in vielen Pflanzenspezies in enger Korrelation mit sichtbaren Ozonschäden freigesetzt. • Inhibitoren der Ethylenbildung schützen gegen sichtbare Ozonschäden. • Eine Ozon-empfindliche Tabaksorte bildet sehr früh Ethylen, während die Biosynthese von schützenden Polyaminkonjugaten in einer Ozon-toleranten Tabaksorte induziert wird. • Die Transkripte mehrerer Ethylen-biosynthetischer Gene werden als frühe Ozonantwort in Tomate und Kartoffel induziert. • Der Ozon-empfindliche Promotor des Stilbensynthase-Gens der Weinrebe enthält eine regulatorische Sequenz, die als Ethylen-empfindlich bekannt ist. • Ethylen kann Ozon als Induktor für das Stilben-Synthase-Gen der Weinrebe ersetzen.
Salicylsäure	<ul style="list-style-type: none"> • Salicylsäure und sein β-D-Glucosid werden durch Ozon in Tabak und <i>Arabidopsis thaliana</i> induziert. • <i>Arabidopsis thaliana</i> - Pflanzen, die ein Salicylsäure-abbauendes Enzym enthalten, sind in der Ozon-induzierten Genexpression gehemmt. • Die Boten-Ribonukleinsäuren der Catalase 2, eines für Salicylsäure vorgeschlagenen Rezeptors, werden durch Ozon in Tabak stark induziert.

Tab. 8-2: Argumente für eine Rolle der Signalsubstanzen Ethylen und Salicylsäure in Signalketten für Ozon. Ethylen und Salicylsäure wirken als zweite oder dritte Botenmoleküle für Ozon, je nach dem, ob sie durch Ozon selbst oder die durch Ozon hervorgerufenen aktivierten Sauerstoffspezies induziert werden.

Literatur

- ABBEY, D. E.; PETERSEN, F.; MILLS, P. K.; BEESON, W. L., 1993: Long-term ambient concentrations of total suspended particulates, ozone, and sulfur dioxide and respiratory symptoms in a nonsmoking population. *Arch Environ Health*, 48, 33-46.
- AVOL, E. L.; LINN, W. S.; SHAMOO, D. A.; VALENCIA, L. M.; ANZAR, U. T.; VENET, T. G.; HACKNEY, J. D., 1985: Respiratory effects of photochemical oxidant air pollution in exercising adolescents. *Am Rev Respir Dis*, 132, 619-22.
- BASCOM, R.; NACLERIO, R. M.; FITZGERALD, T. K.; KAGEY-SOBOTKA, A.; PROUD, D., 1990: Effect of ozone inhalation on the response to nasal challenge with antigen of allergic subjects. *Am Rev Respir Dis*, 142, 594-601.
- BECKETT, W. S., 1991: Ozone, air pollution, and respiratory health. *Yale J OF Biol Med*, 64, 167-75.
- BECKETT, W. S.; MCDONNELL, W. F.; HORSTMAN, D. H.; HOUSE, D. E., 1985: Role of the parasympathetic nervous system in acute lung response to ozone. *J Appl Physiol*, 59, 1879-185.
- BEDI, J. F.; HORVATH, S. M.; DRECHSLER-PARKS, D. M., 1989: Adaptation by older individuals repeatedly exposed to 0.45 parts per million ozone for two hours. *JAPCA*, 39, 194-199.
- BERRY, M.; LIOY, P. J.; GELPERIN, K.; BUCKLER, G.; KLOTZ, J., 1991: Accumulated exposure to ozone and measurement of health effects in children and counselors at two summer camps. *Environ Res*, 54, 135-150.
- BRAUN-FAHRLAENDER, C.; KUENZLI, N.; DOMENIGHETTI, G.; CARELL, C. F.; ACKERMANN-LIEBRICH, U., 1994: Acute effects of ambient ozone on respiratory function of Swiss schoolchildren after a 10-minute heavy exercise. *Ped Pulmol*, 17, 169-177.
- CASTILLEJOS, M.; GOLD, D. R.; DOCKERY, D.; TOSTESON, T.; BAUM, T.; SPEIZER, F. E., 1992: Effects of ambient ozone on respiratory function and symptoms in Mexico City schoolchildren. *Am Rev Respir Dis*, 145, 276-82.
- COHEN, C. A.; HUDSON, A. R.; CLAUSEN, J. L.; KNELSON, J. H., 1972: Respiratory symptoms, spirometry, and oxidant air pollution in nonsmoking adults. *Am Rev Respir Dis*, 105, 251-261.
- CRAPO, J.; MILLER, F. J.; MOSSMAN, B.; PRYOR, W. A.; KILEY, J. P., 1992: NHLBI workshop summary. Environmental lung diseases. Relationship between acute inflammatory responses to air pollutants and chronic lung disease. *Am Rev Respir Dis*, 145, 1506-1512.
- DETELS, R.; TASHKIN, D. P.; SAYRE, J. W.; ROKAW, S. N.; COULSON, A. H.; MASSEY, F. J. Jr; et al., 1987: The UCLA population studies of chronic obstructive respiratory disease. 9. Lung function changes associated with chronic exposure to photochemical oxidants: a cohort study among never-smokers. *Chest*, 92, 594-603.
- DEVLIN, R. B.; MCDONNELL, W. F.; MANN, R.; BECKER, S.; HOUSE, D. E.; et al., 1991: Exposure of humans to ambient levels of ozone for 6.6 hours causes cellular and biochemical changes in the lung. *Am J Respir Cell Biol*, 4, 72-81.
- DONALDSON, K.; BROWN, G. M.; BROWN, D. M.; SLIGHT, J.; MACLAREN, W. M.; DAVIS, J. M., 1991: Leukocyte-mediated epithelial injury in ozone-exposed rat lung. *Res Rep / Health Eff*, 44, 1-27.
- DRECHSLER-PARKS, D. M.; BEDI, J. F.; HORVATH, S. M., 1987: Pulmonary function responses of older men and women to ozone exposure. *Experim Gerontol*, 22, 91-101.
- FARRELL, B. P.; KERR, H. D.; KULLE, T. J.; SAUDER, L. R.; YOUNG, J. L., 1979: Adaptation in human subjects to the effects of inhaled ozone after repeated exposure. *Am Rev Respir Dis*, 119, 725-730.
- FOLINSBEE, L. J.; HORVATH, S. M.; RAVEN, P. B.; BEDI, J. F.; MORTON, A. R.; et al., 1977: Influence of exercise and heat stress on pulmonary function during ozone exposure. *J Appl Physiol*, 43, 409-413.
- FOLINSBEE, L. J.; BEDI, J. F.; HORVATH, S. H., 1980: Respiratory responses in human repeatedly exposed to low concentrations of Ozone. *Am Rev Respir Dis*, 121, 431-439.
- FOLINSBEE, L. J.; STEVEN, M. H., 1986: Persistence of the acute effects of ozone exposure. *Aviation Space Environ Med*, 57, 1136-1143.
- FOLINSBEE, L. J.; MCDONNELL, W. F.; HORSTMAN, D. H., 1988: Pulmonary function and symptom responses after 6.6-hour exposure to 0.12 ppm ozone with moderate exercise. *J Air Pollut Conar Assoc*, 38, 28-35.
- FOLINSBEE, L. J.; HORSTMAN, D. H.; KEHRL, H. R.; HARDER, S.; ABDUL-SALAAM, S.; IVES, P. J., 1994: Respiratory responses to repeated prolonged exposure to 0.12 ppm ozone. *Amer J Respir Care Med*, 149, 98-105.
- FRISCHER, T. M.; KUEHR, J.; PULLWITT, A.; MEINERT, R.; FORSTER, J.; STUDNICKA, M.; et al., 1993: Ambient ozone causes upper airways inflammation in children. *Am Rev Respir Dis*, 148, 961-964.
- GONG, H. JR.; BEDI, J. F.; HORVATH, S. M., 1988: Inhaled albuterol does not protect against ozone toxicity in nonasthmatic athletes. *Arch Environ Health*, 43, 46-53.
- GRAHAM, D.; HENDERSON, F.; HOUSE, D., 1988: Neutrophil influx measured in nasal lavages of humans exposed to ozone. *Arch Environ Health*, 43, 228-233.
- GROSS, K. B.; WHITE, H. J., 1987: Functional and pathological consequences of a 52-week exposure to 0.5 ppm ozone followed by clean air recovery period. *Lung*, 165, 283-295.
- HACKNEY, J. D.; LINN, W. S.; MOHLER, J. G.; PEDERSEN, E. E.; BREISACHER, P.; RUSSO, A., 1975: Experimental studies on human health effects of air pollutants. II. Four-hour exposure to ozone alone and in combination with other pollutant gases. *Arch Environ Health*, 30, 379-384.

- HACKNEY, J. D.; LINN, W. S.; MOHLER, J. G.; COLLIER, C. P., 1977: Adaption to short-term respiratory effects of ozone in men exposed repeatedly. *J Appl Physiol*, 43, 82-85.
- HACKNEY, J. D.; LINN, W. S., 1994: Evaluating relationships among personal factors, ambient oxidant exposure, and chronic respiratory illness. Zitiert nach: Wichmann, Schlippköter, Fülgraff: *Handbuch der Umweltmedizin*, VI-1, S. 19.
- HAZUCHA, M. J., 1987: Relationship between ozone exposure and pulmonary function changes. *J Appl Physiol*, 62, 1671-1680.
- HAZUCHA, M. J.; BATES, D. V.; BROMBERG, P. A., 1989: Mechanism of action of ozone on the human lung. *J Appl Physiol*, 67, 1535-1541.
- HIGGINS, I. T.; D'ARCY, J. B.; GIBBONS, D. I.; AVOL, E. L.; GROSS, K. B., 1990: Effect of exposures to ambient ozone on ventilatory lung function in children. *Am Rev Respir Dis*, 141, 1136-1146.
- HOLTZMAN, M. J.; CUNNINGHAM, J. H.; SHELLER, J. R.; IRSIGLER, G. B.; NADEL, J. A.; BOUSHEY, H. A., 1979: Effect of ozone on bronchial reactivity in atopic and nonatopic subjects. *Am Rev Respir Dis*, 120, 1059-1067.
- HORSTMAN, D. H.; FOLINSBEE, L. J.; IVES, P. J.; ABDUL-SALAAM, S.; MCDONNELL, W. F., 1990: Ozone concentration and pulmonary response relationships for 6.6-hour exposures with five hours of moderate exercise to 0.08, 0.10, and 0.12 ppm. *Am Rev Respir Dis*, 142, 1158-1163.
- HORVATH, S. M.; GLINER, J. A.; FOLINSBEE, L. J., 1981: Adaptation to ozone: duration of effect. *Am Rev Respir Dis*, 123, 496-499.
- KEHRL, H. R.; HAZUCHA, M. J.; SOLIC, J. J.; BROMBERG, P. A., 1985: Responses of subject with chronic obstructive pulmonary disease after exposures to 0.3 ppm ozone. *Am Rev Respir Dis*, 131, 719-724.
- KERR, H. D.; KULLE, T. J.; MCILHANY, M. L.; SWIDERSKY, P., 1975: Effects of ozone on pulmonary function in normal subjects. An environmental-chamber study. *Am Rev Respir Dis*, 111, 763-773.
- KINNEY, P. L.; WARE, J. H.; SPENGLER, J. D.; DOCKERY, D. W.; SPEIZER, F. E.; FERRIS, B. G., 1989: Short-term pulmonary function change in association with ozone levels. *Am Rev Respir Dis*, 139, 56-61.
- KINNEY, P. L.; OZKAYNAK, H., 1991: Associations of daily mortality and air pollution in Los Angeles County. *Environ Res*, 54, 99-120.
- KLEY, D.; KLEINMAN, M.; SANDERMANN, H.; KRUPA, S., 1999: Photochemical oxidants: State of the science. *Environ. Pollut.* 100, 19-42.
- KOENIG, J. Q.; COVERT, D. S.; MORGAN, M. S.; HORIKE, M.; HORIKE, N.; MARSHAL, S. C.; PIERSON, W. E., 1985: Acute effects of 0.12 ppm ozone or 0.12 ppm nitrogen dioxide on pulmonary function in healthy and asthmatic adolescents. *Am Rev Respir Dis*, 132, 648-651.
- KOENIG, J. Q.; COVERT, D. S.; HANLEY, Q. S.; VAN BELLE, G.; PIERSON, W. E., 1990: Prior exposure to ozone potentiates subsequent response to sulfur dioxide in adolescent asthmatic subjects. *Am Rev Respir Dis*, 141, 377-380.
- KOREN, H. S.; DEVLIN, R. B.; GRAHAM, D. E.; MANN, R.; MCGEE, M. P.; HORSTMAN, D. H.; et al., 1989: Ozone-induced inflammation in the lower airways of human subjects. *Am Rev Respir Dis*, 139, 407-415.
- KULLE, T. J.; SAUDER, L. R.; HEBEL, J. R.; CHATHAM, M. D., 1985: Ozone response relationships in healthy nonsmokers. *Am Rev Respir Dis*, 132, 36-41.
- LINN, W. S.; HACKNEY, J. D.; PEDERSEN, E. E.; BREISACHER, P.; PATTERSON, J. V.; MULRY, C. A.; COYLE, J. F., 1976: Respiratory function and symptoms in urban office workers in relation to oxidant air pollution exposure. *Amer Rev Respir Dis*, 114, 477-483.
- LINN, W. S.; BUCKLEY, R. D.; SPIER, C. E.; BLESSEY, R. L.; JONES, M. P.; FISCHER, D. A.; HACKNEY, J. D., 1978: Health effects of ozone exposure in asthmatics. *Am Rev Respir Dis*, 117, 835-843.
- LINN, W. S.; JONES, M. P.; BACHMAYER, E. A.; CLARK, K. W.; KARUZA, S. K.; HACKNEY, J. D., 1979: Effect of low-level exposure to ozone on arterial oxygenation in humans. *Am Rev Respir Care Med*, 119, 731-740.
- LINN, W. S.; MEDWAY, D. A.; ANZAR, U. T.; VALENCIA, L. M.; SPIER, C. E.; TSAO, F. S.; et al., 1982: Persistence of adaptation to ozone in volunteers exposed repeatedly for six weeks. *Am Rev Respir Dis*, 125, 491-495.
- LINN, W. S.; SHAMOO, D. A.; ANDERSON, K. R.; PENG, R. C.; AVOL, E. L.; HACKNEY, J. D., 1994: Effects of prolonged, repeated exposure to ozone, sulfuric acid, and their combination in healthy and asthmatic volunteers. *Am J Respir Care Med*, 150, 431-440.
- LIPPMANN, M., 1989: Effects of ozone on respiratory function and structure. *Ann Rev Publ Health*, 10, 49-67.
- MCBRIDE, D. E.; KOENIG, J. Q.; LUCHEL, D. L.; WILLIAMS, P. V.; HENDERSON, W. R. Jr., 1994: Inflammatory effects of ozone in the upper airways of subjects with asthma. *Amer J Respir Care Med*, 149, 1192-1197.
- MCDONNELL, W. F.; CHAPMAN, R. S.; LEIGH, M. W.; STROPE, G. L.; COLLIER, A. M., 1985a: Respiratory responses of vigorously exercising children to 0.12 ppm ozone exposure. *Am Rev Respir Dis*, 132, 875-879.
- MCDONNELL, W. F.; HORSTMAN, D. H.; ABDUL-SALAAM, S.; HOUSE, D. E., 1985b: Reproducibility of individual responses to ozone exposure. *Am Rev Respir Dis*, 131, 36-40.
- MOLFINO, N. A.; WRIGHT, S. C.; KATZ, I.; TARLO, S.; SILVERMAN, F.; MCCLEAN, P. A.; et al., 1991: Effect of low concentrations of ozone on inhaled allergen responses in asthmatic subjects (see comments) *Lancet*, 338, 199-203.

- REISENAUER, C. S.; KOENIG, J. Q.; MCMANUS, M. S.; SMITH, M. S.; KUSIC, G.; PIERSON, W. E., 1988: Pulmonary response to ozone exposure in healthy individuals aged 55 years or greater. *JAPCA*, 38, 51-55.
- ROKAW, S. N.; DETELS, R.; COULSON, A. H.; SAYRE, J. W.; TASHKIN, D. P.; ALLWRIGHT, S. S.; et al., 1980: The UCLA population studies of chronic obstructive respiratory disease. 3. Comparison of pulmonary function in three communities exposed to photochemical oxidants, multiple primary pollutants, or minimal, *Chest*, 78, 252-262.
- SANDERMANN, H.: 1998: Ozone, An air pollutant acting as a plant-signaling molecule. *Naturwissenschaften* 85, 369-375.
- SILVERMAN, F., 1979: Asthma and respiratory irritants (ozone). *Environm Health Perspect*, 29, 131-136.
- SOLIC, J. J.; HAZUCHA, M. J.; BROMBERG, P. A., 1982: The acute effects of 0.2 ppm ozone in patients with chronic obstructive pulmonary disease. *Am Rev Respir Dis*, 125, 664-669.
- SPEKTOR, D. M.; LIPPMANN, M.; LLOYD, P. J.; THURSTON, G. D.; CITAK, K.; JAMES, D. J.; et al., 1988: Effects of ambient ozone on respiratory function in active, normal children. *Am Rev Respir Dis*, 137, 313-320.
- SPEKTOR, D. M.; THURSTON, G. D.; MAO, J.; HE, D.; HAYES, C.; LIPPMANN, M., 1991: Effects of single- and multiday ozone exposures on respiratory function in active normal children. *Environ Res*, 55, 107-122.
- STEVEN, J. F.; DRECHSLER-PARKS, D. M., 1989: Adaption by older individuals repeatedly exposed to 0.45 parts per million ozone to two hours. *JAPCA*, 39, 194-199.
- UMWELTBUNDESAMT, 1994: In: *Daten zur Umwelt 1992/93*. Erich Schmidt Verlag, 1994.
- VEREIN DEUTSCHER INGENIEURE, 1987: *VDI/DIN-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 1. Richtlinie VDI2310, Blatt 15: Maximale Immissions-Werte zum Schutze des Menschen: Maximale Immissions-Konzentrationen für Ozon (und photochemische Oxidantien)*, 70 S.
- WEYMER, A. R.; GONG, H. JR.; LYNESS, A.; LINN, W. S., 1994: Pre-exposure to ozone does not enhance or produce exercise-induced asthma. *Amer J Respir Care Med*, 149, 1413-1419.

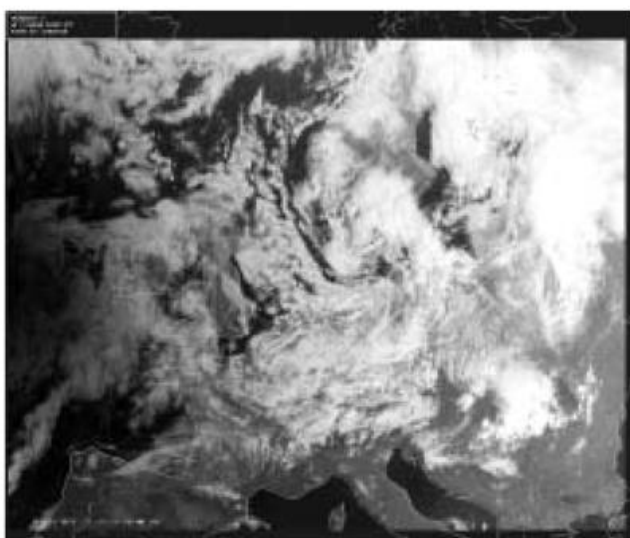
Die Satellitenbilder des Jahres 1999

Die totale Sonnenfinsternis am 11. August 1999 erzeugte eine der markantesten Satellitenbild-Serien des Jahres 1999 über Mitteleuropa. Leider war sie im etwa 100 km breiten Kernschattenbereich vom Boden aus nur an wenigen Orten sichtbar. Dichte Wolken verhinderten vielerorts den Blick auf die Sonnenscheibe; die in millionenfacher Auflage produzierten Sonnenfinsternisbrillen blieben meist ungenutzt. Nur mit viel Glück konnte die Sonnenkorona beobachtet werden.

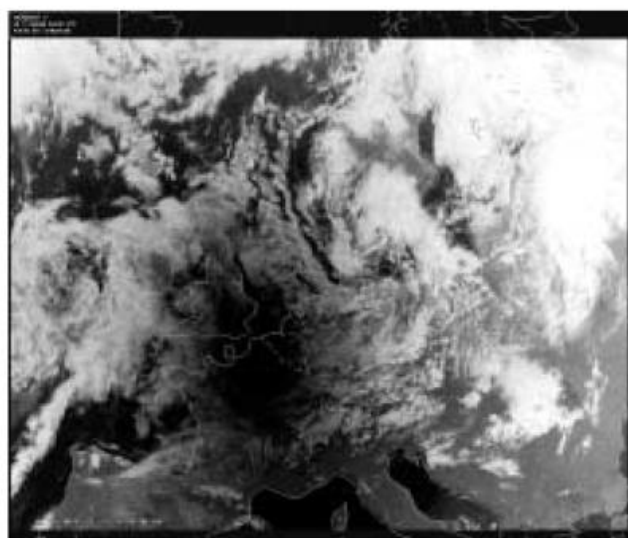
Die Verlagerung des Mondschattens auf der Erdoberfläche stellt sich in der Satellitenbild-Sequenz des Meteosat dar: Innerhalb einer Zeitspanne von etwa

einer Stunde überquerte der Kernschatten den europäischen Kontinent von Westnordwest nach Ost-südost. Um 1000 UTC (Weltzeit) lag er noch westlich von Irland. Um 1017 UTC trat der Kernschatten bei Cherbourg auf den Kontinent über und erreichte um 1030 UTC das Saarland.

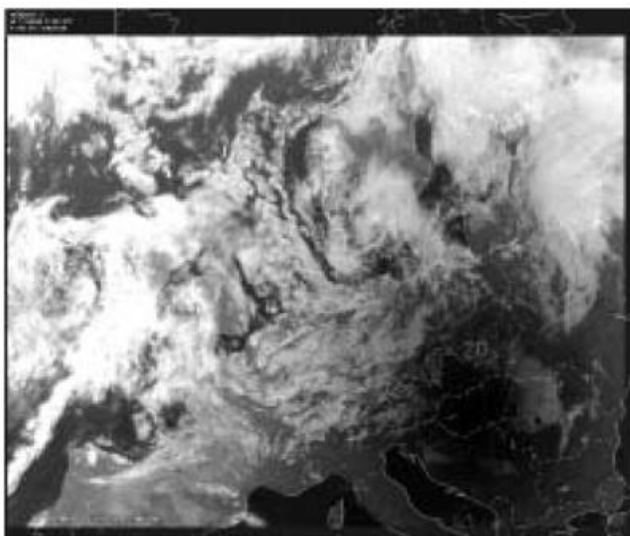
Mit 2600 km/h raste er über den Kontinent, lag um 1100 UTC schon über Rumänien und hatte um 1112 UTC Europa an den Schwarzmeerküste verlassen. Das letzte Bild zeigt den Kernschattenbereich bereits über dem Schwarzen Meer.



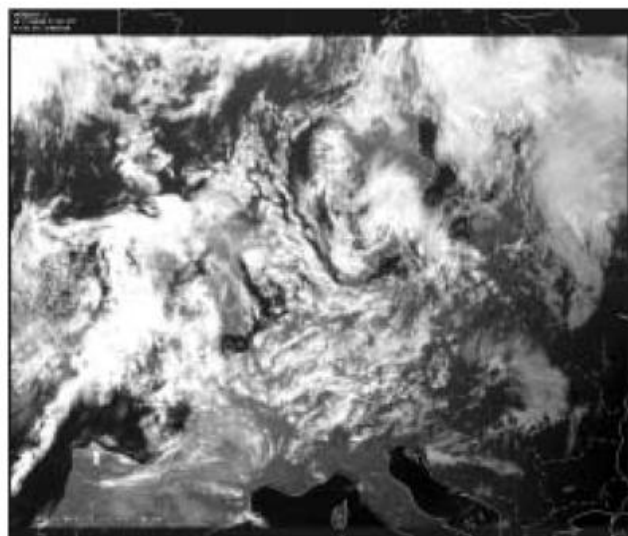
Meteosat VIS-Bild v. 11.08.1999 1000 UTC



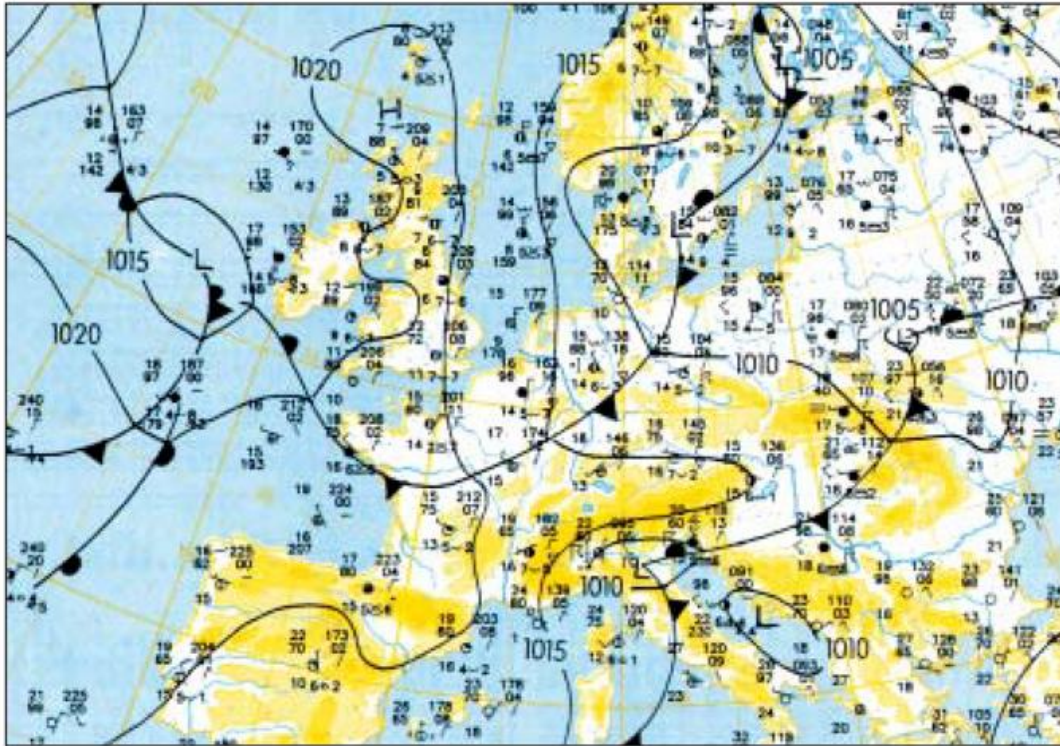
Meteosat VIS-Bild v. 11.08.1999 1030 UTC



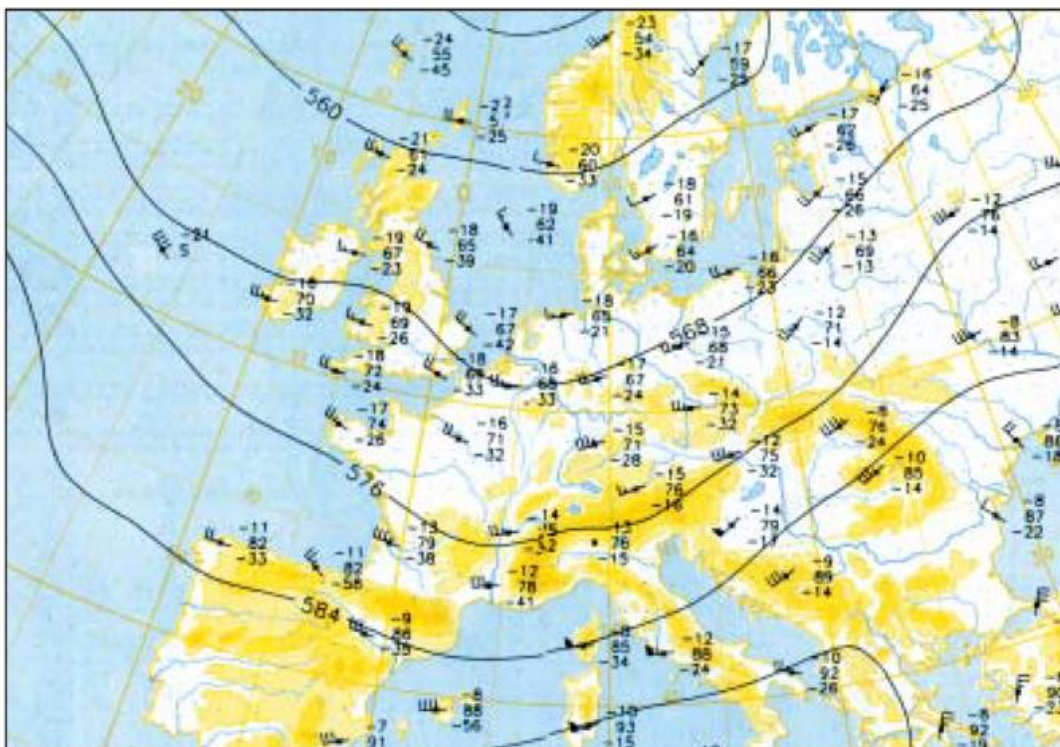
Meteosat VIS-Bild v. 11.08.1999 1100 UTC



Meteosat VIS-Bild v. 11.08.1999 1130 UTC



Bodenwetterkarte vom 11.08.1999 00 UTC (Ausschnitt aus dem *Amtsblatt des Deutschen Wetterdienstes vom 11.08.1999*)

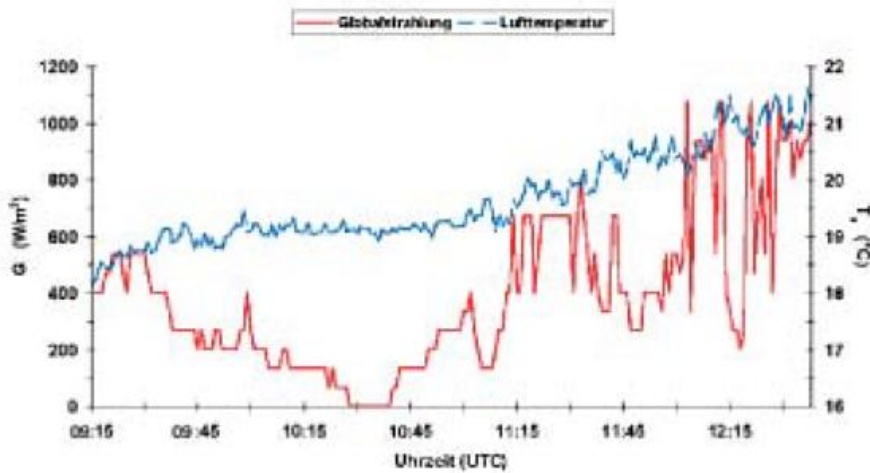


Höhenwetterkarte 500 hPa vom 11.08.1999 00 UTC (Ausschnitt aus dem *Amtsblatt des Deutschen Wetterdienstes vom 11.08.1999*)

Neben der Verlagerung des Kernschattens zeigt die Satellitenbild-Serie aber auch die Bewölkungsverhältnisse über Europa sehr deutlich. Waren es über der Bretagne und der Normandie ausgedehnte und dichte Altocumulus-Wolkenfelder, die nur kleine Wolken-

lücken enthielten, regnete es auf dem Weg zwischen Saarbrücken und Mühlendorf/Inn verbreitet. Die vorstehenden beiden Wetterkarten zeigen die synoptische Situation am 11.08.1999 00 UTC.

Meteorologische Stadtstation Freiburg



Verlauf der Globalstrahlung und der Lufttemperatur während der Sonnenfinsternis am 11.08.1999

(Die Daten wurden freundlicherweise zur Verfügung gestellt von Herrn Dr. Andreas Matzarakis, Universität Freiburg)

Über Mitteleuropa erstreckte sich in der mittleren und oberen Troposphäre ein langwelliger Höhentrog, der von schwach ausgeprägten Kurzwellentrögen umrundet wurde. Die Ursache für den bedeckten Himmel entlang des Kernschattenbereichs ist leicht auszumachen: Die wellende Kaltfront eines Skandinavientiefs, die quer über Deutschland und Nordfrankreich verlief. Zwar entwickelte sich über Nordfrankreich die Bewölkung unter dem Einfluß des schwachen Zwischenhochkeiles zurück, so daß es wenigstens niederschlagsfrei war; die Warmfront des Tiefs bei Irland erzeugte aber ausgeschichtete Altocumulus-Bewölkung über dem Englischen Kanal, die in den Mittagsstunden die Normandie erreichte und nur kurzzeitige Blicke auf das Naturschauspiel gestattete.

Noch ungünstiger waren die Wetter- und Wolkenverhältnisse weiten Teilen Mittel und Süddeutschlands: Hebung im Bereich der schleifenden Kaltfront führte verbreitet zu dichter Schicht-Quellbewölkung mit Regen.

Der schmale Hochkeil an den Alpen signalisierte Stau und die Staubewölkung an der Alpennordseite mit zum Teil schauerartigen Niederschlägen reichte bis weit in das Alpenvorland. Nur an wenigen Orten im Kernschatten gab die Wolkendecke kurzzeitig einen Blick auf das Naturschauspiel frei.

Die vorstehende Abbildung zeigt den Verlauf von Globalstrahlung und Lufttemperatur während der Verfinsternung in Freiburg. Die Globalstrahlung zeigt den erwarteten starken Rückgang auf 0 W/m^2 während der Kernschattenphase. Allerdings zeigt die Kurve – bedingt durch Bewölkungsveränderungen – starke Schwankungen. Die Temperaturkurve dagegen ist wesentlich stärker gedämpft. Die Sonnenfinsternis macht sich in einer starken Verzögerung des tagesgangbedingten Anstiegs der Lufttemperatur zwischen 09:45 UTC und 11:15 UTC bemerkbar. Ein Temperatureinbruch ist in dieser Stadtstation nicht festzustellen.

Buchbesprechungen – Neuerscheinungen

AMT FÜR UMWELTSCHUTZ DER LANDESHAUPTSTADT STUTTGART; Stadtklima 21, 130 Datensätze, 100 punktbezogene Datensätze, 275 erläuternde Texte und 500 Photos und Graphiken. Stuttgart, 1997. Bezug: Amt für Umweltschutz, Abteilung Stadtklimatologie, Gaisburgstr. 4, 70182 Stuttgart, DM 25,00.

Meteorologische Sachverhalte mittels eines elektronischen Mediums darzustellen ist sicherlich ein zukunftsweisender Weg. Wenn es sich dabei auch noch um eine gleichermaßen klimatologisch und geographisch so interessant gelegene Stadt wie Stuttgart handelt, sind den Möglichkeiten auch schwierige Sachverhalte im Ergebnis anschaulich darzustellen keine Grenzen gesetzt. Wenn dann noch eine städtebaulich solchermaßen großzügige und umfassende Planung wie die Bebauung des bisherigen Bahnhofareals in Stuttgart ansteht, wäre es sogar eine Unterlassung nicht diesen Weg der Darstellung zu wählen. Und es wird der Nutzer dieser CD-Rom auch nicht enttäuscht, wenn er seinen Einstieg in den besonderen Charakter des Stuttgarter Klimas über das vom Amt für Umweltschutz der Stadt Stuttgart herausgegebene Stadtklimainformationssystem auf CD-Rom sucht. Sicherlich sind die Modalitäten der Handhabung hier und da noch verbesserungswürdig und die rein fachlichen Ergebnisse an mancher Stelle diskussionsbedürftig. Zudem dürfte der Zweck dieser CD-Rom auch in der Information der Öffentlichkeit zu suchen sein. Es ist aber schon faszinierend, wenn der Klimatologe eingedenk der bisherigen Praxis zur Bestimmung von Kaltluftflüssen nur noch seine Wünsche bezüglich des Startpunktes einzugeben hat und schon fließt die Kaltluft, wenn auch manches Mal leicht talaufwärts. Übersichtlichere Darstellungen der flächenmäßigen Verteilung von meteorologischen und lufthygienischen Parametern, welche überwiegend auf der Basis von Rechenmodellen ermittelt wurden, würden das Auge des Betrachters noch etwas mehr entlasten können. Durch 500 Photos und Graphiken wird dem Nutzer die Geographie der Stadt und insbesondere des Planungsgebietes einschließlich der Architekturentwürfe nähergebracht.

Insgesamt ist es gelungen die große Datenfülle der Untersuchungsergebnisse zu einem äußerst günstigen Preis in einer zeitgemäßen und übersichtlichen Form darzustellen, die auch noch Spaß macht. Schließlich wird noch ein visueller Stadtrundgang angeboten. Allerdings stellt das Graphikprogramm einige Anforderungen an die technische Kapazität des PCs. Eine zweite, verbesserte Auflage mit zusätzlichen Funktionen und erleichterter Bedienung ist gerade zum Zeitpunkt der Drucklegung dieses Heftes erschienen.

J. Bläsing

JOUSSAUME, S.: Klima: Gestern-Heute-Morgen. Berlin, Heidelberg, New York: Springer-Verlag 1996. - 143 S., 144 Abb., graph. Darstellungen, 58,00 DM, ISBN 3-540-58736-5.

Das Buch ist die deutsche Übersetzung der französischen Originalausgabe: Climat d'hier a demain. - Paris, 1993.

Es widmet sich der überaus interessierenden Frage, ob unser gegenwärtiges Klima Teil einer langjährigen Klimaschwankung ist oder ob die anthropogenen Einflüsse bereits eine Änderung des Klimas eingeleitet haben. Die vorhandenen meteorologischen Meßreihen sind im Verhältnis zu den Jahrtausende währenden Klimaschwankungen verschwindend kurz, so daß zur Beantwortung der Fragestellung dem Studium des vergangenen Klimas wesentliche Bedeutung zukommt. Mathematische Modelle sind so komplex, daß viele Faktoren, die Einfluß auf die Klimaentwicklung haben können, noch nicht einbezogen sind und somit Klimaprognosen noch nicht sicher abgeleitet werden können. Die Zunahme des Kohlendioxidgehalts, der Erdtemperatur wie das Auftreten des Ozonlochs und in gehäuftem Maße extremer Wettererscheinungen scheinen jedoch darauf hinzuweisen, daß die menschlichen Aktivitäten das Klima lokal wie auch bereits global beeinflussen.

Das Buch befaßt sich nach einem Einleitungskapitel im Kapitel 2 „Vom Wetter zum Klima“ mit der Definition des Klimas, mit Klimaklassifikationen und Klimazonen, mit der Zuverlässigkeit von Klimabeobachtungen und der natürlichen Schwankungsbreite des Klimas.

Kapitel 3 „Das Klima der Vergangenheit“ behandelt die vorhandenen Kenntnisse über die Klimageschichte, die Theorien über die Ursache von Klimaschwankungen, die Veränderungen der Gletscherausdehnung, sowie die Methoden der Paläoklimatologie (Eiskernbohrungen, Chronik der Baumringe u.a.).

Im Kapitel 4 „Luft und Wasser – die treibenden Elemente des Planeten“ werden die Atmosphäre und ihre Zusammensetzung, die atmosphärische und ozeanische Zirkulation und ihr Zusammenwirken im Klimasystem erläutert.

Kapitel 5 „Die Funktionsweise der Klimamaschine“ zeigt die vielfältigen Zusammenhänge zwischen Atmosphäre, Ozean und Biosphäre auf, die zu kurzzeitigen Anomalien (El Niño, Südliche Oszillation) wie zu natürlichen Schwankungen über längere Zeitintervalle führen und die in ihrer Komplexität teilweise noch völlig ungeklärt sind.

Kapitel 6 „Der Mensch und das Klima“ behandelt die Auswirkungen der industriellen Aktivitäten des Menschen und des Bevölkerungswachstums auf die Zunahme des Kohlendioxids und anderer Spurengase (Fluorkohlenwasserstoffe, Methan) mit ihren Folgen auf die Verstärkung des Treibhauseffektes, einen möglichen Anstieg des Meeresspiegels, die Veränderung des Ozongehaltes u.a..

Kapitel 7 „Die Vorbereitung auf die Zukunft“ faßt zusammen, daß die anthropogenen Einflüsse realistische Gefahren für die zukünftige Entwicklung des Klimas heraufbeschworen haben, jedoch auch noch viele Unsicherheiten bestehen durch fehlende Kenntnisse über die Physik der Wolken, die ozeanische Zirkulation u.a.. Die sich abzeichnenden globalen Auswirkungen der menschlichen Aktivitäten erfordern weltweite Forschungen wie das International Geosphere-Biosphere Program und weltweite politische Entscheidungen wie auf der Konferenz über Umwelt und Entwicklung in Rio de Janeiro 1992.

Das Buch ist sicher auch dank der flüssigen und sachgerechten Übersetzung von

Monika Huch verständlich und sehr interessant geschrieben. Die Aufmachung ist hervorragend. Das Buch hat ein Geleitwort von Chr. Schönwiese.

Das Literaturverzeichnis, das vermutlich nachträglich angefügt worden ist, enthält fast ausschließlich deutsche Standardliteratur.

G. Götschmann

WARNSIGNAL KLIMA, WISSENSCHAFTLICHE FAKTEN; Herausgeber: José L. Lozán, Hartmut Graßl, Peter Hupfer, 1998, Wissenschaftliche Auswertungen, Hamburg, 464 S., ISBN 3-00-002925-7.

Mit der Buchreihe Warnsignale hat einer der Herausgeber, J.L. Lozán, ein Werk von bisher 5 Bänden geschaffen, mit dem „ein Beitrag zur Förderung der sachlichen Diskussion in unserem zukünftigen Umgang mit unserem Lebensraum geleistet werden“ soll. „Das Werk richtet sich an Politiker, Lehrer, Studenten und Wissenschaftler aller Fachrichtungen sowie interessierte Laien“, wie J.L. Lozán schreibt. Der hohe Anspruch, der damit auch an das vorliegende Buch Warnsignale Klima gestellt ist, ist im wesentlichen erreicht, trotz, hier muß man sagen, wegen der über 100 Wissenschaftler, die als Autoren auftreten. Die positive Darstellungsform dieses Buches verglichen zu ähnlichen Büchern mit so vielen Autoren ist wahrscheinlich das Ergebnis der Arbeit des Gutachtergremiums, das sich die Herausgeber zusammengestellt haben.

Das Buch liefert einen umfassenden Überblick über das Problem Klima und zwar von sehr unterschiedlichen Standpunkten aus betrachtet. Es werden nicht nur die Teilgebiete Meteorologie, Ozeanographie, Hydrologie und Glaziologie behandelt, sondern auch biologische und landwirtschaftliche Aspekte werden diskutiert, wie auch Auswirkungen auf Gesundheit, Ökonomie, Küstenschutz und Versicherungswirtschaft. Dies alles ist auf knapp 500 Seiten und in 71 Artikeln zusammengefaßt. Dabei bleibt es natürlich nicht aus, daß viele Probleme nur angerissen werden und eine vertiefte Darstellung nicht möglich ist. Das heißt aber auch, daß dies kein populärwissenschaftliches Buch ist, das man ohne Vorkenntnisse verstehen kann. Der vorgebildete Leser, sei er nun Politiker, Lehrer, Laie oder Wissenschaft-

ler (auf anderem Fachgebiet), kann aber von diesem Buch sehr viel profitieren und sein Wissen auffrischen bzw. erweitern. Ein dem breiten Spektrum entsprechendes, schon sehr umfangreiches Literaturverzeichnis bietet weitere Hilfen, obwohl hier wohl auch auf äußerste Kürze geachtet worden ist.

Das Buch ist in 5 Kapitel unterteilt. Im 1. Kapitel „Klima und seine Variabilität“ werden die physikalischen Grundlagen der einzelnen Klimakomponenten Atmosphäre, Ozeane und Eis dargestellt, (äußere) Anregungen mit solarer Faktor, Vulkane, CO₂-Kreislauf diskutiert und paläoklimatische Methoden und damit abgeleitete Ergebnisse vorgestellt.

Der Einfluß der menschlichen Aktivität auf das Klima wird im 2. Kapitel „Anthropogene Klimabeeinflussung“ behandelt. Dabei werden Änderungen in der chemischen Zusammensetzung der Atmosphäre und deren Einfluß auf den Treibhauseffekt diskutiert. Außerdem wird das Ozon in Strato- und Troposphäre behandelt sowie direkte menschliche Aktivitäten wie Flugverkehr, Land- und Waldnutzung und ihre Rolle bei einer möglichen Klimaänderung.

Das 3. Kapitel „Das Klima des 21. Jahrhunderts: Änderungen und Folgen“ erscheint als Hauptteil dieses Buches. Die ersten der 36 Artikel benutzen numerische Klimamodelle und ihre Ergebnisse als Basis, dabei tritt die obige Bemerkung über die Kürze der Artikel deutlich hervor: Die Modelle selber sind nur auf 4 Seiten (F.-W. Gerstengabe: Möglichkeiten und Voraussetzungen für eine Klimavorhersage) beschrieben, dies reicht sicher nicht aus für einen Leser, der sich vorher noch gar nicht mit solchen Modellen beschäftigt hat.

Es werden in diesem Kapitel aber auch viele Ergebnisse aus aktuellen und paläoklimatischen Zeitreihen diskutiert. Außerdem werden die Folgen von Klimaänderungen auf die verschiedenen Systeme wie Vegetation und Landwirtschaft, terrestrische und maritime Fauna und Flora, Schifffahrt und Fischerei, Wasserversorgung, Böden, Gesundheit und die sozialen Folgen behandelt.

Die Anwendung sowie rechtliche und politische Fragestellungen im Rahmen des

Klimaschutzes werden im 4. Kapitel „Was wird getan?“ angesprochen. Dabei geht es auch um die Vermittlung von wissenschaftlichen Ergebnissen an die Öffentlichkeit und deren Diskussion in der Öffentlichkeit, dafür ist ja gerade die Klimavorhersage und die Untersuchung der Folgen eines anthropogenen Einflusses auf das Klima ein gutes (manchmal eher schlechtes) Beispiel. Ebenso werden die verschiedenen Klimaschutzabkommen und die Protokolle sowie ihr Zustandekommen vorgestellt.

Das 5. und letzte Kapitel „Das „El Niño-/Southern-Oscillation-Phänomen““ behandelt noch einmal in zwei Artikeln ein wissenschaftliches Problem. Im ersten Artikel wird dieses pazifische Phänomen, das aber globale Auswirkungen haben kann, beschrieben und erklärt, sowie die Möglichkeit der Vorhersage dargestellt. Im zweiten Teil werden die Auswirkungen, vor allem für die tropischen Länder, aufgezeigt.

Das Buch ist allen denen zu empfehlen, die sich mit dem Klima der Erde, seinen Änderungen und deren Auswirkungen, beschäftigen. Es gibt einen sehr breiten Überblick über die verschiedensten Aspekte der Klimaforschung. Mit einem sieben-seitigen Glossar wird versucht, dem interessierten Laien Hilfestellung zu geben. Auch der Preis des Buches sollte kein Hindernis sein, daß das Buch auf vielen Schreibtischen von „Klimatologen“ zu finden ist. E. Ruprecht

Weitere Neuerscheinungen meteorologischer Fachbücher

Aspirations-Psychrometer-Tafeln, hrsg. vom Deutschen Wetterdienst. 7., vollst. überarb. Aufl. Braunschweig, Vieweg 1998, 271 S. ISBN 3-528-38231.

BALZER, K. u.a.: Wettervorhersage, Mensch und Computer – Daten und Modelle. Berlin, Springer 1998, 184 S. ISBN 3-540-64186-6.

GEHR, P. (Hrsg.): CO₂ – eine Herausforderung für die Menschheit. Berlin, Springer 1997, 208 S. ISBN 3-540-61660-8.

ECKERT, Chr.: El Niño. München: Heyne 1998, 87 S. (Heyne Sachbuch 19/4115) ISBN 3-453-14332-9.

- FLIRI, F.: Naturchronik von Tirol. Innsbruck: Wagner 1998, 369 S. ISBN 3-7030-0313-8
- GRASSL, H.: Wetterwende, Vision, Globaler Klimaschutz. Frankfurt a. M., Campus 1999, 240 S. ISBN 3-593-36035-7.
- HÄCKEL, H.: Farbatlas Wetterphänomene. Stuttgart: Ulmer 1999, 336 S. ISBN 3-8001-3511-6.
- HÄCKEL, H.: Meteorologie. 4., völlig überarb. und neugest. Aufl. Stuttgart: Ulmer 1999, 448 S. (UTB 1338) ISBN 3-8252-1338-2.
- GUTENBRUNNER, Chr. (Hrsg.): Handbuch der Balneologie und medizinischen Klimatologie. Berlin, Springer 1998, 917 S. ISBN 3-540-60534-7.
- MORISKE, H.-J. (Hrsg.): Handbuch für Bioklima und Lufthygiene: Mensch, Wetter, Klima, Innenraum- und Außenlufthygiene. Landsberg: Ecomed 1998, Losebl.-Ausg. ISBN 3-609-72580-X.
- HASENFRATZ, E.: Sonnenstrahlung und Großwetterlagen. Landau: Knecht 1998, 351 S. ISBN 3-930927-36-5.
- HOUGHTON, J.: Globale Erwärmung. Fakten, Gefahren und Lösungswege. Berlin, Springer 1997, 230 S. ISBN 3-540-61844-9.
- KAUFELD, L. u. a.: Mittelmeerwetter. 3. Aufl. Bielefeld: Klasing 1998, 216 S., (Yacht-Bücherei 106) ISBN 3-87412-147-X.
- KAUFELD, L. u. a.: Wetter der Nord- und Ostsee. Bielefeld: Klasing 1997, 248 S., (Yacht-Bücherei 120) ISBN 3-87412-161-5.
- KEPPLER, E.: Die unruhige Erde. Erdbeben, Vulkane, Meteoriten, Stürme, Klima. Hamburg: Rasch u. Röhring 1998, 283 S. ISBN 3-89136-644-2.
- LABITZKE, K.: Die Stratosphäre. Phänomene, Geschichte, Relevanz., Berlin, Springer 1998, 177 S. ISBN 3-540-65000-8.
- MALBERG, H.: Meteorologie und Klimatologie, eine Einführung. 3., aktual. u. erw. Aufl. Berlin, Springer 1997, 354 S. ISBN 3-540-62784-7.
- MAYER, J.: Großvaters Wetter- und Bauernregeln. Stuttgart: Kosmos 1998, 155 S. ISBN 3-440-07603-2.
- ROTH, G. D.: Wetterkunde für alle. Wolkenbilder und andere Wetterphänomene. Großwetterlagen, Wettervorhersage. 8., neubearb. und erw. Aufl. München, BLV 1998, 301 S. ISBN 3-405-15460-X.
- SCHRÖDER, F.: Visualisierung meteorologischer Daten. Berlin, Springer 1997, 235 S. ISBN 3-540-61596-2.
- SIMONS, P.: Froschregen, Kugelblitze und Jahrhunderthagel, : warum das Wetter verrückt spielt. München: Knaur 1997, 331 S. ISBN 3-426-77277-9.
- STRAESSER, M.: Klimadiagramme zur Köppenschen Klimaklassifikation. Gotha, Klett-Perthes 1998, 95 S. ISBN 3-623-00768-4.
- WACKER, U.: Qualitative Analyse von dynamischen Systemen der Wolkenmikrophysik. Berlin: Wissenschaft und Technik 1998, 109 S. ISBN 3-89685-477-1.
- WALKER, A.: Zeichen am Himmel. Wolkenbilder und Wetterphänomene richtig verstehen. Basel, Birkhäuser 1997, 251 S. ISBN 3-7643-5470-4.
- WATTS, A.: Das Wetterhandbuch. Bielefeld: Delius Klasing 1998, 160 S. ISBN 3-7688-1031-3.
- WELLBURN, A. R.: Luftverschmutzung und Klimaänderung. Auswirkungen auf Flora, Fauna und Mensch. Berlin, Springer 1997, 289 S. ISBN 3-540-61831-7.
- WENDLING, P.: Wind und Wetter. Wissenswertes für Versicherer aus meteorologischer Sicht. München: Bayerische Rück 1997, 20 S. Übers. a. d. Engl.
- ZENGER, A.: Atmosphärische Ausbreitungsmodellierung. Grundlagen und Praxis. Berlin, Springer 1998, 159 S. ISBN 3-540-64757-0.
- BAUMGARTNER, A.: Allgemeine Hydrologie, quantitative Hydrologie. 2. Aufl. Berlin, Bornträger 1996, 694 S. (Lehrbuch der Hydrologie 1) ISBN 3-443-30002-2.
- BLUME, G.: In Wind und Wetter – auf Türmen und Dächern: Wetterfahnen. Leipzig: Mehlhorn 1996, 119 S. ISBN 3-930694-15-8.
- ETLING, D.: Theoretische Meteorologie, eine Einführung. Braunschweig, Vieweg 1996, 318 S. ISBN 3-528-06661-X.
- GRÄDEL, Th. E.: Atmosphäre im Wandel, die empfindliche Lufthülle unseres Planeten. Heidelberg, Spektrum 1996, 221 S. ISBN 3-8274-0033-3.
- MÜLLER, M. J.: Handbuch ausgewählter Klimastationen der Erde. 5. erg. u. verbess. Aufl. Trier: Univ., Forschungsstelle Bodenerosion, 1996, 400 S. (Universität Trier, Forschungsstelle Bodenerosion 5).
- HUPFER, P.: Unsere Umwelt. Das Klima, globale und lokale Aspekte. Leipzig: Teubner 1996, 335 S. ISBN 3-8154-3521-8.
- MALEWSKI, H.: Zum Thema Wetter. Frankfurt a. M., Verl. Deutsch 1996, 106 S. ISBN 3-8171-1477-X.
- RAPP, J.: Atlas der Niederschlags- und Temperaturtrends in Deutschland 1891-1990. 2., korr. Aufl. Frankfurt a. M.: Joh.-W. Goethe-Univ., Fachbereich Geowiss. 1996, 253 S. (Frankf. Geowiss. Arb. Ser. B, Meteorol. u. Geophys. 5) ISBN 3-922540-503.
- WEINGÄRTNER, H.: Wenn die Schwalben niedrig fliegen. Vom Nutzen der Wetter- und Bauernregeln. München: Kösel 1996, 288 S. ISBN 3-466-36463-9.
- WIEDERSICH, B.: Das Wetter, Entstehung, Entwicklung, Vorhersage. München, DTV 1996, 208 S. ISBN 3-423-30552-5.
- THOMPSON, R. D. (Hrsg.): Applied climatology: principles and practice. London, Routledge 1997, 352 S. ISBN 0-415-14101-X.
- BARRY, R. G.: Atmosphere, weather and climate. 7. ed. London, Routledge 1998, 409 S. ISBN 0-415-16019-7.

- BIGG, G. R.: The oceans and climate. Cambridge Univ. Pr. 1996, 266 S. ISBN 0-521-58268-7.
- BLACKADER, A. K.: Turbulence and diffusion in the atmosphere, lectures in environmental sciences. Berlin, Springer 1997, 185 S., 2 MS-DOS Disk. ISBN 3-540-61406-0.
- BLAND, W.: Weathering, an introduction to the scientific principles. London, Arnold 1998, 271 S. ISBN 0-340-67745-7.
- BOHREN, C. F.: Atmospheric thermodynamics. New York, Oxford Univ. Pr. 1998, 402 S. ISBN 0-19-509904-4.
- BRYANT, E.: Climate process and change. Cambridge Univ. Pr. 1997, 209 S. ISBN 0-521-48189-9.
- CAMUFFO, D.: Microclimate for cultural heritage. Amsterdam, Elsevier 1998, 415 S. (Developments in atmospheric science 23). ISBN 0-444-82925-3.
- CHAMEIDES, W. L.: Biogeochemical cycles, a computer-interactive study of earth system science and global change. New York, Oxford Univ. Pr. 1997, 224 S. u. 1 Disk. ISBN 0-19-509279-1.
- CURRY, J.A.: Thermodynamics of atmospheres and oceans. San Diego, Academic Pr. 1999, 471 S. (Intern. geophys. ser. 65) ISBN 0-12-199570-4.
- DEFELICE, Th. P.: An introduction to meteorological instrumentation and measurement. Upper Saddle River: Prentice Hall 1998, 229 S. ISBN 0-13-243270-6.
- DURRAN, D. R.: Numerical methods for wave equations in geophysical fluid dynamics. New York, Springer 1999, 465 S. (Texts in applied mathematics 32) ISBN 0-387-98376-7.
- KOMEN, G. J.: Dynamics and modelling of ocean waves. Cambridge Univ. Pr. 1996, 532 S. ISBN 0-521-57781-0.
- GREEN, J.: Atmospheric dynamics. Cambridge Univ. Pr. 1999, 213 S. ISBN 0-521-24975-9.
- JACOBSON, M. Z.: Fundamentals of atmospheric modeling. Cambridge Univ. Pr. 1999, 656 S. ISBN 0-521-63143-2.
- JANOVICKIJ, E. G.: Light scattering in inhomogeneous atmospheres. Berlin, Springer 1997, 371 S. ISBN 3-540-61362-5.
- KARLSSON, K.-G.: An introduction to remote sensing in meteorology. Norrköping: SMHI 1997, 315 S.
- KING, J. C.: Antarctic meteorology and climatology. Cambridge Univ. Pr. 1997, 409 S. ISBN 0-521-46560-5.
- KURZ, M.: Synoptic meteorology. 2nd, compl. rev. ed. Offenbach a. M.: DWD 1998, 200 S. (Training guidelines of the German Meteorological Service 8) ISBN 3-88148-338-1.
- LEROUX, M.: Dynamic analysis of weather and climate, atmospheric circulation, perturbations, climatic evolution. Chichester, Wiley 1998, 365 S. ISBN 0-471-98291-1.
- LESIEUR, M.: Turbulence in fluids. 3., rev. and enl. ed. Dordrecht, Kluwer 1997, 515 S. (Fluid mechanics and its applications 40) ISBN 0-7923-4415-4.
- LINACRE, E.: Climates and weather explained. London, Routledge 1997, 432 S. ISBN 0-415-12520-0.
- MACGORMAN, D. R.: The electrical nature of storms. New York, Oxford Univ. Pr. 1998, 422 S. ISBN 0-19-507337-1.
- MACGUFFIE, K.: A climate modelling primer. Chichester, Wiley 1996, 253 S. ISBN 0-471-95558-2.
- Modelling of atmospheric flow fields. Singapore: World Scientific 1996, 753 S. ISBN 981-02-2509-1.
- RODEAN, H. C.: Stochastic Lagrangian models of turbulent diffusion. Boston: AMS 1996, 84 S. (Meteorological monographs 26.48) ISBN 1-878220-23-3.
- SALBY, M. L.: Fundamentals of atmospheric physics. San Diego, Academic Pr. 1996, 624 S. (Intern. geophys. ser. 61) ISBN 0-12-615160-1.
- SCORER, R. S.: Dynamics of meteorology and climate. Chichester, Wiley 1997, 686 S. ISBN 0-471-96815-3.
- THOMPSON, R. D.: Atmospheric processes and systems. London, Routledge 1998, 194 S. ISBN 0-415-17145-8.
- WARING, R. H.: Forest ecosystems, analysis at multiple scales. 2. ed., San Diego, Acad. Pr. 1998, 370 S. ISBN 0-12-735443-3.
- WELLS, N.: The atmosphere and ocean, a physical introduction. Chichester, Wiley 1997, 394 S. ISBN 0-471-96216-3.
- BRONSTERT, A. (Hrsg.): The Odra/Oder flood in summer 1997. Potsdam: PIK 1998, 163 S. (PIK report 48).
- HULME, M. (Hrsg.): Climates of the British isles, present, past and future. London, Routledge 1997, 454 S. ISBN 0-415-13016-6.
- ROSENTHAL, U. (Hrsg.): Flood response and crisis management in western Europe, a comparative analysis. Berlin, Springer 1998, 236 S. ISBN 3-540-63641-2.
- OEYSTEIN, H. (Hrsg.): Tropospheric ozone research, tropospheric ozone in the regional and sub-regional context. Berlin, Springer 1997, 499 S. ISBN 3-540-63359-6.
- OPPERMANN, R. (Hrsg.): Das Oderhochwasser 1997. Bericht für die Arbeitsgruppe „Aktionsplan Oder“ der IKSO. Koblenz: Bundesanst. f. Gewässerkunde 1997, 59 S.
- ARYA, S.P.: Air pollution meteorology and dispersion. New York, Oxford, Univ. Pr. 1999, 310 S. ISBN 0-19-507398-3.
- BRASSEUR, G. P. (Hrsg.): Atmospheric chemistry and global change. New York, Oxford Univ. Pr. 1999, 654 S. ISBN 0-19-510521-4.
- NAVARRA, A. (Hrsg.): Beyond El Niño, decadal and interdecadal climate variability. Berlin, Springer 1999, 374 S. ISBN 3-540-63662-5.
- BLUESTEIN, H. B.: Tornado Alley, monster storms of the Great Plains. New York, Oxford Univ. Pr. 1999, 180 S. ISBN 0-19-510552-4.
- BRADLEY, R. S.: Paleoclimatology, reconstructing climates of the quarter-

- nary. 2. ed., San Diego, Acad. Press 1999, 613 S. (Intern. geophys. ser. 64,[2]) ISBN 0-12-124010-X.
- CEBECCI, T.: Modeling and computation of boundary-layer flows, laminar, turbulent and transitional boundary layers in incompressible flows. Long Beach, Horizons Publ. 1999, 469 S. ISBN 0-9668461-0-9, ISBN 3-540-65010-5.
- KILCHENMANN, A. (Hrsg.): GIS in der Stadtentwicklung, Methodik und Fallbeispiele. Berlin, Springer, 1999, 244 S. ISBN 3-540-63231-X.
- BAUMGÄRTEL, H. (Hrsg.): Global aspects of atmospheric chemistry. Darmstadt: Steinkopff 1999, 334 S. (Topics in physical chemistry 6) ISBN 3-7985-1127-6.
- KONDRARTEV, K. J.: Climatic effects of aerosols and clouds. London, Springer 1999, 264 S. ISBN 1-85233-110-0.
- HEWITT, C. N. (Hrsg.): Reactive hydrocarbons in the atmosphere. San Diego, Academic Press 1999, 322 S. ISBN 0-12-346240-1.
- SCHWELA, D (Hrsg.): Urban traffic pollution. London, E & FN Spon 1999, 249 S. ISBN 0-419-23720-8.
- YUNG, Y.L.: Photochemistry of planetary atmospheres. New York, Oxford Univ. Pr. 1999, 456 S. ISBN 0-19-510501-X.
- CURRY, J.A.: Thermodynamics of atmospheres and oceans. San Diego, Academic Pr. 1999, 471 S. (Intern. geophys. ser. 65) ISBN 0-12-199570-4.
- DURRAN, D. R.: Numerical methods for wave equations in geophysical fluid dynamics. New York, Springer 1999, 465 S. (Texts in applied mathematics 32) ISBN 0-387-98376-7.
- GREEN, J.: Atmospheric dynamics. Cambridge Univ. Pr. 1999, 213 S. ISBN 0-521-24975-9.
- WAGNER, H.-F. (Hrsg.): Das IKARUS-Projekt: Klimaschutz in Deutschland, Strategien für 2000 – 2020, Springer 1999, 224 S. ISBN 3-540-65375-9.

Aus der Bibliothek des Deutschen Wetterdienstes

Die Literaturdatenbank METLIS der Bibliothek des Deutschen Wetterdienstes jetzt im Internet

METLIS ist eine bibliographische Datenbank, mit deren Hilfe Literaturrecherchen durchgeführt werden können.

METLIS steht jetzt jedem, der einen Internetanschluß hat, zur Verfügung.

In METLIS werden aber auch weiterhin Auftragsrecherchen durch die Bibliothek für DWD-Angehörige sowie Interessenten von außerhalb des DWD (u.U. gegen Entgelt) durchgeführt.

Was enthält METLIS?

Mitte des Jahres 2000 enthält METLIS über 174.000 DE (Dokumentationseinheiten oder Titelaufnahmen) und wächst pro Jahr um ca. 5.000 DE. Die große Datenbasis umfaßt alle Titelaufnahmen, die in der Bibliothek seit 1966 erstellt worden sind, also Literaturnachweise aus über 34 Jahrgängen, in erster Linie aus dem Fach Meteorologie, teilweise aber auch aus verwandten Fachgebieten. Das bedeutet, daß in METLIS Literatur, die vor 1966 erschienen ist, nicht oder kaum nachgewiesen

wird. Diese Veröffentlichungen können im alten (manuellen) Katalog der DWD-Bibliothek gefunden werden.

Die Literatur wird nicht nur formal bibliographisch beschrieben, sondern auch inhaltlich erschlossen. Die inhaltliche Erschließung, d.h. sorgfältige Klassifizierung nach dem Inhalt zum Zwecke der späteren Wiederauffindung, erfolgt mittels DK-Zahlen (universelle Dezimalklassifikation), einer sprachunabhängigen, numerischen Notation. So wird bei der Bibliothek des DWD aus meteorologischen Zeitschriften jeder einzelne Titel formal erfaßt und inhaltlich erschlossen. Das sind ca. 80 % der Titelaufnahmen in METLIS.

Die ausgewertete Literatur umfaßt neben Monographien (Büchern) und Aufsätzen aus Fachzeitschriften auch Diplom- und Doktorarbeiten, Projekt- und Konferenzberichte, Reports aller Art u.s.w., also auch die sogenannte Graue Literatur. Die gesamte in METLIS nachgewiesene Literatur ist in der Bibliothek des DWD vorhanden und unter bestimmten Voraussetzungen

ausleihbar. Literatur, die nicht in der Bibliothek des DWD vorhanden ist, wird nicht nachgewiesen. Da aber die Bibliothek das gesamte meteorologische Schrifttum weltweit und sprachunabhängig sammelt, ist der Vollständigkeitsgrad sehr hoch. Dazu tragen die weltweiten Tauschbeziehungen der Bibliothek des DWD bei.

Wie kommt man an METLIS heran?

Über die URL <http://www.dwd.de> gelangt man auf die Homepage des DWD. Dort das Feld „Publikationen“ anklicken, dann kommt man zur Übersichtsseite der Bibliothek des DWD. Sie enthält Informationen über alle Dienstleistungen der Bibliothek, u.a. eine ausführliche Beschreibung zu METLIS und zum WWW-OPAC, sowie den Link zum Aufruf des WWW-OPAC, der Benutzeroberfläche für die Recherche in METLIS.

M. Goesch
Stand: 14.07.2000

Habilitationen, Promotionen und Diplom-Hauptprüfungen im Jahr 1996

Humboldt-Universität Berlin

Promotion

SCHINKE, Holger: Zu den Ursachen von Salzwassereintrüben in der Ostsee.

Diplom-Hauptprüfungen

- BENZ, Toralf: Zur Variabilität meteorologischer Parameter in der freien Atmosphäre und ihrem speziellen Einfluß auf die Variation der Tropopausehöhe über Lindenberg.
- BERGER, Birgit: Untersuchungen zum geänderten Niederschlags- und Temperaturregime an der Station Lindenberg für die Periode 1961-1990 anhand von Beobachtungsdaten und Radiosondenaufstiegen.
- DOMINKA, Stefan: Zur Anwendung der Theorie der planetarischen Grenzschicht auf die Marsatmosphäre.
- GABLUNSKY, Tobias: Langfristige Änderungen des geostrophischen Windes im Meeresniveau im atlantisch-europäischen Raum.
- GÖRNER, Heiko: Implementierung der Strahlungsschemas nach Ritter und Geleyn in ein numerisches Wettervorhersagemodell.
- KRÜGER, Stephan: Simulationsrechnungen mit dem Bodenfeuchte- und Pflanzenertragsmodell SIMWASER am Versuchsort Berlin-Dahlem.
- RADKE, Marco: Bestimmung der Rauigkeit bracher Felder aus Synthetic-Aperture-Radar-Daten.
- TAHL, Sigrun: Entwicklung eines Algorithmus zur Bestimmung des Säulenwasserdampfgehaltes der Atmosphäre für Szenen des Modularen Optoelektronischen Scanners (MOS-B).
- WEISHEIMER, Antje: Zur statistischen Struktur der niederfrequenten Variabilität der Atmosphäre. - Eine Modellstudie.
- ZIEMANN, Astrid: Simulation des meteorologischen Regimes in Vegetationsdecken mit Hilfe numerischer Grenzschichtmodelle.

Freie Universität Berlin

Habilitationen

PAWSON, Steven: Die Klimatologie der Stratosphäre: Variabilitäts- und Empfindlichkeitsstudien mit Beobachtungen und Modellen.

Promotionen

- BAARTZ, Friedrich: Die Hautwasserabgabe des Menschen unter extremen Umweltbedingungen.
- NAUMANN, Steffen: Die Beziehungen der chemisch-physikalischen Eigenschaften von Wolkenwasser am Brocken (Harz) zu Transport und verschiedenen skaligen meteorologischen Parametern.

Diplom-Hauptprüfungen

- FLEMMING, Johannes: Studie zur Initiierung des photochemischen Ausbreitungsmodells REM-3 mit gemessenen Ozonkonzentrationen.
- JABLKO, Andrea: Theoretische Ansätze zu atmosphärischen Akustik-SchwereWellen.
- KOZLOWSKI, Boris: Niederschlagsprognosen bis zu 8 Stunden mit Markov- und Markoväquivalenten Modellen.
- KUBITZ, Tassilo: Die Sensitivität des Berliner Tropo-Strato-Mesosphären Modells: Effekte durch Ozonänderungen.
- LIESER, Jan Leonhard: Ableitung kinematischer Felder der Meeresoberfläche aus meteorologischen Satellitenbildfolgen.
- MÜLLER, Knut: Bildsegmentierung zur verbesserten Rekonstruktion des optischen Flusses in meteorologischen Satellitenbildfolgen.
- SEDLAK, Ilona: Studie zur Berücksichtigung von Bewölkungsdaten aus Satellitenbildern in einem eindimensionalen Grenzschichtmodell.
- TAUTKUS, Rolf: Einfluß der Alpen auf eine südwestliche Strömung und die Frontalzone bei Annäherung einer Kaltfront. Falluntersuchung vom 15.-17.10.1987.

Universität Bonn

Promotionen

- BORN, Kai: Seewindzirkulationen: Numerische Simulationen der Seewindfront.
- KLASSEN, Joachim: Wechselwirkung der Subsysteme Atmosphäre, Meereis und Ozean im Bereich einer Weddellmeer-Polynia.
- LAMBRECHT, Michael: Numerische Untersuchungen zur tropischen 30-60-tägigen Oszillation mit einem konzeptionellen Modell.
- LESSMANN, Klaus: Sensitivitätsstudien zur Asiatischen Sommermonsunzirkulation mit einem zonal symmetrischen Basismodell.
- RÖMER, Ulrich: Reaktion der Atmosphäre auf SST-Anomalien. Statistisch-dynamische Methoden und lineare Modelle zur Untersuchung der Reaktion der Atmosphäre auf Wassertemperatur-Anomalien anhand von ECHAM3-Simulationen.

Diplom-Hauptprüfungen

- DETHOF, Antje: Mehrfachnestung des regionalen Klima-Modells MCGaP.
- DRÜE, Clemens: Aufbau einer Profilmeßstation im Pflanzenbestand.
- DRÜEN, Birgit: Simulation von SSM/I-Mikrowellen-Radianzen und deren Relevanz für die Fernerkundung von Niederschlägen.
- ELBERSKIRCH, Jochen: Einfluß tropischer SST-Anomalien (ENSO) auf das Modellklima des ECHAM3/T21 GCM nördlich von 55° Nord.
- HACKER, Stephan: Probleme mit der Dämpfungskorrektur von Radardaten.
- HOFFMANN, Jürgen: Synoptik südaustralischer Kaltfronten.
- KLEIN, Thomas: Idealierte Simulationen polarer Mesozyklonen: Mesozyklonogenetische Prozesse in der östlichen Weddellmeerregion.
- KREMER, Monika: Analyse von Flugzeugmeßdaten einer südaustralischen Kaltfront unter kritischer Betrachtung des Flugweges.

Universität Dresden

Diplom-Hauptprüfung

MECKLENBURG, Susanne: Die Änderung der langwelligen Ausstrahlung nach dem Auftreten von Wolken in Abhängigkeit von deren optischen Eigenschaften.

Universität Frankfurt am Main

Habilitation

WACKER, Ulrike: Qualitative Analyse von dynamischen Systemen der Wolkenmikrophysik.

Diplom-Hauptprüfungen

HASSELBECK, Thomas: Das kontur-dynamische Verfahren in der atmosphärischen Wirbeldynamik.

KLAUER, Matthias: Bestimmung von Wind- und Temperaturprofilfunktionen in der Prandtlschicht über einem Waldgebiet mittels Ultraschallmessungen an einem Turm.

MINNERT, Robert: Statistische Analyse des Zusammenhangs von skandinavischen Baumringparametern mit Temperaturzeitreihen und Temperaturrekonstruktionen bis ins 17. Jahrhundert.

PICHT, Achim: Zur Konsistenz von approximierten Flachwassergleichungen zur Behandlung von Rossby- und Schwerewellen.

WALTER, Andreas: Die Anwendungsmöglichkeiten selbstorganisierender neuronaler Netze in der Klimatologie am Beispiel globaler und hemisphärischer Temperaturzeitreihen.

Universität Freiburg

Diplom-Hauptprüfungen

ACKERMANN, Barbara: Auf- und Abbau der Schneedecke am ARINUS-Standort Schluchsee im Winter 1994/1995.

LINSER, Stefanie: Human-biometeorologische Funktionen von Wäldern.

SCHILLI, Armin: Vergleich der Verdunstung dreier Waldstandorte.

Universität Göttingen

Institut für Bioklimatologie*Promotion*

VEITHEN, Corine: Ionentransporte durch Cuticlen von Buchenblättern und Fichtennadeln.

Diplom-Hauptprüfungen

OFFERMANN, Markus: Zwei Methoden zur Bestimmung der Transferwiderstände bei der Deposition atmosphärischen Schwefeldioxides auf Fichtennadeln und Buchenblättern.

SCHÜTZ, Christoph: Eddy-Korrelationsmessungen von CO₂-Flüssen im Solling - Aufbau und Test eines Meßsystems.

SCHMIEDER, Ralf: Transport fühlbarer und latenter Energie in der atmosphärischen Grenzschicht über einem Fichtenbestand.

TWOREK, Thomas: Feldmessungen von turbulenten Transporten von Wasserdampf und Kohlendioxid über und in einem Fichtenbestand.

Universität Göttingen

Institut für Geophysik*Promotion*

HARNISCH, Jochen: Die globalen atmosphärischen Haushalte der Spurengase Tetrafluormethan (CF₄) und Hexafluormethan (C₂F₆).

Universität Hamburg

Habilitationen

BÖSENBERG, Jens: Fernerkundung der Troposphäre mit dem LIDAR-Verfahren der differentiellen Absorption und Streuung.

SCHLÜNZEN, Heike: Validierung hochauflösender Regionalmodelle.

Promotionen

BARTSCH, Barbara: Fernerkundung des Wasserdampfgehalts der Atmosphäre über Land aus rückgestreuter Sonnenstrahlung.

BETANCOR GOTHE, Margarita: Bodengebundene Fernerkundung von Eiswolken im nahen Infrarot.

BOIN, Manuela: Numerische Modellierung des Lebenszyklus von Kondensstreifen und Cirrusbewölkung.

GIERING, Ralf: Erstellung eines adjungierten Modells zur Assimilierung von Daten in ein Modell der globalen ozeanischen Zirkulation.

GIORGETTA, Marco: Der Einfluß der quasi-zweijährigen Oszillation auf die allgemeine Zirkulation: Modellsimulationen mit ECHAM4.

KADUK, Jörg: Simulation der Kohlenstoffdynamik der globalen Landbiosphäre mit Silvan: Modellbeschreibung und Ergebnisse.

KOCH, Wolfgang: Solarer Strahlungstransport in arktischem Cirrus.

LOHMANN, Dag: Hydrologische Modellierung auf der regionalen Skala.

LOHMANN, Ulrike: Sensitivität des Modellklimas eines globalen Zirkulationsmodells der Atmosphäre gegenüber Änderungen der Wolkenmikrophysik.

ROTH, Beate: Bildung von H₂SO₄-H₂O-Aerosol in einem vertikalen laminaren Strömungsreaktor.

TAURAT, Daniel: Windfelder über See unter Verwendung von Satellitendaten und Druckanalysen.

THIEMANN, Stefan: Die vertikale Struktur der konvektiven Grenzschicht während arktischer Kaltluftausbrüche über See.

VOSS, Reinhard: Entwicklung eines Kopplungsverfahrens zur Reduzierung der Rechenzeit von Atmosphäre-Ozean-Modellen.

ZORITA CALVO, Miguel: Turbulenzcharakteristiken von Golfstromtrajektorien in einem quasigeostrophischen Zirkulationsmodell basierend auf Lagrange'schen Vorticitytracern.

Diplom-Hauptprüfungen

AFFELD, Björn: Zugbahnen der Tiefdruckgebiete in täglichen ECMWF-Analysen über dem Nordatlantik.

BAUER, Hans-Stefan: Die tropische Ost-Strahlströmung in den ECHAM Modellen des MPI.

BAUER, Susanne E.: Untersuchung einer einfachen anthropogenen Klimaänderung mit einem vereinfachten globalen atmosphärischen Zirkulationsmodell.

BRECHTEL, Udo: Die Vertikalstruktur der arktischen Grenzschicht über Eis im Winter und Frühsommer untersucht an Hand von Radiosondenmes-

sungen von Bord des Forschungsschiffes Polarstern.

FIEDLER, Lars: Bestimmung des Wärmeflusses an der Grenzfläche Luft-Wasser mittels FTIR-Spektrometrie.

FORTMANN, Martin: Die Charakteristika der rollenartigen Sekundärzirkulation in Wolkenstraßen bei Kaltluftausbrüchen vom arktischen Meereis auf das offene Wasser untersucht anhand von Flugzeugmessungen während ARKTIS '93.

JOST, Volker: Stabilitätsuntersuchungen des Sca-RaB-Kanals im sichtbaren Spektralbereich durch Vergleich mit Meteosat-Daten.

KORRIES, Martin: Anwendung eines mesoskaligen Modells auf die Mikroskala am Beispiel von Gebäudeumströmungen.

KOVAR, Anke: Vergleich neutraler Grenzschichten im Windkanal und in der Natur.

KUBATZKI, Claudia: Numerische Experimente zu den globalen biogeophysikalischen Wechselwirkungen während des Letzten Glazialen Maximums (21 000 Jahre vor heute).

MAAK, Kathrin: Variabilität des Schneeglöckchenblühbeginns in Abhängigkeit von den lokalen und großräumigen Temperaturschwankungen.

MADANI, Navid: Untersuchung von Kaltluftausbrüchen mit Hilfe von NOAA/AVHRR-Satellitendaten.

MERSCHIEVE, Angelika: Über die Ursachen der Lebensdauer von Kondensstreifen.

ROHBRECHT, Bettina: Häufigkeit und Vertikalstruktur niedriger Inversionen über Hamburg im Zeitraum März 1995 bis Mai 1996.

SCHUBERT, Martina: Analyse der Zyklonenbahnen über dem Nordatlantik in Kontroll- und Szenarienrechnungen.

STAHMANN, Michael: Der Einfluß unterschiedlicher Bodentypen auf die von einem globalen Atmosphäre-Biosphäre-Modell berechnete Vegetationsverteilung.

STOCKHAUSE, Martina: Reicht ein einfaches Chemiemodul zur Ozonberechnung in einem mesoskaligen Modell?

WASZKEWITZ, Susanne: Der Wasserkreislauf in der Atmosphäre über dem Viktoria-See aus Satellitendaten.

WILSHUSEN, Michaela: Bestimmung und Auswertung von Zyklonenbahnen aus Beobachtungsdaten über dem Nordpazifik.

WOLKAU, Andreas: Der Einfluß von Niederschlägen auf Stratocumulusbewölkung: eine Modellstudie.

ZECK, Frank: Formulierung konsistenter Randbedingungen für ozeanische Zirkulationsmodelle.

Universität Hannover

Promotionen

HEHL, Oliver: Die Bestimmung der hydrodynamischen Rauigkeit der Unterseite polaren Meereises - numerische Simulationen.

JÜRRENS, Rolf: Parameterisierung der Gebietsverdunstung zur Verwendung in meso- und makroskaligen meteorologischen Simulationsmodellen.

KRASENBRINK, Alois: Partikelförmige Dieselmotoremissionen und ihr Beitrag zur Immissionsbelastung in Städten Niedersachsens.

SCHERF, Andrea: Turbulenzmessungen in der konvektiven Grenzschicht zur Bestimmung von Flächenmittelwerten turbulenter Wärmeflüsse.

Diplom-Hauptprüfungen

GELHARDT, Frank: Bestimmung zweidimensionaler Geschwindigkeitsfelder mittels digitaler Bildanalyse bei Tankexperimenten im rotierenden System.

HOFMANN, Michael: Erste Feldmessungen turbulenter Flüsse in der Arktis mit der Hubschrauberschleppsonde HELIPOD.

KLOCKE, Britta: Turbulenzuntersuchungen in der freien Atmosphäre anhand von Flugzeug- und Radiosondendaten.

MICHALICA, Andreas: Untersuchung von Sturmsituationen an der deutschen Nordseeküste sowie ein Vergleich mit Klimasimulationsrechnungen des ECHAM 3.

PAHL, Ulrike: Numerische Simulation nächtlicher Kaltluftabflüsse zur Interpretation von SAR-Aufnahmen.

SCHAARSCHMIDT, Oliver: Ausbreitungsmodelle für Luftbeimengungen: Ein Vergleich.

SCHRADER, Uwe: Laborexperimente zur Bildung und Dynamik von Wirbeln über einer bodengeführten Dichteströmung im rotierenden System.

WEHNER, Birgit: Mesoskalige Strukturen in der freien Atmosphäre über dem Harz.

Universität (TH) Karlsruhe

Promotionen

ECHLE, Georg: Ableitung von optischen und mikrophysikalischen Parametern stratosphärischer Aerosole aus Emissionsspektren im infraroten Spektralbereich.

GRUNWALD, Jürgen: Messung und Analyse turbulenter Wärmeflüsse in der konvektiven atmosphärischen Grenzschicht über inhomogenen Landoberflächen.

KUNTZ, Martin: Bestimmung der Höhenverteilung stratosphärischer Spurengase aus Emissionsspektren eines bodengebundenen Millimeterwellen-Radiometers.

LENZ, Claus-Jürgen: Energieumsetzung an der Erdoberfläche in gegliedertem Gelände.

MÜLLER, Andreas, 1995: Parallelisierung numerischer Verfahren zur Beschreibung von Ausbreitungs- und chemischen Umwandlungsprozessen in der atmosphärischen Grenzschicht.

SCHWARTZ, Angelika: Numerische Simulationen zur Massenbilanz chemisch reaktiver Substanzen im mesoskaligen Bereich.

WENZEL, Andreas: Die Energieumsätze an der Erdoberfläche in einem Gebiet starker orographischer Gliederung.

Diplom-Hauptprüfungen

KEIL, Christian: Behandlung einer Punktquelle in der numerischen Ausbreitungsrechnung.

KELLMANN, Sylvia: Numerische Simulation einer Kanalströmung um ein quaderförmiges Bauwerk.

KEMNITZER, Holger: Numerische Untersuchung der Refraktion in der Atmosphäre für Infrarot-Messungen.

NOLLE, Michael: Modifikation und Eigenschaften von Ozonmeßgeräten für deren Einsatz auf Linienflugzeugen.

RAMIN, Friedrich von: Fallstudie einer Sturmzyklonenentwicklung über Westeuropa.

SCHUSTER, Volker: Simulation des Winters 1992/1993 mit einem dreidimensionalen numerischen Modell der mittleren Atmosphäre.

STUBER, Armin: Analysen zum Wärmehaushalt des Erdbodens in inhomogenem Gelände.

Universität Köln

Promotionen

- LIPPERT, Elmar: Der Einfluß von Flugzeugabgasen auf die Zusammensetzung der Atmosphäre: Untersuchungen mit einem mesoskaligen Chemie-transportmodell.
- MÜLLER, Sabine: Die Bedeutung der Mie-Streuung für die Berechnung von aktinischen Flüssen und Photolysefrequenzraten in der Stratosphäre.
- SOGALLA, Martin: Die Rolle der Baroklinität für die synoptische Störungsaktivität im nordhemisphärischen Winter - reale Atmosphäre und Klimamodell ECHAM.
- YUN, Won-Tai: Veränderungen der transienten Wellen und Anregungsmechanismen durch anthropogene Einflüsse.
- ZIEGENBEIN, Claus: Die Behandlung von Chlor in einem mesoskaligen Chemietransportmodell: Gas- und Aerosolphase.

Diplom-Hauptprüfungen

- BÜHNEMANN, Jan: Feldtest hochfrequenter seismischer Quellen in kristallinem Gestein.
- DONAT, Andreas: Untersuchung der magnetischen Horizontalkomponenten bei long-offset transient electromagnetic (LOTEM).
- HESSLAND, Thomas: Krustenstrukturen im Bereich der Osteuropäischen Plattform im Lichte der Tiefenseismik.
- IHRIG, Michael: Entwicklung eines zweidimensionalen Chemie-Transport-Modells und seine Anwendung zur Analyse sommerlicher Photo-smog-Episoden.
- KARL, Johann: Untersuchungen koronaler Turbulenz mit den Dopplerdaten der ersten Sonnenkonjunktion 1991 von ULYSSIS.
- KESSELER, Thomas: Einflüsse auf die Jahr-zu-Jahr Veränderlichkeit tropischer innerjahreszeitlicher Zirkulationschwankungen.
- MOLITOR, Renate: Vergleich eines Eulerschen Transportmodells mit den Daten eines Ausbreitungsexperiments.
- MÖLHOFF, Martin: Modellierung der chemischen Umwandlung reaktiver Flugzeugabgase im Tropopausenbereich unter Berücksichtigung ihrer Dispersion.
- PLÖGER, Sven: Steuernde Mechanismen für die Variabilität der großskaligen

- tropischen Konvektion im Hamburger Klimamodell ECHAM.
- SCHELL, Bendict: Zu den Rand- und Anfangsbedingungen des EURAD Chemie-Transport-Modells Version2 (CTM 2), Erstellen eines Szenarios auf der Basis von Meßdaten.
- SCHMIDT, Hauke: Variationelle Datenassimilation mit Hilfe eines adjungierten Modells am Beispiel des RADM2-Gasphasenmechanismus.
- STEGER, Jessica: Untersuchung des totalen Elektroneninhalts (TEC) der Ionosphäre: Vergleich zweier Methoden.

Universität Leipzig

Diplom-Hauptprüfungen

- KÜNZELMANN, André: Vertikale Verteilung der relativen Feuchte in der maritimen Grundschicht und ihr mittlerer Feuchtezustand.
- MATTIS, Ina: Zeitliche Entwicklung des stratosphärischen Aerosols nach dem Ausbruch des Pinatubo: Analyse von Rahmen-Lidarmessungen.
- WAGNER, Frank: Abschätzung des Einflusses des Pinatubo-Aerosols auf den stratosphärischen Ozonabbau: Beobachtungen über Mitteleuropa.

Universität Mainz

Promotionen

- HANNEMANN, Anke: Eine experimentelle und theoretische Untersuchung zur gekoppelten Aufnahme von NH_3 , CO_2 und SO_2 in Wassertropfen.
- TSIAS, Athanasios: Einfluß des Aufplatzens von Tropfen auf das Wachstum von Regentropfen und auf die Umverteilung ihrer Inhaltsstoffe.

Diplom-Hauptprüfungen

- BOGS, Berit: Anteil und Größenverteilung der biologischen Partikel in Wolkenwasser.
- FRÜH, Barbara: Untersuchungen zum Nesting meso- und mikroskaliger Strömungsmodelle.
- GRUBER, Sabine: Biologischer Anteil der unlöslichen Bestandteile von Partikeln im Niederschlag.
- LEHMANN, Alexander: Vergleich physikalischer Parameter von Ombrometer und Distrometer.
- PETERS, Kristina: Die biologische Komponente des atmosphärischen Aero-

- sols in Mainz unter Berücksichtigung von Jahreszeit und Witterung.
- SIEBERT, Jörg Jakob: Das Beryllium-7 im Mainzer Aerosol.

Universität München

Promotionen

- GIEZ, Andreas: Einsatz eines Wasserdampf-DIALs und eines Heterodyn-Wind-Lidars zur Messung des Vertikalfusses von Wasserdampf in einer konvektiven Grenzschicht.
- HESS, Michael: Modellierung und Messung optischer Eigenschaften von Cirren.
- INCLAN, Maria G.: Modellierung nicht-lokaler Austauschprozesse in und über hohen Pflanzenbeständen.
- MÖLLER, Dominique: Tropical cyclones: a potential vorticity perspective.
- REPPENGLÜCK, Bernhard: Flüchtige organische Verbindungen (VOC) - ihre Verteilung, Transport und Bedeutung in photochemischen Prozessen der bodennahen urbanen Atmosphäre in den Großräumen München und Athen.
- SCHNEIDERREIT, Michael: Dynamische Aspekte der regionalen Klimamodellierung im Alpenraum.
- SUPPAN, Peter: Bildung und Verhalten der Photooxidantien Ozon und Peroxyacetylnitrat (PAN) in Regionen unterschiedlicher Luftschadstoffbelastung.

Diplom-Hauptprüfungen

- ERB, Robert: Measurements of Spectral Solar Ultraviolet Radiation on Top of the Zugspitze (2964 m a.s.l.).
- FENEBERG, Brigitte: Sensitivitätsstudien mit einem globalen Zirkulationsmodell bezüglich luftverkehrinduzierten Ozonstörungen im Tropopausenbereich.
- FORSTER, Caroline: The Parameterization of Convection in Numerical Models.
- HAAS, Katharina: Bestimmung regionaler Emittor-Rezeptor-Relationen im Alpenraum.
- SEIFERT, Peter: Spurenstoffflüsse von Ammoniak, Salpetersäure und Ammoniumnitrat: Genauigkeit der Profilmethode und Einfluß chemischer Reaktionen.
- ZIERL, Bärbel: Die Rolle der Strahlung im Stratosphären-Troposphären-Austausch in einer Höhenantizyklone.

Universität Graz

Habilitation

BIERNAT, Helfried K.: Verschmelzung magnetischer Feldlinien.

Universität Innsbruck

Promotionen

NAGLER, Thomas: Methods and Analysis of Synthetic Aperture Radar Data from ERS-1 and X-SAR for Snow and Glacier Applications.

SCHLOSSER, Elisabeth: Modellierung der neuzeitlichen Schwankungen des Hintereisferners.

Diplom-Hauptprüfungen

JÄGER, Frank: Druck - Windbeziehung am Boden am Beispiel der TMI-Daten.

LOACKER-SCHÖCH, Thomas: Die vertikale Temperaturverteilung in der Talatmosphäre über Innsbruck.

RAINER, Paul: Analysen von Windmessungen am Hintereisferner und Auswertung der Energiebilanz, Juli 1989.

SIEGEL, Andreas: Methoden der Radarinterferometrie für glaziologische Fragestellungen.

SCHAFFHAUSER, Andreas: Zur Helizität in der synoptischen Skala.

Universität Wien

Institut für Meteorologie und Geophysik*Promotionen*

SPREITZHOFFER, Gerald: The Wels-Weather Prediction System: Adaptation and Validation for the Alpine Region.

STOHL, Andreas: On the Use of Trajectories für Establishing Source Receptor Relationships of Air Pollutants.

Diplom-Hauptprüfungen

KURY, Georg: Meteorologischer Parameter der Windenergienutzung.

SIMIC, Stana: Untersuchungen der ultravioletten Strahlung in Wien und auf dem Hohen Sonnblick.

Universität für Bodenkultur Wien

Promotionen

BREYCHA, Marina: Natürliche Schwankungen und anthropogene Einflüsse des stratosphärischen Ozons über Österreich.

PRAHBA, Thara: Massenkonsistente Modellierung von lokalen Strömungsstrukturen und die Anwendung für atmosphärische Transport- und Diffusionsmodellierung.

KARIPOT, Anandakumar: Untersuchungen über den Einfluß von Unstetigkeit der Wärmeumsatzes im Gelände.

Diplom-Hauptprüfung

SIMIC, Stana: Gegenüberstellung von Registrierungen mit UV-Dosimetern im Gebirge und in der Ebene.

ETH Zürich

Promotionen

AEBISCHER, Urs: Low-level potential vorticity in Alpine flows.

HENRICH, Werner: Mikrophysikalische Vorgänge im Hellen Band.

HERING, Alessandro: Primäre und sekundäre Aerosolpartikel in der planetaren Grenzschicht während Photosmog-Episoden in der Schweiz.

HIRTER, Hans: Mehrdimensionale Interpolation von meteorologischen Feldern zur Berechnung der Brechungsbedingungen in der Geodäsie.

KAUFMANN, Pirmin: Bodennahe regionale Windfelder über komplexer Topographie.

LEHNING, Michael: Transport processes and regional pollutant budgets over topography of varying complexity.

SCHRAFF, Christoph: Data Assimilation and Mesoscale Weather Prediction: A study with a forecast model for the Alpine Region.

WIDMANN, Martin: Mesoscale variability and long-term trends of Alpine precipitation and their relation to the synoptic-scale flow.

Universität Basel

Promotion

WÜTHRICH, Michael: In Situ Measurement and Remote Sensing of Soil Moisture Using Time Domain Reflectometry, Thermal Infrared and Active Microwaves.

Diplom-Hauptprüfungen

OERTLIN, Michael: Der Möhlin-Jet - Ein regionales Phänomen mit überregionalen Ursachen. Darstellung und Auswertung von Daten aus dem Teilprojekt MISTRAL des Regio-Klima-Projektes REKLIP.

BRUN, Matthias: Landsat-TM-gestützte Modellierung der Schneeschmelze in NW-Spitzbergen.

SCHILLING, Anja: Ableitung der kurzwelligen Reflexion und solaren Albedo im REKLIP-Gebiet aus Landsat-TM-Daten.

KAREL, Jana: Vergleich der Strahlungsmeßgeräte im REKLIP-Meßnetz: STRAKA.

STUDER, Kaspar: Berechnung der turbulenten Wärmeflüsse über landwirtschaftlich genutzten Oberflächen anhand mikrometeorologischer Meßdaten aus dem REKLIP-Teilraum Südlicher Oberrhein.

PLATTNER, Gian-Kasper: Analyse und Abschätzung der verkehrsbedingten Luftbelastung in der Region Basel.

Tagungen

Symposium: 50 Jahre Numerische Wettervorhersage

Symposium: 50th Anniversary of Numerical Weather Forecasting, 9.-10. März 2000, Potsdam; eine gemeinsame Veranstaltung von DMG und EMS

Wer hätte 1950 gedacht, daß mit der vergleichsweise bescheidenen Publikation des Artikels „Numerical Integration of the Barotropic Vorticity Equation“ der Meteorologen Jule Charney und Ragnar Fjortoft sowie des Mathematikers John von Neumann im noch jungen Journal *Tellus* eine neue Ära in der Meteorologie beginnen würde? In der Frühphase des Computerzeitalters wurde durch diese Arbeit die vorherrschende Skepsis widerlegt, daß ein ganzes Feld hochkomplexer Probleme überhaupt lösbar sei. Dieses hatte Bjerknes 1904 postuliert und die großartigen (aber erfolglosen) Arbeiten von Richardson bestätigten es 18 Jahre später scheinbar. Sogar noch 1946 hatte Houghton die großen Zweifel unterstrichen, indem er sagte, daß das beschränkte Wissen um die physikalischen Prozesse in der Atmosphäre kein guter Ausgangspunkt für die Wettervorhersage sei.

Die Entwicklung grundlegender theoretischer Ansätze der Atmosphärenphysik in den fünfziger Jahren war allein noch nicht der Durchbruch zur Numerischen Wettervorhersage. Aber dank der stürmischen Entwicklung der Computertechnologie konnte

sich ein wahrhaft dynamisches System entwickeln, das die heutigen benutzten Wetterprognosestrategien erst ermöglicht. Mit zunehmender Genauigkeit konnte in Zeitskalen jenseits von 14 Tagen vorgestoßen und auf diese Weise ein Musterbeispiel für angewandte Wissenschaft aufgezeigt werden.

50 Jahre Wettervorhersage: Auf dem geschichtsträchtigen Telegrafenberg in Potsdam fand am 9. und 10. März 2000 Symposium statt, das einige der bekanntesten Experten der Numerischen Wettervorhersage und verwandten Gebieten zusammenbrachte. Die Idee dazu hatten die Professoren Wippermann und Fortak. Lennart Bengtsson vom Max-Planck-Institut für Meteorologie in Hamburg übernahm die Leitung des Programmkomitees.

Dabei drehte sich alles um Geschichte, Fortschritt und Aussichten dieses Wissenschaftszweiges. Darüber hinaus gab es bewegende Szenen des Wiedersehens unter Freunden, viele von ihnen lebende Legenden, die der Gemeinschaft seit der Anfangszeit angehören.

Das zweitägige Symposium war so angelegt, daß jeder Vortragende 45 Minuten Zeit hatte, was allseits sehr positiv aufgenommen wurde. Es gliederte sich in vier Teile:

- Historische Perspektive und regionale Modellierung - hier kamen Norman Philips, Aksel Wiin-Nielsen und Heinz Reiser zu Wort;
- Bis zur Gegenwart reichende Phase der globalen Modellierung - Guri Marchuk, Fedor Mesinger, Lennart Bengtsson und T.N. Krishnamurti führten in diesen Bereich ein;
- Die derzeitige Entwicklung hochauflösender Modelle - Werner Wergen, Andrew Staniforth und Jean-François Geleyn berichteten über den neuesten Stand;
- Anwendungen und Zukunftsperspektiven - Timothy Palmer, Anton Eliassen und Mojib Latif gaben ihre An- und Übersichten an die Zuhörer weiter.

Die Kurzfassungen der in Potsdam gehaltenen Vorträge wird im Jahr 2001 in einem repräsentativem Buch veröffentlicht. Es ist über das Sekretariat der DMG und EMS in Berlin zu beziehen.

Weitere Details erhalten Sie vom DMG/EMS-Sekretär: Dipl.-Met. Arne Spekat, c/o Institut für Meteorologie, Freie Universität Berlin, C.-H.-Becker-Weg 6-10, 12165 Berlin
Tel.: 0 30 / 79 70 83 24, Fax: 0 30 / 79 70 83 29,
E-Mail: dmg@bibo.met.fu-berlin.de.

A. Spekat, 03. Juli 2000

Fünfte Deutsche Klimatagung, ein Beitrag zur EXPO 2000

Hamburg, 2.-6.10.2000, Congress-Centrum Hamburg (CCH)

Vom 2. bis 6. Oktober 2000 trafen sich 150 zumeist deutsche und schweizerische Klimaforscher aus verschiedensten Disziplinen, von der Geographie, Meteorologie bis zur Ethnologie, Geschichte und Soziologie, zur 5. Deutschen Klimatagung. Das übergeordnete Ziel der Veranstaltung war das

interdisziplinäre Gespräch zwischen Natur-, Sozial- und Geisteswissenschaften, ohne das eine sinnvolle Einbettung naturwissenschaftlicher Kenntnisse in den gesellschaftlichen und politischen Kontext der Gegenwart nicht möglich ist. In der Vergangenheit ist die Notwendigkeit der

interdisziplinären Kooperation oft unterbewertet worden. Die zentrale Herausforderung für die Klimaforschung ist weniger - wie in den vergangenen Jahren - das Verständnis und die Simulation der globalen Dynamik und Veränderung des Klimas, sondern vielmehr die Untersuchung des

regionalen und lokalen Klimas im gesellschaftlichen Kontext. Dabei kommt den Wetterextremen eine besondere Bedeutung zu. Unabhängig von möglichen menschengemachten Klimaveränderungen treten solche Extreme durchaus auch oft in Serie auf, wie viele Beispiele der historischen Klimatologie zeigen. So gab es nicht nur in den 1990er Jahren eine Reihe schwerer Rhein-Hochwässer. Häufigkeiten in bestimmten Zeiträumen traten auch in früheren Jahrhunderten auf (z.B. um 1660 und 1830). Diese Beobachtung unterstützt die Empfehlung, im Rahmen einer Klimapolitik neben Bemühungen zur Vermeidung von Klimaänderungen auch großes Gewicht auf die Entwicklung der Anpassungsfähigkeit von Gesellschaft und Wirtschaft zu legen. Diese verbesserte Flexibilität ist um so dringlicher, weil Zahlen der Versicherungswirtschaft belegen, daß die klimabedingten Schäden vor allem aufgrund einer erhöhten gesellschaftlichen und ökologischen Empfindlichkeit in den letzten Jahren dramatisch zugenommen haben. Forschung dieser Art erfordert die Zusammenarbeit von Natur-, Sozial- und Kulturwissenschaften. Diese Notwendigkeit wurde im Rahmen der Tagung unterstrichen durch den erstmals verliehenen Eduard-Brückner-Preis. Er ging an den Berner Historiker Prof.

Christian Pfister, der sich besonders verdient gemacht hat durch die Rekonstruktion historischer Klimaveränderungen und Dokumentation historischer Extremereignisse.

Auf folgende Einzelergebnisse ist hinzuweisen:

- (a) Im späten 16. Jahrhundert häuften sich kalte und feuchte Extremereignisse. Die verängstigte Bevölkerung schrieb dies einer Verschwörung von Hexen zu, die in einer Art „Klimapolitik“ als „Sündenböcke des Klimawandels“ in großer Zahl verbrannt wurden. (Details: Prof. Christian Pfister, christian.pfister@hist.unibe.ch).
- (b) Hitzewellen, auch gerade in eher gemäßigten Klimaten in Europa, stellen eine statistisch signifikantes Risiko für gesundheitlich angeschlagene Personen (Kleinkinder, ältere Menschen) dar, dem durch geeignete Warnsysteme effektiv begegnet werden kann. (Details: Prof. Gerd Jendritzky, Gerd.Jendritzky@dwd.de).
- (c) Die jährliche Vegetationsperiode in Mitteleuropa ist in den vergangenen 40 Jahren um etwa 10 Tage verlängert worden. Gleichzeitig haben sich die afrikanischen Wüsten drastisch vergrößert,

die Tundragebiete dagegen verringert. (Details: Dr. Friedrich-Wilhelm Gerstengarbe, gerstengarbe@pik-potsdam.de)

- (d) Die Schneebedingungen für den Wintersport haben sich in den letzten Jahrzehnten in der Schweiz deutlich verschlechtert, aber diese Verschlechterung ist jedoch im Vergleich zu den 1920er Jahren nicht auffällig, obwohl die ökonomischen Auswirkungen heute natürlich ungleich stärker sind als damals. (Details: Prof. Heinz Wanner, wanner@giub.unibe.ch)
- (e) Bundes- und Landesbeamte, die für die Klimapolitik zuständig sind, sind von der Realität der menschengemachten globalen Erwärmung mehr überzeugt als die Wissenschaftler selbst. Kontakte zwischen diesen Beamten und den Wissenschaftlern sind bis jetzt unbefriedigend und müssen dringend verbessert werden. (Details: Prof. Hans von Storch, storch@gkss.de)

Prof. Dr. Hans von Storch
storch@gkss.de

Dr. Götz Flöser
floeser@gkss.de

<http://w3g.gkss.de/staff/storch>
<http://w3g.gkss.de/hgf/5dkt.html>

8. Internationales Treffen zur statistischen Klimatologie

Die „Internationalen Treffen zur statistischen Klimatologie“ sind seit 1979 von einer Gruppe von unabhängigen Klimatologen und Statistikern organisiert worden. Die achte dieser Tagungen wird vom 12.-16. März 2001 in Lüneburg abgehalten werden.

Zweck dieser Treffen ist es, Klimatologen und Statistiker zusammen zu bringen, um Konzepte und Probleme auszutauschen. Klimatologen präsentieren statistische Probleme der Klimatologie (auch der Meteorologie und verwandter Gebiete) und die Methoden, mit denen diese Probleme zur Zeit behandelt werden. Statistiker zeigen neue State-of-the-art-Techniken, die in der mathematischen Statistik und anderen Gebieten entwickelt worden sind. In der Diskussion der klimatologi-

schen Bedürfnisse und der neuen Methoden der Statistik werden synergetische Effekte erreicht, die die methodische Basis der Klimatologie erweitern und der Statistik helfen, sich auf relevante Probleme zu konzentrieren.

Das achte Treffen ist in fünf Sektionen aufgeteilt, die jede eine spezielle Herausforderung der gegenwärtigen Klimatologie zum Thema haben: Stochastische Klimamodelle; Extremwertanalyse; Statistik, Modelle und Datenassimilation; Simulationsmodelle und Entscheidungsfindung. Auch Beiträge, die sich nicht in diesen Themen wiederfinden, sind willkommen.

Stochastische Klimamodelle (Betreuer: Jin-Song von Storch und Peter Müller):
Dynamische Klimamodelle basieren auf



der Integration von Gleichungen, die die Dynamik oder Physik des Klimasystems repräsentieren.

Diese Modelle enthalten oft stochastische Terme und werden dann stochastische Klimamodelle genannt. Diese stochastischen Terme werden aus zwei Gründen berücksichtigt:

- Dynamische Modelle eliminieren die schnell veränderlichen Variablen, die nicht zum Klimasystem selbst gehören. Sie müssen die Auswirkungen dieser Variablen parametrisieren und haben so ein Schließungsproblem. Dies führt zu stochastischen Termen wie im Langevin-Verfahren, das einen dissipativen und einen zufällig fluktuierenden Term enthält, und in empirischen Verfahren, die Zufallsvariable einführen, deren Dynamik von Beobachtungen oder hochauflösenden Modellen bestimmt werden.
- Viele Parameter der dynamischen Gleichungen und die Anfangs- und Randbedingungen sind unsicher und sollten, in Übereinstimmung mit dem Bayes'schen Credo, als Zufallsvariable behandelt werden.

Diese Sitzung beinhaltet Beiträge zur Entwicklung, Begründung und Analyse von stochastischen Klimamodellen.

Extremwertanalyse (Betreuer: Hasse Alexandersson und Ian Jolliffe):

Die statistische Analyse von Extremwerten ist seit vielen Jahren ein Thema für Klimatologen. Einige der fundamentalen Erkenntnisse in diesem Gebiet sind von Atmosphärenwissenschaftlern gefunden worden. Mit vielen praktischen Anwendungen wie Wiederkehrzeiten oder Dimensionierung ist sie immer noch ein sehr wichtiges Forschungsfeld geblieben. Zu den offenen Fragen gehört: wie erhält man eine gute Schätzung bei kurzen Beobachtungszeiten?

Ein großer Teil der Theorie geht von der Stationarität der betrachteten Werte aus und ist auf eine Variable und einen geographischen Ort beschränkt. Mit der wachsenden Erkenntnis, daß das Klima nichtstationär ist, sieht sich diese Theorie dem Problem gegenüber, wie man Extremwerte unter den Bedingungen des Klimawandels vorhersagt. Neuentwicklungen in der räumlichen Modellierung, gekoppelt mit der Möglichkeit, statistische Probleme mit eleganten, aber rechenintensiven Methoden zu behandeln, erlauben es, Extremwerte an verschiedenen Orten gleichzeitig zu modellieren.

Diese Sitzung wird den aktuellen Stand der Extremwertanalyse in der Klimatologie zusammenfassen und einige aktuelle Entwicklungen im Detail behandeln.

Statistik, Modelle und Datenassimilation (Betreuer: Dietrich Stoyan und Hans Wackernagel):

Diese Sitzung wird eine Brücke schlagen zwischen der statistischen Analyse von klimatologischen und meteorologischen Daten und einer deterministischen Interpretation von klimatologischen Prozessen durch mechanistische Modelle. Traditionell wird Datenassimilation verwendet, um eine interessierende Größe abzuschätzen durch Kombination von Beobachtungsdaten und den dynamischen Prinzipien, die das betrachtete System beherrschen. Angestrebt wird ein Vergleich von Datenassimilationstechniken in verschiedenen Gebieten, z.B. numerische Wettervorhersage in Verbindung mit Reanalyse- und regional gekoppelten Modellen oder saisonale Vorhersage mit global gekoppelten Modellen.

Die Sitzung will Statistiker, Modellierer und Fachleute für Datenassimilation zusammenführen. Vorträge zu den Themen Datenassimilationstechniken, statistische zeit-räumliche Analyse, Geostatistik, Zufallsmengen, Punktprozesse, Parameterschätzung in stochastischen Klimamodellen und verwandte stochastische Methoden mit der Anwendung auf klimatologische und meteorologische Daten werden präsentiert.

Simulationsmodelle (Betreuer: Hans von Storch und Francis Zwiers):

Simulationsmodelle werden benötigt, um das stochastische Verhalten von Klimasystemen nachzuahmen. Dieses stochastische Verhalten ist zum einen wichtig als inhärente Unsicherheit (z.B. bei dem Problem, den anthropogenen Einfluß auf Klimaänderungen nachzuweisen), zum anderen, um den Bereich der Klimavariabilität zu beschreiben, der Auswirkungen auf sensitive Systeme wie Ökosysteme, Einzugsbereiche und Meereswellen hat.

In der Klimatologie stammt die funktionale Form der Simulationsmodelle oft aus physikalischen Argumenten. Die unbestimmten Parameter, die in diesen Modellen enthalten sind, werden typischerweise dadurch bestimmt, daß man das Modell an Daten anpaßt oder mit dem Ergebnis eines hochaufgelösten quasi-realistischen Modells vergleicht. Das einfachste Beispiel

eines Simulationsmodells ist ein multivariates autoregressives Modell der ersten Ordnung, das eine diskretisierte Version eines gedämpften physikalischen Systems darstellt. Komplexer sind „Wettergeneratoren“, die z.B. intern konsistente Zeitreihen von räumlich verteiltem Niederschlag, Temperatur oder anderen Klimavariablen produzieren, die statistisch von Beobachtungen nicht unterscheidbar sind. Durch spezielles Design solcher Wettergeneratoren kann der Einfluß von niederfrequenten anthropogenen Signalen oder der ENSO-Oszillation auf Niederschlagshäufigkeiten und Sturmdauern einbezogen werden.

Entscheidungsfindung und Nachweis anthropogener Klimaänderung (Betreuer: Gabi Hegerl und Lawrence Wilson)

Diese Sitzung konzentriert sich auf Aspekte der Entscheidungsfindung, die von Wetter- oder Klimavorhersagen auf verschiedenen Zeitskalen abhängen, und auf die Frage, wie man Beobachtungsdaten gewinnt, auf die Entscheidungsprozesse gestützt werden können.

Beispiele sind:

- Entscheidungstheorie: Anwendung der Entscheidungstheorie auf Wettervorhersagen auf kurzen und mittleren Zeitskalen, wirtschaftliche Aspekte von Vorhersagen, Wert von monatlichen und saisonalen Vorhersagen,
- Anthropogener Klimawandel: Nachweis und Abschätzung von anthropogenen Klimasignalen aus Beobachtungen, Strategien zur optimalen Anpassung mit unvollständiger Information.

Veranstalter:

GKSS Forschungszentrum
Geesthacht GmbH,
Max-Planck-Straße, 21502 Geesthacht

Weitere Informationen:
<http://w3g.gkss.de/8imsc.html>
Kontakt: Dr. Götz Flöser,
Tel. 04152/87-1834,
email floeser@gkss.de

Stand: 10. 10. 2000

Bisher erschienene Ausgaben von Promet

Die Fortbildungszeitschrift *promet* erscheint im Selbstverlag des Deutschen Wetterdienstes. In der Regel sind es 4 Hefte pro Jahrgang. Preis für den vollständigen Jahrgang: DM 44,-; Einzelheft DM 12,-; Doppelheft DM 24,-; Dreifachheft DM 36,-. Bestellungen nur beim Verlag.

Verlagsanschrift: Deutscher Wetterdienst
Frankfurter Straße 135
63067 Offenbach a. M.
Tel.: (0 69) 80 62 - 42 72 / - 42 70 / - 42 71
Fax: (0 69) 80 62 - 41 23

* vergriffene Hefte. Ausleihe in der Bibliothek des Deutschen Wetterdienstes und in anderen Bibliotheken möglich.

- | | | | |
|-----------------------|---|-----------------------|--|
| Vol. 1, 1971, Nr. 1/2 | Mikro- und Makroturbulenz | Vol.11, 1981, Nr. 1 | Meso-scale Modelle |
| Vol. 2, 1972, Nr. 1 | Numerische Vorhersage * | Nr. 2/3 | Transport und turbulente Diffusion von Luftbeimengungen |
| Nr. 2 | Satellitenmeteorologie I | Nr. 4 | Flugmeteorologische Probleme der planetarischen Grenzschicht |
| Nr. 3 | Satellitenmeteorologie II | | |
| Nr. 4 | Wolkenphysik | Vol.12, 1982, Nr. 1/2 | Synoptische Meteorologie heute. Zentraler synoptischer Dienst* |
| Vol. 3, 1973, Nr. 1 | Das barotrope Modell | Nr. 3/4 | Biometeorologie |
| Nr. 2 | Geschichte der meteorologischen Strahlungsforschung | Vol.13, 1983, Nr. 1/2 | Statistische Methoden der Klimatologie |
| Nr. 3 | Meßtechnik und Automation | Nr. 3/4 | Neuere Ergebnisse der Satellitenmeteorologie |
| Nr. 4 | Technoklimatologie | Vol.14, 1984, Nr. 1 | Das Europäische Zentrum für Mittelfristige Wettervorhersage (EZMW) |
| Vol. 4, 1974, Nr. 1 | Die Grenzschicht der Atmosphäre* | Nr. 2/3 | Maritime Meteorologie |
| Nr. 2 | Medizinmeteorologie* | Nr. 4 | Klima und Volkswirtschaft I |
| Nr. 3 | Instrumente und Methoden | Vol.15, 1985, Nr. 1 | Klima und Volkswirtschaft II |
| Nr. 4 | Vorhersageprüfung* | Nr. 2/3 | Strahlungstransporte in der Atmosphäre |
| Vol. 5, 1975, Nr. 1 | Agrarmeteorologie heute | Nr. 4 | Klimarelevante Spurenstoffe I |
| Nr. 2 | Die chemische Zusammensetzung der unteren Atmosphäre I, Gase * | Vol.16, 1986, Nr. 1 | Klimarelevante Spurenstoffe II |
| Nr. 3 | Die chemische Zusammensetzung der unteren Atmosphäre II, Aerosole | Nr. 2/3 | Hydrometeorologie |
| Nr. 4 | GATE I | Nr. 4 | Ozon I |
| Vol. 6, 1976, Nr. 1 | GATE II | Vol.17, 1987, Nr. 1/2 | Ozon II und III |
| Nr. 2 | Die Allgemeine Zirkulation der Atmosphäre | Nr. 3/4 | Mesoskaliges Klima |
| Nr. 3 | Das barokline Modell | Vol.18, 1988, Nr. 1-3 | Das Max-Planck-Institut für Meteorologie |
| Nr. 4 | Die Energetik der Allgemeinen Zirkulation der Atmosphäre | Nr. 4 | Meteorologie und Klimatologie der Antarktis I |
| Vol. 7, 1977, Nr. 1 | Radioaktivität der Atmosphäre | Vol.19, 1989, Nr. 1/2 | Meteorologie und Klimatologie der Antarktis II und III |
| Nr. 2 | Luftelektrizität I | Nr. 3/4 | Reaktive Spurenstoffe in der Atmosphäre |
| Nr. 3 | Luftelektrizität II | Vol.20, 1990, Nr. 1/2 | Spezielle geophysikalische Verfahren |
| Nr. 4 | Klimaschwankungen | Nr. 3/4 | Fernerkundung in der Meteorologie I |
| Vol. 8, 1978, Nr. 1 | Aktuelle Probleme der Flugmeteorologie | Vol.21, 1991, Nr. 1/2 | Fernerkundung in der Meteorologie II |
| Nr. 2/3 | Anthropogene Klimamodifikation | Nr. 3/4 | ALPEX - Das Alpine Experiment I |
| Nr. 4 | Sturmfluten und Seegang I | Vol.22, 1992, Nr. 1 | ALPEX - Das Alpine Experiment II |
| Vol. 9, 1979, Nr. 1 | Sturmfluten und Seegang II | Nr. 2-4 | Meteorologie der Mittleren Atmosphäre |
| Nr. 2/3 | Zirkulationsmodelle | Vol.23, 1993, Nr. 1/2 | Wolkenphysik und Wolkendynamik I |
| Nr. 4 | Stadtklima | Nr. 3 | Wolkenphysik und Wolkendynamik II |
| Vol.10, 1980, Nr. 1/2 | Klimamodelle | Nr. 4 | Allgemeine Themen |
| Nr. 3 | Klima und Planung I | Vol.24, 1995, Nr. 1/3 | Wettervorhersagedienst I |
| Nr. 4 | Klima und Planung II | Nr. 4 | Wettervorhersagedienst II |
| | | Vol.25, 1996, Nr. 1/2 | Wettervorhersagedienst III |
| | | Nr. 3 | Beiträge zur Grundfragen d. Meteorologie |
| | | Nr. 4 | Das Meteorologische Observatorium Hohenpeißenberg I |
| | | Vol.26, 1997, Nr. 1/2 | Das Meteorologische Observatorium Hohenpeißenberg II |

Anschriften der Autoren dieses Heftes

PROF. DR. FRANZ FIEDLER
Institut für Meteorologie und Klimaforschung,
Universität Karlsruhe / Forschungszentrum Karlsruhe
Kaiserstraße 12, 76128 Karlsruhe
f.fiedler@phys.uni-karlsruhe.de

PROF. DR. KARL H. BECKER
Bergische Universität, GH Wuppertal
FB 9 – Physikalische Chemie
Gaußstraße 20, 42097 Wuppertal
becker@physchem.uni-wuppertal.de

PROF. DR. RAINER DIERKESMANN
Klinik Schillerhöhe, Zentrum für Pneumologie und
Thoraxchirurgie
Solitudestraße 18, 70839 Gerlingen
dierkesman@aol.de

DR. WOLFGANG ENKE
Freie Universität Berlin, Meteorologisches Institut
Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10, 12165 Berlin
wenke@bibo.met.fu-berlin.de

PROF. DR.-ING. HABIL. RAINER FRIEDRICH
Universität Stuttgart, Institut für Energiewirtschaft und
Rationelle Energieanwendung
Heßbrühlstraße 49 a, 70550 Stuttgart
rf@ier.uni-stuttgart.de

DR. HARALD GEIGER
Bergische Universität, GH Wuppertal
FB 9 – Physikalische Chemie
Gaußstraße 20, 42097 Wuppertal
geiger@physchem.uni-wuppertal.de

PROF. DR. JÜRGEN KESSELMEIER
Max-Planck-Institut für Chemie, Abtlg. Biogeochemie
Postfach 3060, 55020 Mainz
jks@mpch-mainz.mpg.de

DR. RALF KOPPMANN
Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Atmosphärische Chemie
52425 Jülich
r.koppmann@fz-juelich.de

PROF. DR. FRANZ X. MEIXNER
Max-Planck-Institut für Chemie, Abtlg. Biogeochemie
Postfach 3060, 55020 Mainz
meixner@mpch-mainz.mpg.de

DR. MICHAEL MEMMESHEIMER
Universität zu Köln, Inst. für Geophysik u. Meteorologie/EURAD
Aachener Straße 201-209, 50931 Köln
mm@eurad.uni-koeln.de

DR.-ING. ANDREAS OBERMEIER
Universität Bayreuth, Lehrstuhl f.
Technische Thermodynamik u. Transportprozesse (LTTT)
Universitätsstraße 30, 95440 Bayreuth
Andreas.Obermeier@uni-bayreuth.de

PROF. DR. DIRK POPPE
Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Atmosphärische Chemie
52425 Jülich
d.poppe@fz-juelich.de

DR. EBERHARD REIMER
Freie Universität Berlin, Meteorologisches Institut
Carl-Heinrich-Becker-Weg 6-10, 12165 Berlin
reimer@zedat.fu-berlin.de

PROF. DR. HEINRICH SANDERMANN
GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH
Institut für Biochemische Pflanzenpathologie
Ingolstädter Landstraße 1, 85764 Oberschleißheim
sandermann@gsf.de

DR. BERNHARD VOGEL
Institut für Meteorologie und Klimaforschung,
Forschungszentrum Karlsruhe / Universität Karlsruhe
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1,
76344 Eggenstein-Leopoldshafen
bernhard.vogel@imk.fzk.de

DR. HEIKE VOGEL
Institut für Meteorologie und Klimaforschung,
Forschungszentrum Karlsruhe / Universität Karlsruhe
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1,
76344 Eggenstein-Leopoldshafen
heike.vogel@imk.fzk.de

DIPL.-PHYS. BURKHARD WICKERT
Universität Stuttgart, Institut für Energiewirtschaft und
Rationelle Energieanwendung
Heßbrühlstraße 49 a, 70550 Stuttgart
bw@ier.uni-stuttgart.de

DR. PETER WINKLER
Deutscher Wetterdienst/Meteorologisches Observatorium
Hohenpeißenberg
Albin-Schwaiger-Weg 10, 82383 Hohenpeißenberg
peter.winkler@dwd.de

DR. JÖRG ZIMMERMANN
Deutscher Wetterdienst, Abteilung Klima und Umwelt
Postfach 10 04 65, 63004 Offenbach
joerg.zimmermann@dwd.de

Redaktionelle Hinweise für Autoren

1 Allgemeines

Promet dient der Fortbildung von Meteorologen und Wetterberatern. Die Beiträge zum Thema des Heftes sollen den neuesten Stand des zu behandelnden Spezialgebietes auf wissenschaftlicher Basis in einer verständlichen und anschaulichen Weise darstellen.

2 Textunterlagen

2.1 Textdisketten

Erstellt im Programm Word als DOC-, RTF-, TXT-Dokument oder in einem kompatiblen Programm. Zu jeder auf Diskette erstellten Seite wird ein Ausdruck benötigt.

2.2 Gliederung

Numerierung der Haupt- und Unterabschnitte nach dem Dezimalsystem (1, 1.1, 1.2 ..., 2, 2.1, 2.2. usw.).

2.3 Abbildungen, graphische Darstellungen

Kontrastscharfe und reproduktionsfähige

Vorlagen (Fotos mit Hochglanz, Strichzeichnungen mit schwarzer Tusche und klarer Beschriftung). Legenden zu den Abbildungen auf besonderem Blatt beifügen.

2.4 Formeln, Gleichungen

Auf das Notwendige beschränken, deutlich lesbar mit fortlaufender Numerierung in runden Klammern am rechten Textrand.

2.5 Tabellen

Nur im notwendigen Umfang, klar und übersichtlich, ggf. auch als Abbildungen.

2.6 Literaturzitate

Literaturhinweise im *Text* ... MÜLLER (1980) ... oder ... (MÜLLER 1980) ...

Literaturverzeichnis:

- Autoren in alphabetischer Reihenfolge. Herausgeber werden durch den Zusatz: „Hrsg.“ gekennzeichnet.

- Zeitschriftenaufsatz:

KURZ, M., 1982: Zum Einfluß diabatischer Prozesse auf die Frontogenese in Bodennähe. Meteorol. Rdsch., **35**, 21-30.

- Buch:

SCHÖNWIESE, C.-D., 1980: Klimaschwankungen. Berlin: Springer-Verlag, 181 S.

3 Korrekturen

Autoren, die das Thema des Heftes behandeln, erhalten Fahrenabzüge ihres Beitrages zur Korrektur. Die Umbruchkorrekturen werden von der Hauptschriftleitung durchgeführt.

4 Belegexemplar, Fortdrucke

Autoren des Hauptthemas erhalten je 5 Belegexemplare des betreffenden Heftes. Autoren von Kurzmitteilungen (3spaltige Texte) je 1 Heft. Zusätzliche Exemplare können gegen Erstattung der Fortdruckkosten bei der Rücksendung der Korrekturen bestellt werden.

Manuskriptsendungen werden erbeten:

Deutscher Wetterdienst
Hauptschriftleitung Promet
Postfach 70 04 21
22004 Hamburg
Telefon 0 40 / 66 90-18 09
Telefax 0 40 / 66 90-18 02
e-mail: hein-dieter.behr@dwd.de